Der magnetische Phasenübergang und das Einsetzen des Ferromagnetismus bei dünnen Eisenschichten auf Galliumarsenid

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

der Fakultät für Physik

der Universität Regensburg

vorgelegt von

Frank Bensch

aus Lauf an der Pegnitz

2001

Das Promotionsgesuch wurde eingereicht am 24.09.2001

Tag der mündlichen Prüfung: 24.01.2002

Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. G. Bayreuther

Prüfungsausschuß:	Prof. Dr. U. Krey	(Vorsitzender)
	Prof. Dr. G. Bayreuther	(1. Gutachter)
	Prof. Dr. W. Prettl	(2. Gutachter)
	Prof. Dr. M. Maier	(weiterer Prüfer)

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung 1

2 Theoretischer Hintergrund 4

2.1 Ursachen des Ferromagnetismus der Materie 4
2.2 Dünne magnetische Schichten 5
2.3 Magnetische Momente 6
2.4 Magnetische Anisotropie 7
2.5 Magnetischer Phasenübergang 9
2.6 Das Einsetzen des Ferromagnetismus bei dünnen Schichten 14

3 Experimentelle Methoden 17

3.1 Methoden zur Probenpräparation 17
3.1.1 Molekularstrahlepitaxie (MBE) 17

3.2 Methoden zur strukturellen Charakterisierung 25
3.2.1 Elektronenbeugung unter streifendem Einfall (RHEED) 26
3.2.2 Rastertunnelmikroskopie (STM) 29

3.3 Methoden zur magnetischen Charakterisierung 31
3.3.1 Magneto-optischer Kerr-Effekt (MOKE) 31
3.3.2 SQUID-Magnetometrie 44
3.3.3 Konversionselektronen-Mössbauer-Spektroskopie (CEMS) 51

4 Durchführung und Deutung der Experimente 53

4.1 Probenpräparation und strukturelle Charakterisierung 53

4.1.1 Präparation von GaAs(001)-Oberflächen 53
Kristallstruktur von GaAs-Massivmaterial und GaAs(001)-Oberflächen 53
Ziel der Oberflächenpräparation 54
Das verwendete GaAs-Substratmaterial 54
Tempern 55
Ionenätzen 56
Präparation einer (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche 60
RHEED „beam rocking“ an einer (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche 62
Präparation einer (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche 64

4.1.2 Wachstum von Fe auf GaAs(001)-Oberflächen 66
Schichtdickenbestimmung *66*
Wachstum von Fe auf einer (4x2) rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche *68*
Wachstum von Fe auf einer (6x6) rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche *70*
4.1.3 Präparation von Proben für magnetische Messungen 70
Herstellung der Fe-Lagen *70*
Aufwachsen einer Au-Abdeckschicht *71*
Weitere Maßnahmen *71*
4.2 Magnetische Charakterisierung 72
4.2.1 Der magnetische Phasenübergang 72
Die spontane Magnetisierung als Funktion der Temperatur *72*
Die magnetische Suszeptibilität als Funktion der Temperatur *72*
Ausschluß eines Artefakts des digital-ac-MOKE-Meßverfahrens *74*
Ausschluß einer Reorientierung der magnetischen Anisotropie bei $T = T_C$ *74*
Ausschluß von Superparamagnetismus *75*
Ausschluß einer plötzlich einsetzenden Domänenaufspaltung *76*
Die „Schärfe" des magnetischen Phasenübergangs *77*
Die Inhomogenität der Curietemperatur über der Schichtfläche *81*
Der kritische Exponent b *82*
Die magnetische Anisotropie als Funktion der Temperatur *84*
4.2.2 Das Einsetzen des Ferromagnetismus 88
Die Curietemperatur als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung *89*
Deutungsversuch im Rahmen eines „finite-size-scaling"-Modells *90*
Deutung als Perkolationsphänomen *91*
Der Anteil des ferromagnetischen Eisens als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung *93*
Die magnetische Anisotropie als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung *95*
Das atomare magnetische Grundzustandsmoment als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung *97*
4.2.3 Das magnetische Verhalten vor dem Einsetzen des Ferromagnetismus 99
Das magnetische Verhalten bei $d_{Fe} = 2.5$ ML *100*
Das magnetische Verhalten bei $d_{Fe} = 2.0$ ML *101*
Interpretation der Beobachtungen *103*
5 Zusammenfassung 105
6 Anhang 109
7 Literaturverzeichnis 110

1 Einleitung

Ferromagnet-Nichtmagnet-Heterostrukturen und die „XMR-Effekte“

Ein Meilenstein innerhalb des Arbeitsgebietes „dünne magnetische Schichten“ war die Entdeckung des sogenannten „Riesenmagnetowiderstands-Effekts“ („GMR“ = „*G*iant *M*agneto *R*esistance“) an metallischen Ferromagnet/Nichtmagnet-Mehrlagensystemen in den Arbeitsgruppen von A. Fert [Baibich 88] und P. Grünberg [Binasch 89]. Seitdem ist auch der erstmals von M. Jullière [Jullière 75] beschriebene „Tunnel-Magnetowiderstandseffekt“ („TMR“ = „*T*unneling *M*agneto *R*esistance“) in den Mittelpunkt des Interesses gerückt. Die Effekte bestehen darin, daß der elektrische Widerstand zwischen zwei ferromagnetischen Kontakten, welche entweder durch eine dünne Metallschicht (beim „GMR“) oder durch eine dünne Isolatorschicht (beim „TMR“) voneinander getrennt sind, stark von der gegenseitigen Orientierung der Magnetisierungen in den Kontakten abhängt. Ursache ist in beiden Fällen die spinabhängige Streuung der Elektronen an den Grenzflächen der Ferromagnete auf Grund der unterschiedlichen Zustandsdichten für Elektronen mit entgegengesetzter Spinorientierung. Als Oberbegriff wird gelegentlich die Bezeichnung „XMR-Effekte“ benutzt.

Die technologische Nutzbarkeit dieser Effekte wurde schnell erkannt. Anwendungen z.B. für Positions- und Winkelsensoren, insbesondere aber für Leseköpfe in Festplatten-Laufwerken haben sich bereits etabliert. Eine darüber hinausgehende Perspektive stellen die magnetischen random-access-memories („MRAMs“) dar, die möglicherweise einmal die heute üblichen dynamischen random-access-memories („DRAMs“) als Arbeitsspeicher von Computern ablösen könnten [Zhu 00]. Man stellt sich vor, die digitale Information, die als Magnetisierungsrichtung in kleinen ferromagnetischen Elementen gespeichert ist, unter Nutzung eines XMR-Effekts auszulesen, wobei dazu jede einzelne Speicherzelle elektrisch zu kontaktieren ist. So ergäbe sich ein nichtflüchtiger Speicher ohne bewegliche Teile, welcher außerdem auch eine hohe Strahlungsresistenz aufweist. Ungeklärt sind aber unter anderem noch das Signal-Rausch-Verhältnis beim Leseprozeß und die erzielbare Datentransferrate.

Konkret ergeben sich folgende Probleme: Der Widerstand eines GMR-Elements mit CIP-Geometrie (d.h. Stromfluß in der Schichtebene) nimmt bei Verkleinerung des Elements ab. Bei vorgegebenem Lesestrom nimmt damit auch der Spannungsunterschied zwischen den beiden Magnetisierungszuständen und damit das Signal-Rausch-Verhältnis ab. Bei TMR-Elementen nimmt dagegen der Widerstand bei Verkleinerung der geometrischen Ausdehnung zu. Große Widerstände führen aber zusammen mit unvermeidbaren parasitären Kapazitäten zu Tiefpaßverhalten, also zu einer Begrenzung der Datentransferrate. Bei Elementen von so geringer Ausdehnung, wie es erforderlich ist, um eine mit DRAMs konkurrenzfähige Speicherdichte zu erhalten, beträgt der Widerstandsunterschied von GMR- und TMR-Elementen viele Größenordnungen. Dabei liegt der für die Praxis günstigste Widerstandswert in der Mitte zwischen diesen beiden Fällen.

Daraus erwächst der Wunsch nach einer Zwischenschicht mit optimiertem elektrischen Widerstand. Hierfür bieten sich im Prinzip Halbleiter an, da bei diesen die Barrierenhöhe für Tunnelprozesse geringer ist als bei Isolatoren und außerdem der Widerstand über eine Dotierung gezielt eingestellt werden könnte. Außerdem sind nichtleitende bzw. halbleitende Substrate gegenüber metallischen Substraten vorzuziehen, da letztere einen unerwünschten Shunt darstellen, welcher die erzielbaren XMR-Widerstandsverhältnisse limitiert.

Ferromagnet-Halbleiter-Heterostrukturen und die „Magnetoelektronik“

Es ergeben sich sogar noch weitergehende Perspektiven für die Kombination von Halbleitern mit magnetischen Materialien [Prinz 90] [Prinz 95] [Prinz 98] [Prinz 99]. Der Spin stellt einen bisher in der Halbleiterelektronik nicht genutzten Freiheitsgrad der Ladungsträger dar. „spin-up“ und „spin-down“ könnten in einer zukünftigen „Magnetoelektronik“ als komplementäre Zustände genutzt werden, in völliger Analogie zu den entgegengesetzten Ladungsvorzeichen von Elektronen und Löchern.

Prototyp für ein magnetoelektronisches Bauelement könnte ein „Spin-Feldeffekt-Transistor“ sein, bei welchem zwei ferromagnetische Kontakte über ein zweidimensionales Elektronengas elektrisch miteinander verbunden sind [Datta 90]. Einerseits sollte sich eine Abhängigkeit des Widerstands von der relativen Orientierung der Magnetisierungen ergeben, ganz analog zum GMR- bzw. TMR-Effekt. Durch eine Gate-Elektrode könnte jedoch außerdem im zweidimensionalen Elektronengas

ein elektrisches Feld aufgebaut werden, welches die Elektronenspins zu einer Präzessionsbewegung veranlaßt (Rashba-Effekt) [Bychkov 84]. Somit würden die aus einem Kontakt mit bestimmter Spinrichtung in das Elektronengas eintretenden Elektronen am anderen Kontakt mit einer Spinrichtung ankommen, welche von der Gate-Spannung abhängt. Damit hängt dann aber auch die spinabhängige Streuung, also der elektrische Widerstand zwischen Source und Drain, von der Gatespannung ab. Der Widerstand wäre also sowohl elektrisch als auch magnetisch steuerbar.

Für die Funktionsfähigkeit eines solchen Bauelements sind zwei Dinge entscheidend: 1. Der *Spintransport* im Halbleiter muß über ausreichend große Distanzen möglich sein, d.h. die Elektronen dürfen nicht durch Streuprozesse ihre Spininformation verlieren. 2. Die *Spininjektion* muß gelingen, d.h. Elektronen müssen mit einer einheitlichen Spinorientierung, welche durch die Magnetisierungsrichtung im ferromagnetischen Source-Kontakt festgelegt ist, in das zweidimensionale Elektronengas eintreten.

Der Spintransport in Halbleitern über Distanzen von mehreren Mikrometern scheint tatsächlich kein Problem zu sein. In einem Schlüsselexperiment wurden spinpolarisierte Elektron-Loch-Paare mit Hilfe von zirkularpolarisiertem Licht optisch angeregt und die Spinpolarisation nach Durchlaufen einer bestimmten Strecke wieder optisch über die Zirkularpolarisation der Rekombinationsstrahlung nachgewiesen [Hägele 98]. Die Spininjektion aus einem ferromagnetischen Metall in einen Halbleiter ist jedoch bis in jüngste Zeit nicht gelungen. Wichtig sollte dabei die Qualität der Grenzfläche zwischen Metall und Halbleiter sein. Insbesondere eine Interdiffusion könnte zur Bildung von Gebieten führen, in welchen nicht-spinerhaltende Streuprozesse stattfinden.

Um die Beschaffenheit von Ferromagnet-Halbleiter-Grenzflächen zu beurteilen, sollte man neben elektrischen Transportmessungen und Strukturuntersuchungen auch das magnetische Verhalten von ferromagnetischen Kontakten untersuchen, da der Magnetismus oft sehr empfindlich von der Struktur abhängt. Dabei sollte man insbesondere sehr dünne ferromagnetische Lagen betrachten, denn für diese sollte der Einfluß der grenzflächennahen Bereiche besonders groß sein. Zur Interpretation der Ergebnisse wird es nötig sein, mit früheren theoretischen und experimentellen Ergebnissen zu zweidimensionalen magnetischen Systemen zu vergleichen. Je näher das magnetische Verhalten solcher Schichten dem eines idealen Ferromagneten kommt, desto wahrscheinlicher ist ein Gelingen der Spininjektion.

Das Halbleitermaterial mit der derzeit größten technischen Bedeutung ist Silizium. Da jedoch alle in Frage kommenden magnetischen Metalle, wie Fe, Co und Ni, Silizide bilden bzw. einen großen Gitterfehlpaß aufweisen, erscheint die Verwendung von Silizium für Zwecke der Magnetoelektronik problematisch. Alle bisherigen Untersuchungen zum System Fe/Si haben trotz hohen Aufwandes nicht zu bahnbrechenden Ergebnissen geführt. Als technisch zweitwichtigster Halbleiter bietet sich Galliumarsenid an. Co und Ni haben auch zu diesem Material einen großen Gitterfehlpaß. Dies gilt jedoch nicht für Fe.

Eisen auf Galliumarsenid

Die Massivmaterial-Gitterkonstante von bcc-Fe ist praktisch genau halb so groß wie die eines GaAs-Kristalls (Fehlpaß $\approx$ 1.4 %). Daher kann ein epitaktisches Aufwachsen von Fe auf GaAs erwartet werden. Erste Experimente mit diesem Schichtsystem, wie sie seit Anfang der Achtziger Jahre am Naval Research Laboratory in den USA von G. Prinz und Mitarbeitern durchgeführt wurden, waren zunächst wenig ermutigend [Prinz 82] [Krebs 87]. Es gelang zwar nach Desorption der nativen Oxidschicht im Vakuum bei ca. 600 °C, epitaktisches Wachstum von Fe auf GaAs(001) bei einer Substrattemperatur von 175 °C zu erzielen, magnetische Messungen ergaben jedoch, daß sich mehrere Fe-Atomlagen an der Grenzfläche zum GaAs unmagnetisch verhalten. Bis in jüngste Zeit wurde für Fe/GaAs(001) von bis zu mehreren zehn unmagnetischen Atomlagen berichtet [Filipe 97]. Als Ursache für diese „magnetisch toten Lagen“ kam in erster Linie eine Durchmischung von Fe mit Ga und As in Frage.

Im Jahre 1997 gelang es M. Zölfl und M. Brockmann in der Arbeitsgruppe, welcher auch der Verfasser der vorliegenden Arbeit angehörte, das Herstellungsverfahren für Fe-Schichten auf GaAs(001)-Oberflächen so zu optimieren, daß keine unmagnetischen Lagen auftreten [Zölfl 97a] [Zölfl 97b]. Entscheidend war einerseits ein Ar-Ionenätzen der Substratoberfläche bei einer Temperatur von 550 °C nach der Desorption der nativen Oxidschicht. Außerdem wurde das Fe anschließend nicht bei 175 °C, sondern bei Zimmertemperatur aufgedampft. Bei Fe-Schichten von ≥ 5 Monolagen (ML) nomineller Dicke, welche auf diese Weise hergestellt wurden, entsprachen die über das gesamte Schichtmaterial gemittelten atomaren magnetischen Grundzustandsmomente

dem Massivmaterialwert, weshalb das Vorliegen von magnetisch toten Lagen ausgeschlossen werden konnte. Außerdem wuchs das Eisen trotz der reduzierten Substrattemperatur epitaktisch. Dies war ein vielversprechendes Ergebnis im Hinblick auf die Spininjektion.

Es war jedoch noch ein anderes Ergebnis überraschend, nämlich die Beobachtung einer starken uniaxialen magnetischen Anisotropie, deren Achse innerhalb der Schichtebene liegt [Brockmann 99]. Im Rahmen der Dissertation von M. Brockmann wurde die Abhängigkeit dieser uniaxialen und auch der kubischen magnetischen Anisotropie von der Fe-Schichtdicke systematisch untersucht. Dies geschah für Schichtdicken $d_{Fe} \geq 4$ ML, welche groß genug waren, daß die Curietemperatur deutlich oberhalb Zimmertemperatur liegt. Die Abhängigkeit des Betrags der Magnetisierung von einem angelegten äußeren Magnetfeld konnte deshalb vernachlässigt werden, obwohl nicht bei tiefen Temperaturen, sondern bei Zimmertemperatur gemessen wurde. Es wurde erkannt, daß die Ursache für die uniaxiale Komponente der magnetischen Anisotropie an der Grenzfläche zwischen Fe und GaAs lokalisiert ist. Außerdem wurde ein Grenzflächen- und ein Volumenbeitrag zur kubischen magnetischen Anisotropie beobachtet und quantifiziert [Brockmann 00].

Nun war es interessant, noch dünnere Fe-Lagen zu betrachten. Dies war der Ausgangspunkt für die vorliegende Arbeit. Mit Verringerung der Schichtdicke nimmt die Curietemperatur T_C gegenüber dem Massivmaterialwert von $T_{C,Fe}^{bulk} = 1043$ K immer weiter ab und wird schließlich klein genug, so daß das magnetische Phasenübergangsverhalten untersucht werden kann, ohne bei der Messung durch Wärmeeinwirkung eine strukturelle Veränderung der Probe auszulösen.

Da sich mit abnehmender Schichtdicke die Menge an magnetischer Substanz in den Proben verringert, nimmt auch die Signalstärke bei magnetischen Messungen ab. Bei Annäherung an die Curietemperatur in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes sollte schließlich das magnetische Signal beliebig klein werden. Aus diesen Gründen ergeben sich sehr hohe Anforderungen an das Signal-Rausch-Verhältnis der magnetischen Meßmethoden.

Sehr hilfreich ist die zu erwartende Einkristallinität der Fe-Schichten, um im gesamten magnetischen Material einheitliche Anisotropierichtungen zu haben. Besonders günstig ist außerdem, daß die magnetische Anisotropie nach den Ergebnissen von M. Brockmann bei allen zu untersuchenden Schichtdicken ($d_{Fe} < 3.6$ ML) erstens zu einer *in der Schichtebene*, parallel zur [110]-Kristallrichtung orientierten spontanen Magnetisierung führen sollte und daß zweitens diese Richtung voraussichtlich bei allen relevanten Temperaturen eine *leichte* Richtung *aller* Anisotropiebeiträge darstellen wird. Es sollte deshalb möglich sein, durch Messung der Komponente des Magnetisierungsvektors in [110]-Richtung den *Betrag* der Magnetisierung als Funktion von Temperatur und externem Magnetfeld experimentell zu bestimmen. Wegen der Orientierung der Magnetisierung parallel zur Schichtebene sind Komplikationen durch Domänenaufspaltungen nicht zu erwarten. Insgesamt sind also bei diesem Schichtsystem sehr gute Voraussetzungen gegeben, um Meßergebnisse von hoher Aussagekraft für das magnetische Phasenübergangsverhalten als Funktion von Temperatur und nomineller Schichtdicke zu erhalten.

Die „Schärfe“ der Diskontinuität im Temperaturverlauf magnetischer Größen bei T_C sollte mit dem Grad der strukturellen Homogenität der Fe-Schicht in Zusammenhang stehen. Sie könnte durch Vergleich mit Ergebnissen von Strukturuntersuchungsmethoden interpretiert werden.

Darüber hinaus war es unter anderem ein Ziel, den kritischen Exponenten β des magnetischen Phasenübergangs zu bestimmen. Damit könnte auf die Universalitätsklasse geschlossen werden, welcher das System Fe/GaAs(001) zuzuordnen ist.

Die Universalitätsklasse sollte entscheidend davon abhängen, in welchem Verhältnis die magnetische Anisotropieenergie zur thermischen Energie steht. Für ein tieferes Verständnis ist es daher wichtig, die magnetische Anisotropie in unmittelbarer Nähe der Curietemperatur zu kennen. Es sollte deshalb die Stärke der dominierenden uniaxialen magnetischen Anisotropie bei einer festen Schichtdicke als Funktion der Temperatur bestimmt werden und zwar von Temperaturen $T << T_C$ bis zu $T > T_C$. Dabei ist die Feldabhängigkeit des Betrags der Magnetisierung zu berücksichtigen.

Für Fe, das bei Zimmertemperatur auf Metall-Einkristallen, wie z.B. Ag(001), aufgewachsen ist, wurde berichtet, daß bereits für eine nominelle Dicke von 2.4 ML bei Zimmertemperatur ein ferromagnetisches Verhalten auftritt [Qiu 94]. Bei Fe auf GaAs(001), das ebenfalls bei Zimmertemperatur gewachsen ist, scheint dagegen eine nominelle Bedeckung von mindestens 3.8 ML erforderlich zu sein, um Ferromagnetismus bei Zimmertemperatur zu bekommen [Freeland 99]. Da diese Diskrepanz auf Ursachen beruhen könnte, welche die Spininjektion verhindern (z.B. Durchmischung von Fe mit Ga und As), erschien es wichtig, dieser Sache genauer nachzugehen.

Um unabhängig zu werden vom Einfluß thermischer Anregungen, sollte untersucht werden, bei welcher minimalen nominellen Fe-Bedeckung erstmals ein ferromagnetischer *Grundzustand* auftritt. Dazu bietet es sich an, die Curietemperatur als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung bis zu möglichst niedrigen Temperaturen zu bestimmen und durch eine geeignete Extrapolation die Fe-Bedeckung zu ermitteln, bei welcher die Curietemperatur von Null verschieden wird. Auf der Basis von weiteren strukturellen und magnetischen Meßdaten sollte dann die tiefere Ursache für das „Einsetzen des Ferromagnetismus“ bei gerade dieser Fe-Bedeckung aufgeklärt werden.

Schließlich sollte auch das magnetische Verhalten von Fe-Lagen auf GaAs(001) betrachtet werden, welche so dünn sind, daß noch kein Ferromagnetismus vorliegt. Dabei ist eine Betrachtung des mittleren atomaren magnetischen Grundzustandsmoments, der magnetischen Anisotropie, sowie der Feld- und Temperaturabhängigkeit des Betrags der Magnetisierung wichtig. Es ist insbesondere zu entscheiden, ob die Fe-Schichten vor dem Einsetzen des Ferromagnetismus rein superparamagnetisch sind (diese Ansicht wurde z.B. von Xu et al. und Freeland et al. vertreten [Xu 98] [Freeland 99]), oder ob ein komplizierteres magnetisches Verhalten vorliegt, welches z.B. durch Dipol-Dipol-Kopplungen oder indirekte Austauschkopplungen verursacht sein könnte.

Da die GaAs(001)-Oberfläche je nach Vorbehandlung verschiedene Rekonstruktionen ausbildet, sollte auch beachtet werden, ob die Art der Rekonstruktion Einfluß auf das magnetische Verhalten von darauf gewachsenen Fe-Schichten hat.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Ursachen des Ferromagnetismus der Materie

Elektronen, welche die Hülle von Atomen bilden, verursachen auf Grund ihrer elektrischen Ladung und der „Bahnbewegung“ ein magnetisches Dipolmoment (*Bahnmoment*), wenn sie einen Zustand mit von Null verschiedener Bahndrehimpulsquantenzahl besetzen. Darüber hinaus besitzen sie auch einen Eigendrehimpuls (Spin), welcher ebenfalls mit einem magnetischen Dipolmoment verbunden ist (*Spinmoment*). Bei vorgegebener Ladung des Atomkerns (Ordnungszahl) richtet sich die Besetzung der Energiezustände mit Elektronen nach den Hund’schen Regeln. Alle Atome und Ionen, mit Ausnahme solcher, die eine Edelgaskonfiguration aufweisen, besitzen nicht-vollbesetzte Orbitale, in welchen sich die Spinmomente der Elektronen nicht vollständig kompensieren. Somit besitzen die meisten freien Atome und Ionen ein von Null verschiedenes magnetisches Gesamtmoment. Verdünnte Gase aus solchen Teilchen verhalten sich paramagnetisch.

Bringt man Atome bzw. Ionen sehr nahe zusammen, so daß sich ein Festkörper bildet, dann spalten die Energieniveaus der Elektronen zu Bändern auf. Zusätzlich führt die Existenz von elektrischen Kristallfeldern dazu, daß im Festkörper die Bahnmomente weitgehend ausgelöscht werden. Im Festkörper dominieren also die Spinmomente. Aber auch die Spinmomente von solchen Elektronen, die zu Energiebändern gehören, welche sich aus s- und p- Orbitalen der freien Atome herleiten, tragen wegen ihrer Delokalisiertheit nicht wesentlich zum Magnetismus bei. Ein Großteil der Festkörper zeigt deshalb nur den relativ schwachen Diamagnetismus bzw. den Pauli-Spin-Paramagnetismus. Die stark lokalisierten Elektronen in unvollständig besetzten 4f-Orbitalen (bei den „seltenen Erden“) und 5f-Orbitalen (bei den „Aktiniden“) führen allerdings zu deutlich von Null verschiedenen magnetischen Gesamtmomenten.

Festkörper von chemischen Elementen mit unvollständig besetzten 3d-Orbitalen (z.B. Fe) verhalten sich komplizierter, denn die 3d-Elektronen können weder als völlig lokalisiert noch als völlig delokalisiert betrachtet werden („itinerante Elektronen“). Da die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsverteilungen von Elektronen mit paralleler Spinrichtung wegen des Pauli-Prinzips weniger stark überlappen als die von Elektronen mit antiparalleler Spinrichtung, ist die Coulombenergie bei paralleler Spinrichtung tendentiell niedriger als bei antiparalleler Spinorientierung („Austauschwechselwirkung“). Im Bändermodell führt dies dazu, daß die Zustandsdichten von „spin-up“- und „spin-down“-Elektronen auf der Energieskala gegeneinander verschoben sind (*Austauschaufspaltung*). Da das Ferminiveau spinunabhängig ist, gibt es bei austauschaufgespaltenen Zustandsdichten einen Überschuß an Elektronen von einer der beiden Spinsorten, was zu einem von Null verschiedenen mittleren magnetischen Moment pro Atom führt.

Die Parallelstellung von Spins ist mit einer Zunahme der kinetischen Energie verbunden, da die Doppelbesetzung von k-Zuständen aufgehoben werden muß. Bei den Elementen Fe, Co und Ni aus der Mitte der 3d-Reihe des Periodensystems überwiegt der mit einer Parallelstellung von Spins verbundene Gewinn an Coulombenergie (*Austauschenergie*) den gleichzeitigen Aufwand an kinetischer Energie, da für diese Elemente das Produkt von Austauschintegral und Zustandsdichte an der Fermikante den Wert 1 überschreitet (*Stoner-Kriterium*). Bei hinreichend niedrigen Temperaturen bewirkt deshalb die Austauschwechselwirkung eine Nettomagnetisierung des Materials, auch wenn kein externes Magnetfeld angelegt ist (*spontane* Magnetisierung). Dieses Phänomen bezeichnet man als *Ferromagnetismus*.

Obwohl die für den Magnetismus verantwortlichen Elektronen bei den „3d-Ferromagneten“ Fe, Co und Ni in beträchtlichem Maße delokalisiert sind, benutzt man oft Modelle von lokalisierten magnetischen Momenten, da diese wesentlich leichter zu handhaben sind als Bändermodelle. Man stellt sich vor, daß am Ort jedes Atoms ein magnetisches Moment von bestimmtem Betrag fixiert ist, dessen Vektor sich mehr oder weniger frei drehen kann. Nach Heisenberg wird die Austauschwechselwirkung in diesem Fall dargestellt als Kopplung zwischen benachbarten magnetischen Momenten, welche die Parallelstellung dieser Momente energetisch begünstigt. Die gesamte Austauschenergie E_{exch} eines Systems wird also durch den folgenden sogenannten *Heisenberg-Term*

$$E_{exch} = -\frac{1}{2}\sum_{\langle i,j\rangle} J_{i,j} \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$$

beschrieben, wobei $J_{i,j}$ die zwischen den Atompositionen i und j wirksame Austauschkonstante repräsentiert und $\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$ das Skalarprodukt der Richtungsvektoren der betreffenden atomaren magnetischen Momente bezeichnet. Meist werden Austauschkopplungen nur zwischen nächsten Nachbarn berücksichtigt. Die Summation kann daher auf nächste Nachbarn beschränkt werden. Dies wird durch die Notation $\langle i,j\rangle$ ausgedrückt.

2.2 Dünne magnetische Schichten

Der theoretisch vorstellbare, einfache Fall eines unendlich ausgedehnten homogenen Materials (Massivmaterial) ist in der Natur nicht realisiert. Auf Grund der endlichen Ausdehnung aller realen Objekte gibt es immer Grenzflächen, und zwar entweder zum Vakuum (Oberflächen) oder zwischen verschiedenen Materialien. Dort ist die Translationssymmetrie gebrochen. Daher können sich physikalische Eigenschaften in der Nähe von Grenzflächen von denen des Massivmaterials unterscheiden. An Grenzflächen kann sich zum Beispiel spontan eine andere elektronische Bandstruktur einstellen als im Massivmaterial. Es kann auch die Kristallstruktur verändert sein, z.B. kann eine *Relaxation* oder eine *Rekonstruktion* vorliegen. Kristallstruktur und elektronische Struktur sind dabei nicht unabhängig voneinander. Veränderungen des einen wirken auf das andere zurück. Grundsätzlich strebt das System auf einen Gleichgewichtszustand zu, welcher im Rahmen der vorhandenen „Hemmungen“ einem Zustand mit tiefstmöglicher freier Energie entspricht. Auch *magnetische* Eigenschaften, wie die atomaren magnetischen Momente, die magnetische Anisotropie oder das magnetische Phasenübergangsverhalten, können durch die Existenz von Grenzflächen beeinflusst sein, da sie eng mit den elektronischen Eigenschaften verknüpft sind.

Bei einem makroskopischen Körper klingen physikalische Größen auf ganz bestimmten Längenskalen von dem Wert an einer Grenzfläche auf den Wert im Inneren des Körpers ab. Sind zwei Grenzflächen in einem Abstand d benachbart und ist die Abklinglänge für eine bestimmte Eigenschaft größer als d, dann spricht man bezüglich dieser Eigenschaft von einem System mit reduzierter Dimensionalität. Die Anwesenheit von Grenzflächen beeinflußt in diesem Fall die Eigenschaften des *gesamten* Systems. Einfache Beispiele sind eine Schicht, die zwischen zwei parallelen ebenen Grenzflächen im Abstand d eingeschlossen, aber in zwei Raumdimensionen unendlich ausgedehnt ist, ein Stab vom Durchmesser d, der nur in einer Raumrichtung unendlich ausgedehnt ist, oder eine Kugel mit Durchmesser d. Diese Objekte können für bestimmte physikalische Größen „zweidimensionale“, „eindimensionale“ oder „nulldimensionale“ Systeme darstellen.

Die relevanten Längenskalen sind z.B. für optische Eigenschaften die Wellenlänge des verwendeten Lichtes, für elektrische Transporteigenschaften die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger, für Kristallstruktureigenschaften die Abklinglänge von Gitterverspannungen, für elektronische Ei-

genschaften die Fermi-Wellenlänge, und für magnetische Eigenschaften z.B. die Korrelationslänge der magnetischen Ordnung, die Reichweite magnetischer Wechselwirkungen oder die Wellenlänge von Spinwellen und Spindichtewellen. Da Wellen an Grenzflächen teilweise transmittiert und teilweise reflektiert werden, kann es in Körpern, deren Ausdehnung von der Größenordnung charakteristischer Wellenlängen ist, zu Interferenzeffekten mit makroskopisch beobachtbaren Auswirkungen kommen, z.B. zu einer *oszillatorischen Zwischenschichtaustauschkopplung* [Bruno 93b].

Von *dünnen magnetischen Schichten* spricht man, wenn die Schichtdicke eine oder mehrere der charakteristischen magnetischen Längen unterschreitet oder wenn auf Grund der geringen Dicke andere physikalische Eigenschaften verändert sind, wie etwa Kristallstruktur und elektronische Struktur, was auf den Magnetismus rückwirkt. Der ideale Grenzfall einer dünnen magnetischen Schicht, also eines zweidimensionalen magnetischen Systems, wäre eine einzelne einfach-zusammenhängende Atomlage aus magnetischem Material.

Die theoretische Behandlung zweidimensionaler Systeme ist im allgemeinen einfacher als die von dreidimensionalen Systemen. Die experimentelle Untersuchung von zweidimensionalen Systemen ist jedoch deutlich aufwendiger. Sie erfordert anspruchsvollere Präparationsverfahren und wegen der geringen vorhandenen Substanzmenge auch eine sehr hohe Meßempfindlichkeit.

Seit mehreren Jahrzehnten werden dünne magnetische Schichten experimentell präpariert und untersucht. Die Herstellung erfolgt meistens durch Abscheiden eines Dampfes des magnetischen Materials auf einer Festkörperoberfläche (Substrat). Der Dampf kann durch thermisches Verdampfen oder durch Kathodenzerstäubung („Sputtern“) erzeugt werden. Im Laufe der Zeit wurden die Herstellungsverfahren erheblich weiterentwickelt. Entscheidend war die Steigerung der Materialreinheit durch Verwendung von Vakuumsystemen mit möglichst geringem Restgasdruck (→ *Ultrahochvakuum*, UHV). Damit wurde die Präparation von weitgehend adsorbatfreien Einkristalloberflächen möglich, auf welchen magnetische Materialien unter Fortsetzung der Kristallstruktur als einkristalline dünne Schicht aufwachsen können (→ *Molekularstrahlepitaxie*, MBE).

Durch Aufdampfen von Fe, Ni oder Co auf Metall-Einkristall-Oberflächen, wie z.B. W(110), W(001), Cu(001), Cu(111), Ag(001), Ag(111) oder Au(001) wurden bisher zweidimensionale ferromagnetische Systeme näherungsweise experimentell realisiert. Fe bildet auf W(110) eine thermisch stabile Monolage und sollte daher dem Ideal besonders nahe kommen [Elmers 96b].

2.3 Magnetische Momente

Eine wichtige charakteristische Größe magnetischer Materialien ist das mittlere magnetische (Dipol-) Moment pro Atom im Grundzustand, d.h. am absoluten Nullpunkt der Temperatur. Wie weiter oben bereits erläutert, ergibt sich dieses bei freien, d.h. nicht-wechselwirkenden Atomen nach den Hund’schen Regeln aus den besetzten quantenmechanischen Atomeigenzuständen. Für freie Fe-Atome erhält man einen Wert von 4 μ_B/Atom (μ_B : Bohr’sches Magneton). Wenn sich dagegen Atome zu einem Festkörper zusammenfügen, verändern sich die quantenmechanischen Zustände und mit ihnen auch die magnetischen Momente. Seit einiger Zeit werden magnetische Grundzustandsmomente von Festkörpern mit „*ab initio*“-Methoden theoretisch berechnet. Dabei ergibt sich qualitativ, daß das mittlere magnetische Moment pro Atom mit zunehmender Zahl von Nachbaratomen (Koordinationszahl) und abnehmenden interatomaren Distanzen abnehmen sollte [Lugert 92].

Für massives, bcc-kristallines Eisen beobachtet man im Experiment ein magnetisches Grundzustandsmoment von 2.216 μ_B/Atom, in relativ guter Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen. Jedes Fe-Atom hat in dieser Kristallstruktur 8 nächste Nachbarn und 6 übernächste Nachbarn. Im Vergleich dazu folgt nach der Theorie für eine hypothetische freitragende Fe(001)-Monolage ein deutlich höherer Wert von 3.2 μ_B/Atom. In diesem Fall gibt es überhaupt keine Fe-Atome im Nächste-Nachbarn-Abstand des dreidimensionalen Kristalls, allerdings hat man 4 übernächste Nachbarn. Da an Oberflächen magnetischer Schichten die Koordinationszahl gegenüber dem Massivmaterial verringert ist, ist bei dünnen magnetischen Schichten eine Erhöhung des mittleren magnetischen Moments pro Atom zu erwarten, zumindest wenn es an den Grenzflächen nicht zu einem signifikanten Ladungstransfer bzw. einer Hybridisierung der quantenmechanischen Zustände kommt.

Bei frühen experimentellen Untersuchungen wurde eine Verringerung der Grundzustandsmomente auf Werte unterhalb des Massivmaterialwerts gefunden. Es zeigte sich, daß eine gewisse Zahl von

grenzflächennahen Atomlagen kein magnetisches Moment besitzen (*„magnetisch tote Lagen“*) und man spekulierte lange Zeit über mögliche Fehler in den theoretischen Modellen. Als Ursache wurde aber schließlich eine chemische Kontamination der Proben, z.B. eine Oxidation des magnetischen Materials, erkannt. Nach Fortschritten bei der Probenpräparation hat man tatsächlich die von der Theorie vorhergesagte Erhöhung der magnetischen Momente beobachtet [Lugert 92].

Wenn die Oberfläche eines ferromagnetischen Materials mit einem nicht-ferromagnetischen Material abgedeckt wird (z.B. zum Schutz vor Oxidation) verändert sich zwar die Zahl ferromagnetischer Nachbaratome nicht, jedoch kommt es durch elektronische Wechselwirkung mit den nichtmagnetischen Atomen zu einer gewissen Beeinflussung der magnetischen Momente. Edelmetalle wie Au und Ag verändern die Elektronenstruktur von Fe nur wenig und führen nur zu einer geringen Reduktion der magnetischen Momente im Vergleich zur unbedeckten Grenzfläche. Für eine Fe(001)-Atomlage an der Grenzfläche zu Au(001) ist daher ein gegenüber dem Massivmaterialwert deutlich erhöhtes atomares magnetisches Grundzustandsmoment von 2.9 μ_B/Atom zu erwarten [Höpfl 96].

2.4 Magnetische Anisotropie

Die magnetischen Momente der Atome können sich nicht beliebig im Raum orientieren, da ihre Energie von den Winkeln abhängt, die sie mit bestimmten ausgezeichneten Richtungen einschließen. Dafür gibt es im wesentlichen zwei mögliche Ursachen. Erstens sind die magnetischen Streufelder im Außenraum eines Körpers mit einer magnetischen Feldenergie verbunden, die bei nichtkugelförmigen Körpern von der Magnetisierungsrichtung abhängt (*Formanisotropie*). Zweitens hat man eine Kopplung der Spinmomente an die Bahndrehimpulse (*Spin-Bahn-Kopplung*), und die Bahndrehimpulse sind ihrerseits wiederum an die Ladungsdichteverteilung der Elektronen im Festkörper gekoppelt. Eine Veränderung der Richtung der Spinmomente bewirkt also eine Veränderung der Ladungsdichteverteilung und damit eine Veränderung der Coulomb-Energie. Die konkrete Abhängigkeit der Gesamtenergie von der Magnetisierungsrichtung ist vor allem durch die Kristallstruktur bestimmt (*Kristallanisotropie*). An Grenzflächen erhält man wegen der Brechung der Translationssymmetrie bzw. der Wechselwirkung mit angrenzenden Materialien von unterschiedlicher Kristallstruktur zusätzliche Beiträge zur magnetischen Anisotropie. Alle diese Beiträge können sich durch den Einfluß elastischer Verspannungen verändern (*magnetoelastische Anisotropie*).

Eine theoretische Herleitung der Abhängigkeit der Gesamtenergie von der Magnetisierungsrichtung, ausgehend von fundamentalen physikalischen Prinzipien, kann im Rahmen einer sogenannten *Spindichtefunktionaltheorie* erfolgen. Solche Rechnungen erfordern jedoch einen sehr hohen Aufwand, denn es muß die Gesamtenergie des Systems mit hoher Genauigkeit bestimmt werden, um die im Vergleich dazu um viele Größenordnungen kleineren Anisotropieenergien korrekt wiederzugeben [Bruno 93a] [Blügel 99]. Häufig beschreibt man magnetische Anisotropien deshalb mit einfacheren, phänomenologischen Modellen, welche der Symmetrie des Systems angepaßt sind. Man macht z.B. für die Richtungsabhängigkeit der Energie einen Potenzreihenansatz in Polarkoordinaten oder kartesischen Koordinaten und betrachtet vor allem die niedrigsten Terme der Entwicklung. Dabei spielen *uniaxiale* und *kubische* magnetische Anisotropien für die Praxis eine besonders große Rolle.

Bei der *uniaxialen* magnetischen Anisotropie ist *eine* bestimmte Achse im Material ausgezeichnet. Dies kann z.B. die Schichtnormale sein oder eine bestimmte Kristallachse innerhalb der Schichtebene. Der von der Magnetisierungsrichtung abhängige Beitrag zur Volumendichte der Gesamtenergie, die sogenannte *Anisotropieenergiedichte* ε, weist in diesem Fall folgende Abhängigkeit vom Winkel θ zwischen der Magnetisierungsrichtung und dieser Achse auf:

$$\varepsilon = K_u \cdot (\sin\theta)^2$$

Die Proportionalitätskonstante K_u wird als *uniaxiale Anisotropiekonstante* bezeichnet. Die Richtungen parallel und antiparallel zur ausgezeichneten Achse sind gleichwertig. Wenn $K_u > 0$ ist, dann ist die Anisotropieenergie minimal, wenn die Magnetisierung parallel zur Achse orientiert ist und maximal, wenn sie senkrecht dazu steht. In diesem Fall hat man also eine „magnetisch leichte Achse“ und senkrecht dazu eine „magnetisch schwere Ebene“. Wenn $K_u < 0$ ist, dann ist die Anisotropieenergie maximal, wenn die Magnetisierung parallel zur Achse orientiert ist und minimal, wenn sie senkrecht dazu steht. Man hat dann eine „magnetisch schwere Achse“ und senkrecht dazu eine „magnetisch leichte Ebene“.

Bei der *kubischen* magnetischen Anisotropie existieren *drei* zueinander senkrechte gleichwertige ausgezeichnete Achsen. Die Anisotropieenergiedichte ε als Funktion der Richtungscosinus α_x , α_y , α_z des Magnetisierungsvektors in dem durch die ausgezeichneten Achsen vorgegebenen kartesischen Koordinatensystem ist durch folgende Formel gegeben:

$$\varepsilon = K_1 \cdot (\alpha_x^2\alpha_y^2 + \alpha_y^2\alpha_z^2 + \alpha_z^2\alpha_x^2) + K_2 \cdot (\alpha_x^2\alpha_y^2\alpha_z^2) + \ldots$$

Wiederum sind die ausgezeichneten Achsen je nach Vorzeichen der *kubischen Anisotropiekonstanten* K_1, K_2, ... entweder magnetisch leichte Achsen oder magnetisch schwere Achsen.

Unidirektionale magnetische Anisotropien kommen nur bei sehr speziellen Materialkombinationen vor, z.B. in „spin valve"-Systemen, verursacht durch den „exchange bias"-Effekt. In diesem Fall ist *eine* bestimmte *Richtung* ausgezeichnet, d.h. alle anderen Richtungen sind entweder mit einer größeren oder einer kleineren Anisotropieenergiedichte verbunden. Die Richtung antiparallel zur ausgezeichneten Richtung weist dabei den größten Unterschied in der Anisotropieenergiedichte auf.

Die magnetische Anisotropie wird üblicherweise untersucht durch Auswertung der *Magnetisierungsarbeit* W_{mag} bezüglich mehrerer Richtungen. Unter der Magnetisierungsarbeit versteht man die Energie, welche pro Volumeneinheit aufgewendet werden muß, um eine Probe durch Anlegen eines Magnetfeldes H in der gewünschten Richtung magnetisch zu sättigen. Sie ergibt sich als Integral über das Magnetfeld H nach der zur Magnetfeldrichtung parallelen Komponente der Magnetisierung, $M_{||}$, wobei sich die Integration von $M_{||}$=0 bis zur Sättigungsmagnetisierung M_S erstreckt:

$$W_{mag} = \int_{M_{\|}=0}^{M_S} H \, dM_{\|}$$

Die magnetische Anisotropieenergiedichte ε entspricht dem richtungsabhängigen Anteil der Magnetisierungsarbeit. Die verschiedenen Anisotropiekonstanten können daher durch numerische Anpassung der oben angegebenen Gesetze für die Winkelabhängigkeit der Anisotropieenergiedichte ermittelt werden.

Bei manchen Beiträgen zur magnetischen Anisotropie dünner Schichten ist die Ursache im gesamten Volumen des magnetischen Materials verteilt (*Volumenanisotropiebeiträge*). Bei anderen Beiträgen ist die Ursache an den Grenzflächen lokalisiert (*Grenzflächenanisotropiebeiträge*). In realen Proben können beide Arten von Beiträgen gleichzeitig vorliegen. Dies gilt sowohl für uniaxiale wie auch für kubische magnetische Anisotropien, welche ebenfalls gleichzeitig vorliegen können. Die in den obigen Formeln auftretenden Anisotropiekonstanten werden deshalb auch als *effektive Anisotropiekonstanten* (K_u^{eff}, K_1^{eff}, ...) bezeichnet. Gemäß folgender Formeln können diese effektiven Anisotropiekonstanten in eine *Volumenanisotropiekonstante* K_u^V bzw. K_1^V, ... und eine *Grenzflächenanisotropiekonstante* K_u^S bzw. K_1^S, ... zerlegt werden, wobei A den Flächeninhalt der Grenzfläche und V das Volumen der ferromagnetischen Schicht bezeichnet:

$$K_u^{eff} = K_u^V + \frac{A}{V} \cdot K_u^S \quad , \quad K_1^{eff} = K_1^V + \frac{A}{V} \cdot K_1^S \quad , \quad \ldots$$

Wenn der Flächeninhalt der Grenzfläche gleichgesetzt werden kann mit der Substratfläche, dann ist der Quotient V/A identisch mit der nominellen Schichtdicke d und man kann schreiben:

$$K_u^{eff} = K_u^V + \frac{1}{d} K_u^S \quad , \quad K_1^{eff} = K_1^V + \frac{1}{d} K_1^S \quad , \quad \ldots$$

An Hand der Abhängigkeit der effektiven Anisotropiekonstanten von der Schichtdicke d kann man also die Volumen- und Grenzflächen-Anisotropiebeiträge unterscheiden. Genaugenommen ist zu beachten, daß dünne Schichten im allgemeinen zwei nicht-gleichwertige Grenzflächen aufweisen, nämlich eine „untere" zum Substrat und eine „obere" zum Vakuum bzw. zur Abdeckschicht. Daher setzen sich K_u^S bzw. K_1^S, ... eigentlich additiv aus zwei Werten zusammen. Diese können aber nicht ohne weiteres getrennt voneinander bestimmt werden.

Als Funktion der Schichtdicke und/oder der Temperatur kann es in dünnen Schichten zu einem Vorzeichenwechsel der effektiven Anisotropiekonstanten kommen. Dies kann dazu führen, daß sich die Richtung der Spontanmagnetisierung ändert. Man spricht in diesem Fall von einem *Spin-Reorientierungsübergang*.

Zur Vereinfachung teilt man magnetische Systeme bezüglich ihrer magnetischen Anisotropie grob in drei Klassen ein, die durch folgende Modelle repräsentiert werden: Das *Ising-Modell* beschreibt die Situation, daß sich die atomaren magnetischen Momente nur parallel oder antiparallel zu einer bestimmten Richtung einstellen können. Man spricht in diesem Fall auch davon, daß die „Spindimension" gleich 1 ist. Diese Situation entspricht einer unendlich starken uniaxialen magnetischen Anisotropie, deren Achse eine *leichte* Achse ist. Das *XY-Modell* repräsentiert magnetische Momente, die sich in einer Ebene frei drehen können (Spindimension = 2). Dies entspricht einer unendlich starken uniaxialen magnetischen Anisotropie, deren Achse eine *schwere* Achse ist. Das *Heisenberg-Modell* verkörpert schließlich den isotropen Fall, d.h. die freie Orientierbarkeit der magnetischen Momente in allen drei Raumrichtungen (Spindimension = 3).

Aufgabe einer theoretischen Behandlung magnetischer Materialien ist ganz allgemein die Herleitung der Abhängigkeit des Vektorfeldes der Magnetisierung, $\vec{M}(\vec{r})$, von einem äußeren Magnetfeld $\vec{H}(\vec{r})$ und der Temperatur T. Die Berechnung dieses Zusammenhanges „aus fundamentalen Prinzipien" ist eine große Herausforderung und bisher nicht allgemein gelungen. Man versucht daher, durch „vernünftige Näherungen" die Situation zu vereinfachen. Normalerweise werden die externen Felder als homogen vorausgesetzt, so daß bezüglich $\vec{H}$ die Abhängigkeit vom Ortsvektor $\vec{r}$ entfällt. Da dünne magnetische Schichten in ihrer Form einem oblaten Rotationsellipsoid nahekommen, kann man meist auch die Magnetisierung als homogen annehmen, zumindest wenn die magnetische Anisotropie homogen ist und sich keine *magnetische Domänenstruktur* bildet. Im Gegensatz zu polykristallinen Schichten ist bei einkristallinen Schichten mit einer homogenen magnetischen Anisotropie zu rechnen. Allerdings kann bei einkristallinen Schichten durchaus eine magnetische Domänenstruktur auftreten. Dies gilt insbesondere, wenn eine magnetische Anisotropie mit leichtester Richtung senkrecht zur Schichtebene existiert. In diesem Fall ist eine Orientierung der Magnetisierung außerhalb der Schichtebene energetisch bevorzugt. Eine homogene Magnetisierung in dieser Richtung wäre jedoch im Außenraum der Probe mit einem beträchtlichen magnetischen Streufeld sowie im Inneren des magnetischen Materials mit einem sogenannten *entmagnetisierenden Feld* verbunden. Es bildet sich eine Domänenstruktur aus, wenn der damit verbundene Abbau der Feldenergie den Aufwand an Domänenwandenergie (Austauschenergie und Anisotropieenergie) überwiegt. Liegt dagegen die Magnetisierung spontan in der Schichtebene, so ist das magnetische Streufeld bzw. das entmagnetisierende Feld schwach und es steht weniger Energie zur Bildung von Domänengrenzen zur Verfügung [Hubert 98].

2.5 Magnetischer Phasenübergang

Zur Beschreibung eines magnetischen Phasenübergangs geht man aus von der Gibbs'schen freien Enthalpie G als Funktion der Temperatur T und des Magnetfeldes H. Es gilt

$$G(T,H) = U - TS - MH$$

wobei U die innere Energie und S die Entropie bezeichnet. Nach der Konvention von Ehrenfest spricht man von einem *Phasenübergang erster Ordnung*, wenn der Ordnungsparameter

$$M := -\left(\frac{\partial G}{\partial H}\right)_T$$

d.h. die Magnetisierung, einen Sprung aufweist. Von einem *Phasenübergang zweiter Ordnung* spricht man dagegen, wenn M stetig aber nichtanalytisch verschwindet und die magnetische Suszeptibilität

$$\chi := -\left(\frac{\partial^2 G}{\partial H^2}\right)_T$$

singulär wird.

Abb. 2.1 zeigt ein schematisches Zustandsdiagramm eines idealisierten ferromagnetischen Materials als Funktion der Temperatur T und des externen Magnetfeldes H. Für H=0 tritt als Funktion von T bei der sogenannten Curietemperatur T_C ein Phasenübergang zweiter Ordnung auf. Als Funktion von H hat man für $T<T_C$ bei H=0 einen Phasenübergang erster Ordnung.

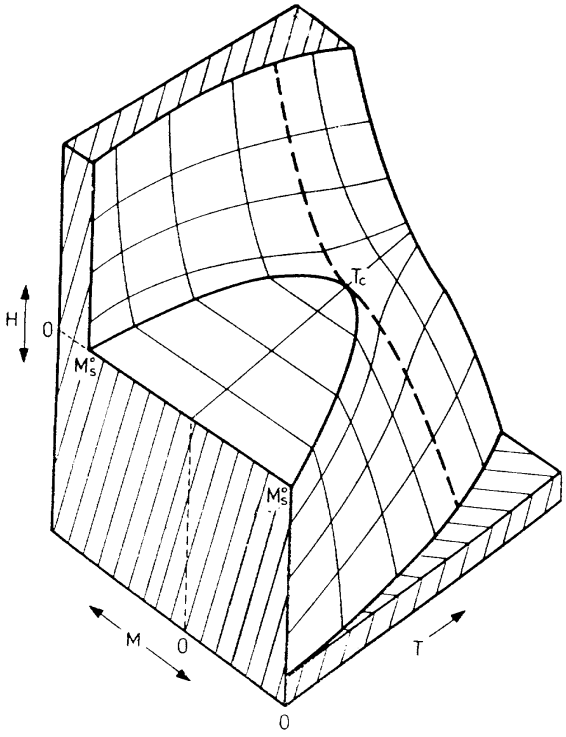

Abb. 2.1 : Zustandsdiagramm eines idealisierten Ferromagneten

Bereits lange bevor die Austauschwechselwirkung als tiefere Ursache des Ferromagnetismus erkannt wurde, postulierte P. Weiss die Existenz eines „Molekularfeldes“, d.h. eines Magnetfeldes im Inneren des ferromagnetischen Materials, welches proportional ist zur Magnetisierung und betragsmäßig typische Laborfelder um Größenordnungen übersteigt. Er war damit in der Lage, das Aufteten eines magnetischen Phasenübergangs zu deuten. Es wurden jedoch bald Diskrepanzen dieser *Molekularfeldtheorie (MFT)* zu experimentellen Ergebnissen beobachtet und zwar bereits für dreidimensionale Ferromagnete, also nicht erst bei dünnen Schichten. Es zeigte sich, daß bereits bei recht tiefen Temperaturen ($T << T_C$) Spinwellen berücksichtigt werden müssen, die zu einer Absenkung der mittleren Magnetisierung gegenüber dem aus der Molekularfeldtheorie folgenden Wert führen. In der Nähe der Curietemperatur sind darüber hinausgehende räumliche Inhomogenitäten der Magnetisierung zu beachten, welche zeitlich fluktuieren (*kritische Fluktuationen*).

L. Landau stellte eine phänomenologische Theorie auf, wonach bei Phasenübergängen alle relevanten Größen, wie z.B. Magnetisierung M, magnetische Suszeptibilität χ, spezifische Wärme C, Korrelationslänge ξ, in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes (d.h. H = 0) als Funktion der Temperatur T in einer hinreichend kleinen Umgebung der kritischen Temperatur T_C einem Potenzgesetz folgen sollten (*Landau-Theorie*) [Gebhardt 80]:

$$M(T) = M_0 \cdot (1 - T/T_C)^{\beta} \quad \text{für} \quad T < T_C$$

$$\chi(T) = \chi_0^{+} \cdot (T/T_C - 1)^{-\gamma} \quad \text{für} \quad T > T_C$$

$$\chi(T) = \chi_0^{-} \cdot (1 - T/T_C)^{-\gamma} \quad \text{für} \quad T < T_C$$

$$C(T) = C_0^{+} \cdot (T/T_C - 1)^{-\alpha} \quad \text{für} \quad T > T_C$$

$$C(T) = C_0^{-} \cdot (1 - T/T_C)^{-\alpha} \quad \text{für} \quad T < T_C$$

$$\xi(T) = \xi_0^+ \cdot (T/T_C - 1)^{-\nu} \quad \text{für} \quad T > T_C$$
$$\xi(T) = \xi_0^- \cdot (1 - T/T_C)^{-\nu} \quad \text{für} \quad T < T_C$$

Außerdem sollte für die Abhängigkeit der Magnetisierung vom Magnetfeld H in einem kleinen Feldintervall um H = 0 gelten (*kritische Isotherme*):

$$M(H) \propto H^{1/\delta} \quad \text{für} \quad T = T_C$$

Für die in diesen Potenzgesetzen auftretenden *kritischen Exponenten* $\alpha,\beta,\gamma,\delta,\nu$ ergeben sich im Rahmen der Molekularfeldtheorie ganz bestimmte Werte (siehe Tabelle weiter unten), welche jedoch zum Teil nur eine ungenügende Beschreibung experimenteller Daten erlauben. Während die Molekularfeldtheorie dimensionsunabhängig formuliert wurde, ist bei einer genaueren Theorie die Raum- und Spindimension zu berücksichtigen.

Ein großer Schritt in dieser Richtung war die exakte analytische Herleitung der Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung im Rahmen des *zweidimensionalen Ising-Modells* (vgl. Seite 9) durch Onsager und Yang [Onsager 44] [Yang 52]:

$$M_{H=0}(T) = [\, 1 - \sinh^{-4}(2J / k_B T) \,]^{1/8}$$

wobei der Zusammenhang zwischen der Austauschkonstanten J und der Curietemperatur T_C durch die Beziehung

$$k_B \cdot T_C = 2 \cdot [\ln(1+\sqrt{2})]^{-1} \cdot J \approx 2.2692 \cdot J$$

bestimmt ist.

Seitdem ist es noch nicht gelungen, weitere wichtige Modelle *exakt* zu lösen. Es wurden jedoch leistungsfähige numerische Verfahren entwickelt, vor allem im Rahmen der sogenannten *Renormierungsgruppentheorie*, welche dem fraktalen Charakter der kritischen Fluktuationen besonders angepaßt ist [Wilson 79]. Es zeigte sich dabei, daß die kritischen Potenzgesetze der Landau-Theorie durchaus eine gute analytische Näherung der numerischen Resultate liefern, wenn für die kritischen Exponenten Werte eingesetzt werden, welche von denen der Molekularfeldtheorie abweichen. Die folgende Tabelle gibt einen Überblick. Interessanterweise ergibt sich im Rahmen der Renormierungsgruppentheorie, daß für Raumdimensionen $d \geq 4$ die kritischen Exponenten der Molekularfeldtheorie korrekt sind. Dies hat allerdings keine praktische Bedeutung.

Modell	Ausdehnung	α	β	γ	δ	ν
MFT	unendlich	0	0.5	1	3	0.5
2D-Ising	unendlich	0	0.125	1.75	15	1
2D-XY	unendlich	keine spontane ferromagnetische Ordnung bei von Null verschiedener Temperatur				
2D-XY	endlich		0.23			
2D-Heisenberg	unendlich	keine spontane ferromagnetische Ordnung bei von Null verschiedener Temperatur				
3D-Ising	unendlich	0.125	0.325	1.240	4.815	0.630
3D-XY	unendlich	0.02	0.346	1.316	4.809	0.669
3D-Heisenberg	unendlich	-0.14	0.365	1.386	4.802	0.705

Auch für die sogenannten *kritischen Amplitudenverhältnisse* werden Vorhersagen angegeben. Beim 3D-Ising-Modell sollte z.B. gelten $\chi_0^+/\chi_0^- = 5$ und beim 2D-Ising-Modell $\chi_0^+/\chi_0^- = 38$.

Besondere Beachtung erfuhr das im Jahre 1966 streng bewiesene *Theorem von Mermin und Wagner* [Mermin 66], welches besagt, daß zweidimensionale magnetische Systeme bei von Null verschiedener Temperatur keine spontane magnetische Ordnung aufweisen, wenn sie erstens isotrop sind (*Heisenberg-Modell*, vgl. Seite 9) und zweitens nur kurzreichweitige magnetische Wechselwirkungen vorliegen, d.h. wenn die Wechselwirkungsenergie stärker als mit der dritten Potenz des Abstandes abklingt (dies sollte für die *direkte* Austauschwechselwirkung gelten, aber z.B. nicht für

die Dipol-Dipol-Wechselwirkung oder *indirekte* Austauschwechselwirkungen). Das Mermin-Wagner-Theorem stimulierte das Interesse an experimentellen Untersuchungen zu magnetischen Dünnschichtsystemen.

Zum Beispiel untersuchten Pappas et al. das Verhalten von fcc-Fe auf Cu(100) in der Nähe des Spin-Reorientierungsübergangs, d.h. in der Nähe des Vorzeichenwechsels der effektiven Anisotropiekonstanten der uniaxialen magnetischen Anisotrope mit Achse senkrecht zur Schichtebene [Pappas 92]. Für eine bestimmte Fe-Schichtdicke verschwindet in einem gewissen Temperaturintervall die über makroskopische Distanzen gemittelte magnetische Remanenz in allen Raumrichtungen. Die Autoren interpretierten dies als Folge des Mermin-Wagner-Theorems, da sich der auf Spin-Bahn-Kopplung beruhende Grenzflächenanisotropiebeitrag und der Formanisotropiebeitrag im untersuchten Temperaturbereich gegenseitig weitgehend kompensieren. Hochaufgelöste Domänenbeobachtungen mit SEMPA (Scanning Electron Microscopy with Polarization Analysis) haben jedoch gezeigt, daß dies auf die Entstehung sehr kleiner magnetischer Streifendomänen zurückgeht, wobei die magnetische Ordnung selbst erhalten bleibt [Allenspach 94]. Mittlerweile wird allgemein davon ausgegangen, daß die Bedeutung des Mermin-Wagner-Theorems für die Praxis gering ist, da seine Voraussetzungen meist nicht erfüllt sind.

Das *zweidimensionale XY-Modell* impliziert die Existenz einer magnetischen Anisotropie (vgl. Seite 9) und erfüllt daher nicht die Voraussetzungen, für welche das Mermin-Wagner-Theorem ursprünglich formuliert wurde. Theoretische Überlegungen haben jedoch gezeigt, daß auch ein solches System in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes bei keiner von Null verschiedenen Temperatur eine spontane Magnetisierung aufweisen kann, wenn es unendlich ausgedehnt ist [Berezinski 71]. Allerdings kommt es trotzdem bei einer bestimmten kritischen Temperatur T_C zu einer Divergenz der magnetischen Suszeptibilität [Kosterlitz 73] [Kosterlitz 74]. Dies wird als *Kosterlitz-Thouless-Übergang* bezeichnet. Für $T < T_C$ sollten sogenannte *Vortices* existieren, d.h. wirbelförmige räumliche Verteilungen der Magnetisierung, welche so beschaffen sind, daß die über ein unendlich ausgedehntes System gemittelte spontane Magnetisierung verschwindet. Die Ausdehnung der Vortices kann allerdings von der Größenordnung Kilometer sein. Deshalb kann sich in Proben, welche laborübliche Abmessungen besitzen, die Magnetisierung nicht wegmitteln. Die Magnetisierung kann sogar in guter Näherung homogen sein. Für die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung sollte das kritische Potenzgesetz der Landau-Theorie gelten und zwar mit einem „effektiven“ kritischen Exponenten $\beta = 3\pi^2/128 \approx 0.23$ [Bramwell 93] [Bramwell 94].

Die Ergebnisse der Renormierungsgruppentheorie erwiesen sich als verträglich mit der sogenannten *Universalitätshypothese* [Griffiths 70], [Wilson 71]. Diese besagt, daß die kritischen Exponenten und die kritischen Amplitudenverhältnisse nur abhängen von

- der Raumdimension des Systems
- der Anzahl der Vektorkomponenten des Ordnungsparameters (d.h. z.B. der Spindimension)
- der Reichweite der mikroskopischen Wechselwirkungen
- Kristalldefekten, falls diese die Korrelationslänge begrenzen

Die Symmetrieklasse des Kristallgitters und die *Stärke* der magnetischen Wechselwirkungen sollte keine Rolle spielen.

Die Universalitätshypothese besagt somit, daß das magnetische Verhalten eines jeden defektfreien magnetischen Systems, in welchem kurzreichweitige magnetische Wechselwirkungen dominieren, in der Nähe des magnetischen Phasenübergangs entweder mit dem Ising-Modell, dem XY-Modell oder dem Heisenberg-Modell zu beschreiben sein sollte. Da ein Heisenberg-Modell in zwei Raumdimensionen nach dem Mermin-Wagner-Theorem keine langreichweitige magnetische Ordnung erlaubt, erwartet man sogar, daß zweidimensionale Ferromagnete sich grundsätzlich entweder „Ising-artig“ oder „XY-artig“ verhalten. Wenn langreichweitige Wechselwirkungen wie die Dipol-Dipol-Wechselwirkung nicht vernachlässigbar sind, gestattet die Universalitätshypothese allerdings Abweichungen von den Vorhersagen dieser Modelle. Im Falle von dominierenden Dipol-Wechselwirkungen sollte die Molekularfeldtheorie in guter Näherung zutreffen.

Die Ergebnisse der Renormierungsgruppentheorie sind auch mit der sogenannten *Skalenhypothese* verträglich. Danach sollte in der Nähe von T_C folgende „Skalengleichung“ gelten [Back 95]:

$$\frac{M(t,H)}{|t|^{\beta}} = F_{\pm}\left(\frac{H}{|t|^{\beta+\gamma}}\right)$$

$F\pm$ ist dabei eine nicht-universelle Funktion („Skalenfunktion“) und $t := 1\text{-}T/T_C$. Die Indizes „+“ und „-“ unterscheiden die beiden Fälle $t > 0$ und $t < 0$, für welche die Skalenfunktion verschieden sein kann.

Aus der Skalenhypothese ergeben sich folgende Beziehungen zwischen den kritischen Exponenten, die sogenannten *Skalenrelationen*. Somit sollte es nur *zwei* unabhängige kritische Exponenten geben.

$$\gamma = \beta(\delta - 1) \qquad \text{(Widom-Relation)}$$

$$\alpha + 2\beta + \gamma = 2 \qquad \text{(Rushbrooke-Relation)}$$

$$d\nu = 2\beta + \gamma \qquad \text{(Josephson-Relation)}$$

d : Raumdimension

Beim Vergleich experimenteller Daten mit theoretischen Modellen des Phasenübergangsverhaltens ist zu beachten, daß es im Temperaturbereich $T < T_C$ mehrere Mechanismen gibt, welche bei Veränderung eines externen Magnetfeldes zu einer Änderung der Magnetisierung führen können:

- Paraeffekt
- Drehprozesse gegen magnetische Anisotropien
- Domänennukleation und Domänenwandverschiebung

Die differentielle magnetische Nullfeld-Suszeptibilität χ, für welche weiter oben ein kritisches Potenzgesetz angegeben wurde, bezieht sich ausschließlich auf den Paraeffekt, d.h. auf die Feldabhängigkeit des Absolutbetrages der Magnetisierung innerhalb einer einzelnen magnetischen Domäne, welche dadurch zustande kommt, daß das Magnetfeld thermische Fluktuationen der Magnetisierung hemmt. Daher ist es bei der experimentellen Bestimmung dieser Suszeptibilität notwendig, sicherzustellen, daß Drehprozesse gegen magnetische Anisotropien sowie Domänenprozesse nicht zum Meßsignal beitragen.

Mit experimentellen Methoden kann meist nur *eine* Komponente des Magnetisierungsvektors bezüglich einer bestimmten Richtung gemessen werden. Eine Drehung des Magnetisierungsvektors wird sich daher auf das Meßsignal auswirken. Kontinuierliche Drehungen können vermieden werden, wenn die ausgezeichneten Richtungen der magnetischen Anisotropie im gesamten Material einheitlich sind und man das externe Magnetfeld parallel zur leichtesten Richtung anlegt. Durch Messung der Magnetisierungskomponente parallel zu dieser Richtung kann außerdem der *Betrag* der Magnetisierung erfaßt werden. Zu beachten ist jedoch, daß es zu einem plötzlichen Umklappen des Magnetisierungsvektors kommen wird, wenn das Magnetfeld antiparallel zu diesem anliegt und betragsmäßig die sogenannte effektive Anisotropiefeldstärke H_K^{eff} überschreitet. Die magnetische Anisotropie führt also zu einer *magnetischen Hysterese*.

Durch Bildung von parallel zum Magnetfeld magnetisierten Domänen und nachfolgenden Domänenwandverschiebungen kann das soeben beschriebene Umklappen der Magnetisierung auch schon bei Magnetfeldern deutlich unterhalb der Anisotropiefeldstärke stattfinden. Im einfachsten Fall finden solche Prozesse nur in unmittelbarer Nähe einer bestimmten Koerzitivfeldstärke $H_C < H_K^{eff}$ statt. Dies gilt für Fe/GaAs(001) in guter Näherung, wie im experimentellen Teil gezeigt wird. Wenn man also die ausschließlich durch den Paraeffekt bedingte Suszeptibilität messen möchte muß man darauf achten, daß bei der dazu notwendigen Magnetfeldvariation diese Koerzitivfeldstärke nicht überschritten wird. Dies ist in der Nähe von T_C besonders kritisch, da H_C bei Annäherung an T_C monoton abnimmt.

Nun soll der Einfluß einer magnetischen Anisotropie auf die Curietemperatur betrachtet werden. Bei Bruno finden sich folgende theoretischen Ergebnisse für das Verhalten einer idealen Monolage aus potentiell ferromagnetischem Material [Bruno 92]:

1) Wenn eine uniaxiale magnetische Anisotropie mit Achse senkrecht zur Schichtebene vorliegt, wobei diese Achse eine *leichte* Achse ist, dann führt dies zu einer Lücke im Spinwellenspektrum bei niedrigen Energien. Daher ist unterhalb einer von Null verschiedenen Curie-Temperatur T_C eine ferromagnetische Ordnung möglich. Die langreichweitigen Dipolkopplungen sind in diesem Fall für das Zustandekommen der magnetischen Ordnung unwesentlich und bewirken nur geringfügige Modifikationen des magnetischen Verhaltens. T_C berechnet sich zu:

$$T_C \approx \frac{4\pi(S+1)}{3}\frac{2JS}{\ln(4\pi \cdot 2JS/\Delta)}$$

$$\text{mit} \quad \Delta = 2\mu_B H_K^{eff} \quad \text{und} \quad H_K{}^{eff} = 2K_u / M_S$$

J : Austauschkonstante , S : Spinquantenzahl
K_u : uniaxiale Anisotropiekonstante , M_S : Spontanmagnetisierung

2) Wenn eine uniaxiale magnetische Anisotropie mit Achse senkrecht zur Schichtebene vorliegt, wobei diese Achse eine ***schwere*** Achse ist, dann können die Spins in der Schichtebene praktisch frei rotieren und es tritt keine Lücke im Spinwellenspektrum auf. Die magnetische Anisotropie allein kann also in diesem Fall die magnetische Ordnung bei einer von Null verschiedenen Temperatur nicht stabilisieren. Hier sind nun die Dipolwechselwirkungen entscheidend:

$$T_C \approx \frac{4\pi(S+1)}{3}\frac{2JS}{\ln(4\pi \cdot 2JS/\Delta')}$$

$$\text{mit} \quad \Delta' \approx 2\mu_B \frac{H_d}{8}\left(\frac{2\mu_B|H_K^{eff}|}{2JS}\right)^{1/2}$$

H_d : entmagnetisierendes Feld

In diese Formeln ist im Prinzip die für Temperatur $T = T_C$ gültige Anisotropiekonstante K_u einzusetzen. In diesem Zusammenhang ist es interessant, daß oft argumentiert wurde, magnetische Anisotropiekonstanten würden mit einer Potenz der spontanen Magnetisierung M_S skalieren [Elmers 99]. Sie sollten demnach z.B. proportional sein zu $(M_S)^m$ mit $m \geq 4$. Wenn dies richtig ist, dann müßte die magnetische Anisotropie für Temperaturen $T \geq T_C$ verschwinden. In jüngerer Zeit werden allerdings Zweifel an diesen Argumenten vorgetragen. In einzelnen Fällen wurde auch bereits über das Fortbestehen der magnetischen Anisotropie oberhalb T_C berichtet [Elmers 99].

2.6 Das Einsetzen des Ferromagnetismus bei dünnen Schichten

Beim Wachstum einer Schicht aus potentiell ferromagnetischem Material ist erst ab einer bestimmten *nominellen Bedeckung*, d.h. einer bestimmten pro Flächeneinheit abgeschiedenen Anzahl von Atomen, mit ferromagnetischem Verhalten zu rechnen. Bei den meisten in der Literatur diskutierten Experimenten wurde dieses *„Einsetzen des Ferromagnetismus“* bei Zimmertemperatur untersucht. Von fundamentalerer Bedeutung ist allerdings das Einsetzen einer langreichweitigen ferromagnetischen Ordnung im Grundzustand, d.h. diejenige nominelle Bedeckung, bei welcher die Curietemperatur von Null verschieden wird. Um die Ursache für dieses Phänomen zu verstehen, ist es wichtig, sich näher mit der Entwicklung der Schichtstruktur während des Wachstumsprozesses zu beschäftigen.

Schichten wachsen im Anfangsstadium in Form von Inseln. Wenn innerhalb der einzelnen Inseln das Stoner-Kriterium erfüllt ist, dann sorgt die Austauschkopplung bei hinreichend niedriger Temperatur für eine Parallelstellung der atomaren magnetischen Momente. In diesem Fall kann man jeder Insel ein magnetisches Gesamtmoment („Supermoment“) zuordnen. Für das Ensemble von Inseln erwartet man ein Verhalten, das mit Modellen des Magnetismus bei großen Spinquantenzahlen zu beschreiben ist („Supermagnetismus“). Wenn magnetische Wechselwirkungen zwischen den Inseln vernachlässigbar sind, sollte sich ein *Superparamagnetismus* ergeben. Die Abhängigkeit der Magnetisierung M von einem externen Magnetfeld H wird in diesem Fall durch eine Langevin-Funktion

$$M(H) = M_S \cdot \left[\coth\left(\frac{\mu \cdot H}{k_B T}\right) - \left(\frac{\mu \cdot H}{k_B T}\right)^{-1}\right]$$

beschrieben, welche sich im Rahmen einer Näherung für große Spinquantenzahlen aus der Brillouin-Funktion ergibt [Bean 59]. M_S bezeichnet dabei die Sättigungsmagnetisierung, k_B die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur und μ das magnetische Moment pro Insel. Man kann schreiben $\mu = n_{eff} \cdot \mu_B$ mit der *effektiven Magnetonenzahl* n_{eff} und dem Bohr'schen Magneton μ_B.

Bei superparamagnetischen Systemen erfolgt nach einer magnetischen Sättigung die Relaxation in den unmagnetischen Zustand in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes exponentiell mit der Zeit t gemäß

$$M(t) = M_0 \cdot e^{-t/\tau}$$

(*„superparamagnetische Relaxation"*). Die Zeitkonstante τ ist abhängig vom Verhältnis zwischen der Anisotropieenergie KV der Supermomente und der thermischen Energie k_BT [Park 95]:

$$\tau = \tau_0 \cdot \exp(KV / k_BT) \quad \text{mit} \quad \tau_0 \approx 10^{-9} \text{ sec}$$

Je größer das Volumen V der Inseln und je tiefer die Temperatur T, desto länger ist die Relaxationszeit τ. Falls die Relaxationszeit größer ist als die charakteristische Zeit, über welche sich eine magnetische Messung erstreckt, dann kann das Meßergebnis dem ähneln, was man für einen ferromagnetischen Zustand erhalten würde. Man spricht in diesem Fall von einer *blockierten* superparamagnetischen Relaxation.

Ferromagnetismus im eigentlichen Sinne tritt nur auf, wenn ein unendlich ausgedehntes System von gekoppelten magnetischen Momenten vorliegt. Grundsätzlich kann man erwarten, daß die magnetostatische Dipol-Dipol-Kopplung zwischen den in-sich ferromagnetischen Inseln eine ferromagnetische Ordnung im gesamten System von Inseln ermöglicht (*dipolarer Superferromagnetismus*) [Hauschild 98a]. Die Dipolkopplung ist jedoch relativ schwach und sollte, wenn die einzelnen Inseln nicht sehr groß sind, nur zu einer recht niedrigen Curietemperatur führen. Analog könnte man sich auch vorstellen, daß indirekte Austauschkopplungen, die von Leitungselektronen im Substrat und/oder einer Abdeckschicht vermittelt werden, bei tiefen Temperaturen eine magnetische Ordnung in dem System von Inseln hervorrufen. Dies braucht allerdings, wie auch im Fall der Dipolkopplung, nicht zwingend eine *ferro*magnetische Ordnung zu sein. Auch *Superantiferromagnetismus* [Hauschild 98b] oder *Superspinglasverhalten* sind denkbar. Diese Aspekte wurden jedoch bisher nur wenig untersucht.

Die stärksten aller magnetischen Wechselwirkungen sind die direkten Austauschkopplungen. Daher erwartet man von diesen den stärksten Einfluß auf die Curietemperatur. Da sie kurzreichweitig sind, setzen sie zwischen Inseln erst dann ein, wenn sich die Inseln berühren. Beim Schichtwachstum werden die Kondensationskeime durch Anlagerung von Atomen aus der Dampfphase größer und der Abstand zwischen ihnen nimmt ab. Immer mehr dieser Inseln werden sich berühren und wachsen zusammen (*Koaleszenz*). Bei einer bestimmten nominellen Bedeckung bildet sich ein unendlich ausgedehntes Netzwerk von zusammengewachsenen Inseln (morphologische *Perkolation*). Dies ist dann gleichzeitig auch ein unendlich ausgedehntes System von direkt austauschgekoppelten Inseln, welches sich ferromagnetisch verhalten sollte. Mit fortschreitendem Schichtwachstum werden in diesem Netzwerk immer mehr Brücken entstehen und immer mehr isolierte Inseln werden in das Netzwerk einbezogen. Dabei steigt die mittlere Austauschkopplungsenergie pro Atom und folglich sollte auch die Curietemperatur entsprechend ansteigen. Ein in Experimenten bei sukzessive zunehmender nomineller Bedeckung beobachteter plötzlicher starker Anstieg der Curietemperatur kann also durch die Perkolation der direkten Austauschkopplungen während der Koaleszenz der Inseln bewirkt werden. Diese Deutung wurde z.B. im Falle von Co-Schichten auf Cu(001) vorgeschlagen [Bovensiepen 99].

Eine theoretische Behandlung von Perkolationsphänomenen kann im Rahmen von rein mathematischen Modellen erfolgen, d.h. unabhängig von einem konkreten Beispiel aus der realen Welt [Stinchcombe 83] [Stauffer 95]. Man geht aus von Punkten auf einem unendlich ausgedehnten Gitter und unterscheidet zwei Fälle. Bei der sogenannten *„site"-Perkolation* nimmt man an, daß jeder Gitterpunkt einen von zwei Zuständen annehmen kann, z.B. daß er mit einem Objekt (z.B. einem magnetischen Moment) besetzt ist oder nicht, sowie, daß zwischen allen unmittelbar benachbarten Objekten ein Pfad bzw. eine Wechselwirkung existiert. Bei der *„bond"-Perkolation* ordnet man jeder Verbindungslinie zwischen zwei nächsten Nachbarpunkten einen von zwei Zuständen zu, z.B. nimmt man an, daß an jedem Punkt ein Objekt existiert, aber nur bei einem bestimmten Teil der Verbindungslinien ein Pfad bzw. eine Wechselwirkung vorhanden ist. Der sogenannte

Perkolationsparameter p gibt an, welcher Prozentsatz der Punkte bzw. Verbindungslinien sich in einem der beiden Zustände befindet. Die Wahrscheinlichkeit für einen bestimmten Zustand an einem bestimmten Gitterpunkt bzw. einer bestimmten Verbindungslinie wird üblicherweise als gleichverteilt angenommen, d.h. als unabhängig vom Zustand anderer Gitterpunkte bzw. Verbindungslinien.

Die Perkolationstheorie setzt sich nun zum Ziel, die „Cluster" zu beschreiben, d.h. die Mengen derjenigen Gitterpunkte bzw. Verbindungslinien, zu welchen mindestens ein nächster Nachbarpunkt bzw. eine direkt benachbarte Verbindungslinie existiert, welcher bzw. welche sich in demselben Zustand befindet. Unter anderem stellt sich die Frage, welchen kritischen Wert p_C der Perkolationsparameter überschreiten muß, damit sich ein „unendlicher Cluster" bildet. Es zeigt sich, daß es als Funktion des Perkolationsparameters bei $p = p_C$ zu einem Phasenübergang kommt, dem sogenannten *Perkolationsphasenübergang*. Dies bedeutet insbesondere, daß der Anteil P der Gitterpunkte bzw. Verbindungslinien, welche zum unendlichen Cluster gehören, sowie die mittlere Clustergröße S, als Funktion von p in einer Umgebung von p_C einem kritischen Potenzgesetz folgt. P stellt den Ordnungsparameter des Systems dar und ist bei magnetischen Systemen mit der Magnetisierung M zu identifizieren, während S der magnetischen Suszeptibilität χ entspricht. Es sollte also gelten:

$$M(p) = M_0 \cdot (p / p_C - 1)^{\beta_p} \quad \text{für} \quad p > p_C$$

$$\chi(p) = \chi^{+}_{0,p} \cdot (p / p_C - 1)^{-\gamma_p} \quad \text{für} \quad p > p_C$$

$$\chi(p) = \chi^{-}_{0,p} \cdot (1 - p / p_C)^{-\gamma_p} \quad \text{für} \quad p < p_C$$

Für die in diesen Gesetzen auftretenden kritischen Exponenten β_p und γ_p werden in der Literatur folgende Werte angegeben [Stinchcombe 83]:

Dimension	β_p	γ_p	p_C
1	0	1	1
2	$5/36 \approx 0.139$	$43/18 \approx 2.39$	1/2
3	0.41	$5/3 \approx 1.67$	0.247

Die kritischen Exponenten sollten auf Grund der Universalitätshypothese nicht von der Art des zugrundegelegten Gitters abhängen und auch nicht davon, ob man „bond"- oder „site"-Perkolation betrachtet. Der kritische Perkolationsparameter p_C hängt aber sehr wohl davon ab. In der Tabelle ist p_C für die „bond"-Perkolation auf einer linearen Kette (Dimension 1), einem quadratischen Gitter (Dimension 2) und einem einfach-kubischen Gitter (Dimension 3) angegeben.

Gelegentlich wurde in der Literatur das Einsetzen des Ferromagnetismus in dünnen Schichten unter Verweis auf das Mermin-Wagner-Theorem (vgl. Seite 11) gedeutet. Demnach sollte das Einsetzen des Ferromagnetismus an das *Einsetzen einer magnetischen Anisotropie* gekoppelt sein, wenn sich die dünne Schicht wie ein zweidimensionales System verhält und die Dipol-Dipol-Wechselwirkung vernachlässigbar ist. Für dünne Co(001)-Schichten auf Cu(001) wurde tatsächlich gefunden, daß die Anisotropiekonstante der uniaxialen magnetischen Anisotropie, deren Achse innerhalb der Schichtebene liegt, im Wesentlichen bei der gleichen nominellen Co-Bedeckung von Null verschieden wird, bei welcher auch der Ferromagnetismus einsetzt [Krams 92]. In späteren Arbeiten zu demselben Schichtsystem wurde dagegen ein Perkolationsphänomen für das Einsetzen des Ferromagnetismus verantwortlich gemacht [Schumann 94]. Für Co-Schichten auf Cu(110) berichten Hope et al. davon, daß die magnetische Ordnung verschwindet, wenn die magnetische Anisotropie durch Anlagerung von Kohlenmonoxid an die Oberfläche der Co-Schicht gezielt auf Null eingestellt wird [Hope 00]. Sie betrachten dies als Bestätigung für die aus dem Mermin-Wagner-Theorem abgeleitete Erwartung. Alle diese Experimente wurden allerdings nur bei Zimmertemperatur durchgeführt, was die Aussagekraft erheblich einschränkt.

In manchen Fällen (z.B. für Fe/Tb- bzw. Fe/Y-Schichten [Arenholz 92]) ist von einer plötzlichen *strukturellen Umwandlung* des magnetischen Materials von einem amorphen zu einem kristallinen Zustand während des Schichtwachstums beim Überschreiten einer bestimmten nominellen Bedek-

kung berichtet worden. Solche strukturellen Umwandlungen können zu plötzlichen Änderungen des magnetischen Verhaltens Anlaß geben. Insbesondere könnte man sich vorstellen, daß bei der Bildung einer kristallinen Struktur eine magnetische Anisotropie einsetzt, was wiederum ein Einsetzen des Ferromagnetismus nach sich ziehen könnte.

3 Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel sollen die im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendeten experimentellen Methoden vorgestellt und im Detail erläutert werden. Dabei handelt es sich um Methoden zur Herstellung von epitaktischen Fe-Lagen auf wohldefinierten GaAs(001)-Oberflächen, sowie um Methoden zur strukturellen und magnetischen Charakterisierung solcher Proben. Es wird gezeigt, wie durch Kombination verschiedener Verfahren die Aussagekraft der Untersuchungen erheblich gesteigert werden kann.

3.1 Methoden zur Probenpräparation

Die Fe-Lagen sollen unter Fortsetzung der Kristallstruktur der GaAs-Einkristallsubstrate, d.h. *epitaktisch*, aufwachsen. Dazu hat sich ein als *Molekularstrahlepitaxie* (MBE = Molecular Beam Epitaxy) bezeichnetes Verfahren bewährt, das im Folgenden beschrieben wird. Alle untersuchten Proben wurden mit diesem Verfahren hergestellt.

3.1.1 Molekularstrahlepitaxie (MBE)

Grundprinzip

Bei der Molekularstrahlepitaxie wird das auf die Substratoberfläche aufzubringende Material (hier: Fe) sehr langsam thermisch verdampft. Die Schichtdicke auf dem Substrat wächst mit einer Rate in der Größenordnung von einer Atomlage pro Minute. Die an der Oberfläche der wachsenden Schicht befindlichen Atome haben daher relativ viel Zeit, um auf energetisch günstige Gitterplätze zu diffundieren, bevor sie von anderen auftreffenden Dampfatomen „vergraben“ werden. Diese Diffusionsprozesse können, je nach Anwendungsfall, gezielt durch eine Erhöhung der Substrattemperatur beschleunigt bzw. durch Temperaturerniedrigung gehemmt werden, um die Struktur der wachsenden Schicht zu optimieren.

Die Probenoberfläche ist verhältnismäßig lange der Umgebung ausgesetzt. Um eine Kontamination mit Fremdsubstanzen zu vermeiden, wird der Prozeß in einer Ultrahochvakuum (UHV) - Apparatur durchgeführt. Der Restgasdruck in einer solchen Anlage liegt in der Größenordnung von $1 \cdot 10^{-10}$ hPa. Damit ergibt sich eine theoretische Wiederbedeckungszeit von einigen Stunden, d.h. es dauert mehrere Stunden, bis eine Stoffmenge von einer Atomlage an Restgasmolekülen auf die Probenoberfläche aufgetroffen ist. In der Praxis wird die Kontamination der Oberfläche jedoch geringer ausfallen, da nur ein gewisser Prozentsatz der auftreffenden Restgasmoleküle wirklich haften bleibt. Dieser Prozentsatz (Haftkoeffizient) ist abhängig von der chemischen Reaktivität der Oberfläche und der Restgasmoleküle, sowie von der Oberflächentemperatur. In manchen Fällen ist kein Einfluß des Restgases auf bestimmte untersuchte Eigenschaften zu beobachten. Bei dünnen Filmen aus sehr reaktiven Substanzen, wie z.B. Gadolinium, wurde allerdings von einer Veränderung der magnetischen Eigenschaften berichtet, welche bereits wenige Minuten nach der Präparation erkennbar ist [Garreau 00]. Es muß daher grundsätzlich auf einen möglichst geringen Restgasdruck großer Wert gelegt werden. Wichtig ist außerdem vor dem Beginn des Schichtwachstums eine Reinigung der Substratoberfläche, z.B. durch Tempern und Ionenätzen.

In eine solche Vakuumapparatur können neben der Ausrüstung zur Probenpräparation auch Komponenten integriert werden, welche eine Charakterisierung der Proben *in-situ*, d.h. unter Aufrechterhaltung der Vakuumbedingungen erlauben. Insgesamt spricht man dann von einer Molekularstrahlepitaxie (MBE) - Anlage.

Die verwendete MBE-Anlage

Alle Proben wurden in einer teilweise von M. Brockmann und teilweise vom Autor dieser Arbeit aufgebauten Molekularstrahlepitaxieanlage hergestellt und strukturell charakterisiert. Abb. 3.1 zeigt eine schematische Zeichnung der Apparatur. Die Bedeutung der wichtigsten Komponenten wird im Folgenden erläutert.

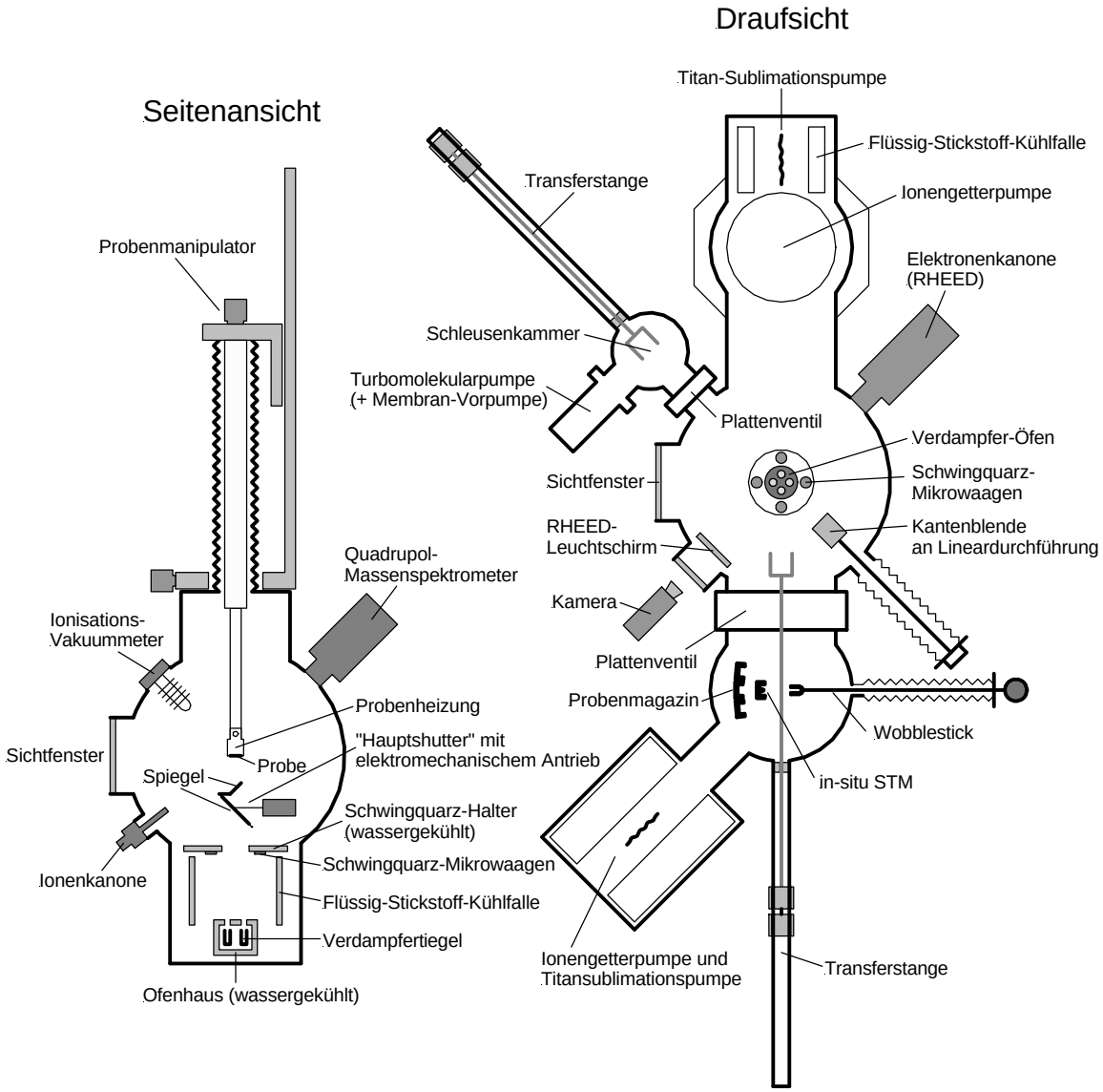

Abb. 3.1 : Skizze der MBE-Anlage

Vakuumpumpen

Für den Dauerbetrieb wird eine Kombination aus Ionengetterpumpe und Titansublimationspumpe eingesetzt. Diese Pumpen besitzen keine beweglichen Teile und arbeiten daher erschütterungsfrei. Dies ist wichtig für die Rastertunnelmikroskopie. Da es sich um Sorptionspumpen handelt, besteht bei Stromausfall keine Gefahr eines Lufteinbruchs. Die Titansublimationspumpe hat für chemisch hochreaktive Gase eine wesentlich höhere Pumprate als die Ionengetterpumpe. Trotzdem ist die Ionengetterpumpe unverzichtbar, da beim regelmäßigen Sublimieren von Titan Gas freigesetzt wird, welches von der Ionengetterpumpe gebunden werden muß. Außerdem werden schwachreaktive Gase von der Ionengetterpumpe besser gepumpt als von der Titansublimationspumpe. Bevor diese Pumpen in Betrieb genommen werden können, muß durch ein anderes Pumpsystem erst ein Druck von weniger als $1 \cdot 10^{-5}$ hPa erreicht sein. Dazu gibt es zusätzlich ein Pumpsystem aus einer

Turbomolekularpumpe und einer ölfreien Membranpumpe. Dieses ist an der Schleusenkammer montiert und wird sowohl zum erstmaligen Auspumpen der Hauptkammer als auch zum Betrieb der Schleuse verwendet. Beim Argon-Ionen-Ätzen wird außerdem das überschüssige Argon mit Hilfe dieses Pumpsystems abgepumpt, da Ionengetterpumpen und Titansublimationspumpen nicht zum Binden von größeren Mengen an Edelgasen geeignet sind.

Ionisations-Vakuummeter

Zur Routineüberwachung des Restgas-Totaldrucks ist ein Ionisations-Vakuummeter vorhanden.

Quadrupol-Massenspektrometer

Verschiedene Restgasbestandteile haben verschiedene potentielle Einflüsse auf die herzustellenden Proben. Daher ist der Totaldruck nicht das einzige Kriterium für die Güte einer Vakuumapparatur. Zur Analyse der Restgaszusammensetzung wird ein Quadrupol-Massenspektrometer vom Typ SRS-RGA 100 verwendet. Dabei werden Restgasmoleküle zunächst ionisiert und dann als kollimierter Strahl mit definierter kinetischer Energie durch ein elektrostatisches Quadrupol-Massenfilter geschickt. Nur Moleküle mit einer bestimmten spezifischen Ladung sind in der Lage, das Filter geradlinig zu passieren und werden hinter dem Filter wahlweise mit einem Faraday-Becher oder einem Sekundärelektronenvervielfacher nachgewiesen. Partialdrücke von Atomen und Molekülen, deren Massen sich um mindestens eine ganze atomare Masseneinheit unterscheiden, können getrennt voneinander bestimmt werden und zwar mit einer Nachweisgrenze von ca. $5 \cdot 10^{-14}$ hPa. Allerdings muß gegebenenfalls die für unterschiedliche Moleküle verschiedene Ionisationswahrscheinlichkeit und damit unterschiedliche Nachweisempfindlichkeit berücksichtigt werden. Bei der Zuordnung von Detektorsignalen zu Massenzahlen werden einfach-geladene Ionen vorausgesetzt. Doppelt ionisierte Restgasteilchen erscheinen bei der halben Massenzahl. Am heißen Filament im Ionisator werden manche Restgasmoleküle zersetzt, so daß man aus dem Massenspektrum der Zersetzungsprodukte („cracking-pattern“) auf das eigentliche Restgasmolekül zurückschließen muß. Ein typisches Restgas-Massenspektrum der im Einsatz befindlichen MBE-Anlage zeigt Abb. 3.2.

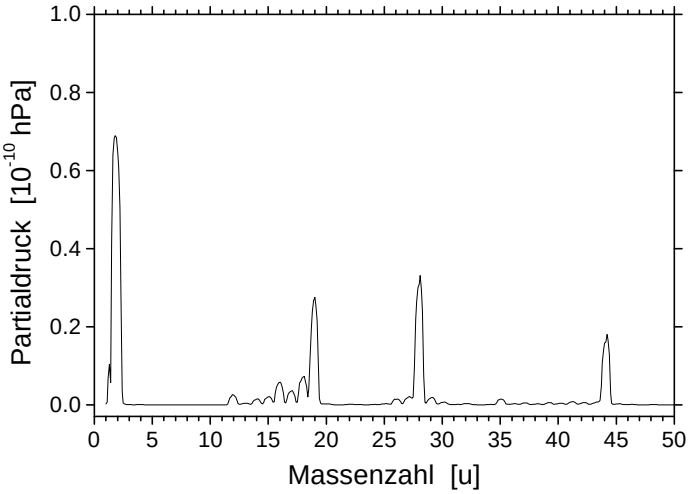

Abb. 3.2 : typisches Restgas-Massenspektrum der MBE-Anlage während des Aufdampfens von Fe

Der dominierende Peak bei Massenzahl 2 kann als Wasserstoff (H_2^+) interpretiert werden. Die Masse 44 gehört zu Kohlendioxid (CO_2^+). Bei Masse 28 ist die Zuordnung zu chemischen Verbindungen nicht eindeutig. Sowohl Stickstoff (N_2^+), als auch Kohlenmonoxid (CO^+) kommt in Frage. Das von Wasser verursachte cracking-pattern bei den Massen 16 (O^+), 17 (OH^+) und 18 (H_2O^+) liefert nur einen geringen Beitrag zum Gesamtdruck. Dies bestätigt, daß das bei der Inbetriebnahme der MBE-Anlage durchgeführte „Ausheizen“ erfolgreich war. Die Anwesenheit von Kohlenmonoxid und Kohlendioxid gilt als normales Phänomen in guten Vakuumapparaturen. Schwere Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Pumpenöl, die zu komplizierten, charakteristischen cracking-patterns führen würden, sind nicht zu erkennen. Bei Abschaltung der Ionengetterpumpe kommt es zu einem Anstieg des Partialdrucks von Methan, dessen cracking-pattern bei den Massen 15 (CH_3^+) und 16 (CH_4^+) erscheint. Der Peak bei Masse 19 deutet auf Fluor hin. Auf Grund der hohen chemischen Reaktivität von Fluor könnte man Auswirkungen auf zu untersuchende Proben

befürchten. Die dem Partialdruck von $3 \cdot 10^{-11}$ hPa entsprechende Monolagen-Wiederbedeckungszeit beträgt allerdings viele Stunden, so daß keine schnelle Anreicherung von Fluor an Probenoberflächen zu erwarten ist. Der einschlägigen Literatur folgend kann der Masse-19-Peak auf eine elektroneninduzierte Desorption von Fluor innerhalb des Ionisators des Massenspektrometers zurückgeführt werden [Balzers]. Vermutlich ist während des Ausheizens der MBE-Anlage eine gewisse Menge an Fluor z.B. aus Vitondichtungen freigesetzt worden und hat sich anschließend an den inneren Oberflächen der Apparatur angelagert, von wo es beim Betrieb des Massenspektrometers wieder desorbiert wird. Man kann davon ausgehen, daß der Partialdruck von Fluor bei abgeschaltetem Massenspektrometer weitaus geringer ist, als man aus der Höhe des Masse-19-Peaks schließen würde. Es wird deshalb im Folgenden angenommen, daß keine signifikante Kontamination von Proben mit Fluor auftritt. Eine weitere besonders reaktive und somit prinzipiell problematische Substanz ist Sauerstoff, der sich gegebenenfalls bei den Massen 32 (O_2^+) und 16 (O^+ / O_2^{2+}) zeigt. Wenn signifikante Sauerstoff-Peaks auftreten, dann ist ein Leck zur Atmosphärenluft zu vermuten. Eine weitere Bestätigung dafür wäre nach dem Abtrennen der Edelgas-eliminierenden Vakuumpumpen (Turbomolekularpumpe und Ionengetterpumpe) ein zeitlich linearer Anstieg der Argon-Peaks (Massen 20, 36 und 40) durch das in der Atmosphärenluft zu 1 % enthaltene Argon. Wegen der verbleibenden Pumpwirkung des Getterfilms der Titansublimationspumpe tritt keine gleichzeitige Akkumulation von Sauerstoff auf. Die genaue Lokalisation von solchen „Luftlecks“ kann durch eine *Helium-Lecksuche* erfolgen. Dazu wird das Massenspektrometer auf die Massenzahl 4 von Helium fest eingestellt und der Partialdruck gegen die Zeit aufgetragen. Dann werden verdächtige Stellen der Anlage von außen mit Helium aus einer Kapillare angeblasen. Trifft man dabei die undichte Stelle, so steigt der He-Partialdruck in der Apparatur plötzlich an. „Virtuelle Lecks“ sind mit dieser Methode allerdings nicht zu finden. Dabei handelt es sich um Gas- oder Flüssigkeitseinschlüsse in nicht vollständig abgedichteten Hohlräumen im Inneren einer Apparatur. Solche müssen durch besonders sorgfältigen Zusammenbau der Apparatur von vorne herein vermieden werden. So wurden bei der vorliegenden Apparatur potentielle Hohlräume grundsätzlich mit einer „Entlüftungsbohrung“ versehen.

Schleuse

Es ist eine Schleuse vorhanden, welche den Ein- und Ausbau von Proben ermöglicht, ohne die Hauptkammer der Anlage belüften zu müssen. Daher muß nicht nach jedem Probenwechsel die gesamte Apparatur ausgeheizt werden, was eine erhebliche Zeitersparnis bringt. Im Inneren der Schleusenkammer befindet sich eine Halogenglühbirne, die ein Ausheizen von Proben vor dem Transfer in die Hauptkammer ermöglicht. Dadurch kann die beim Probenwechsel in die Hauptkammer gelangende Menge an Fremdsubstanzen minimiert werden.

Probentransport im Ultrahochvakuum

Der Transport von Proben zwischen Schleusenkammer und Hauptkammer, sowie zwischen Hauptkammer und STM-Kammer erfolgt mittels magnetisch betätigter Transferstangen. Zum Übergeben einer Probe von der Transferstange in das Rastertunnelmikroskop wird zusätzlich ein „Wobblestick“ verwendet. Ein Manipulator ermöglicht das Verschieben und Drehen von Proben in der Hauptkammer. Dies ist wichtig zum Justieren der Probe bei RHEED-Untersuchungen, sowie zum Ausrichten der Probe relativ zur Ionenkanone.

Probenträgerplatten

Um die Kompatibilität mit dem *in-situ* Rastertunnelmikroskop der Firma Omicron sicherzustellen, werden alle Proben auf Probenträgerplatten montiert, deren Abmessungen der Omicron-Spezifikation entsprechen (vgl. Abb. 3.3). Im Laufe der Arbeit wurden drei verschiedene Materialien für diese Trägerplatten getestet: Edelstahl, Molybdän und Tantal. Zur Wärmeankopplung zwischen Probenträgerplatte und GaAs-Substrat wurde grundsätzlich eine bei Zimmertemperatur flüssige, eutektische GaIn-Legierung verwendet, da ohne diese Maßnahme die Temperaturinhomogenitäten auf der Probenoberfläche inakzeptabel waren. Bei den Temperaturen von bis zu 650 °C, die bei der Probenvorbehandlung auftreten, kommt es zur Bildung einer festen Legierung zwischen Edelstahl und GaIn, was nach einiger Zeit zum teilweisen Ablösen des Substrats von der Probenträgerplatte und damit verbundenen Problemen mit dem Wärmekontakt führt. Edelstahl hat im übrigen nur eine recht geringe Wärmeleitfähigkeit. Dadurch werden unerwünschte Temperaturgradienten auf der Probenoberfläche zusätzlich begünstigt. Reste der festen Legierung von Edelstahl mit GaIn können an der GaAs-Substratrückseite haften bleiben und bei integralen magnetischen Messungen, wie

der SQUID-Magnetometrie, unvorhersehbare paramagnetische Signale bewirken. Außerdem ist eine Wiederverwendung von einmal benutzten Edelstahl-Probenträgerplatten wegen den von der Legierung verursachten Unebenheiten kaum möglich. Als Alternative bot sich Molybdän an, ein für heizbare Probenhalter häufig benutztes Material mit nahezu der zehnfachen Wärmeleitfähigkeit von Edelstahl. Die Probleme mit der Legierungsbildung waren aber eher noch größer als bei Edelstahl. Erst Tantal brachte zufriedenstellende Ergebnisse. Zwar ist dessen Wärmeleitfähigkeit nur fünfmal größer als die von Edelstahl, jedoch tritt keine Legierungsbildung mit dem GaIn-Eutektikum auf und dieses kann in flüssiger Form seine Aufgabe als Vermittler des Wärmekontakts uneingeschränkt erfüllen. Um ein Herabfallen des nach unten orientierten GaAs-Substrats in jedem Fall zu verhindern, wurden kleine federnde Halteklammern aus Molybdän-Blech verwendet, die mit Schrauben in einem in die Probenträgerplatte geschnittenen Gewinde befestigt wurden. Trotz der Halteklammern ist noch der größte Teil der Probenoberfläche für RHEED-Untersuchungen (vgl. Seite 26 ff.) zugänglich. Beim Bedampfen der GaAs-Oberfläche erzeugen die Halteklammern einen „Schatten“. Dieser ist jedoch scharf begrenzt und nimmt nur ca. 0.5 mm^2 ein.

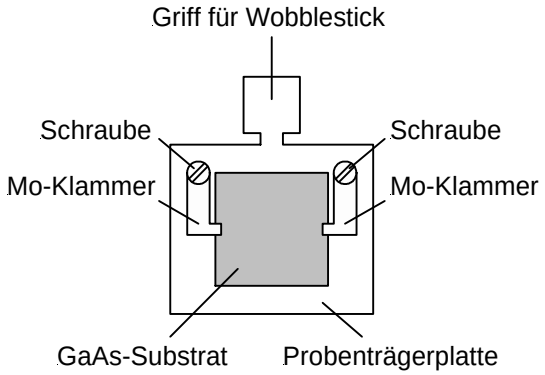

Abb. 3.3 : Befestigung eines GaAs-Substrats auf einer Probenträgerplatte

Probenheizung

Nach Montage am Manipulator der Hauptkammer können die Probenträgerplatten von der Rückseite her beheizt werden (vgl. Abb. 3.4). Eine 24V/250 W-Halogenlampe wird als Heizelement benutzt. Aus Platzgründen wurde der vordere Teil des Glaskolbens mit einer Diamantdrahtsäge abgeschnitten. Der Rest des Glaskörpers dient zur elektrischen Isolation. Da die Halogenfüllung dabei verloren geht, darf nicht mehr die volle Nennleistung ausgenutzt werden. Es genügt jedoch eine Heizleistung von lediglich 60 W, um die maximal erforderliche Probentemperatur von 650 °C zu erreichen. Ein am Manipulator befestigtes Thermoelement berührt den Probenhalter und ermöglicht eine Temperaturmessung. Außerdem kann die Temperatur der Probenoberfläche mit einem optischen Pyrometer bestimmt werden.

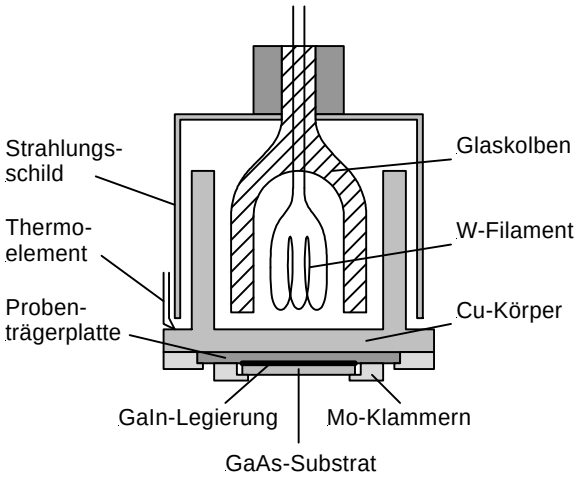

Abb. 3.4 : Detailzeichnung der Einrichtung zum Heizen der Proben

Ionenkanone

Eine Ionenkanone vom Typ „IG 35“ der Firma OCI ist vorhanden, um ein Ionenätzen von Probenoberflächen durchführen zu können. Zum Betrieb wird Argon-Gas von 99.999 % Reinheit verwendet, das über ein Feindosierventil zugeführt wird. Die Energie der Ionen kann im Bereich 0...3 keV gewählt werden. Am Ort der Probe wird eine Ionenstromdichte von ca. 1 µA/cm² erreicht. Wenn man davon ausgeht, daß die Ionen einfach positiv geladen sind und jedes auf die Probenoberfläche auftreffende Ion ein Atom herausschlägt, ergibt sich eine Abtragungsrate von ca. 1 Monolage in 3 Minuten. Die Probe muß geerdet sein, damit die Ladungen der auftreffenden Ionen abfließen können. Anderenfalls lädt sich die Probe auf, die Ionen werden abgestoßen und der Ätzprozeß kommt zum Erliegen. Ein Strommeßgerät, das zwischen Probe und Massepotential angeschlossen wird, ermöglicht eine kontinuierliche Überwachung des Ionenstroms.

Verdampfersystem

Zur thermischen Verdampfung von Metallen werden Knudsen-Zellen verwendet, von welchen vier Stück im unteren Teil der Hauptkammer vorhanden sind. Für die Zwecke der vorliegenden Arbeit wurden nur zwei dieser Verdampfer-Quellen benötigt, nämlich eine für Eisen und eine für Gold. Diese Quellen wurden abwechselnd betrieben. Das Aufdampfmaterial befindet sich in zylindrischen Tiegeln von 6 mm Durchmesser und 10 mm Tiefe, die mit einer Wolframwendel elektrisch beheizt werden. Als Tiegelmaterial wurde Berylliumoxid (BeO) verwendet, da es sich wegen seiner besonders hohen Wärmeleitfähigkeit bei früheren Experimenten gegenüber den potentiellen Alternativen, wie Aluminiumoxid (Al_2O_3) oder Bornitrid (BN) als überlegen erwiesen hat [Lugert 92]. Insbesondere ist eine Zersetzung des Tiegelmaterials bzw. eine chemische Reaktion mit den zu verdampfenden Materialien bei den für den Verdampfungsprozeß erforderlichen Temperaturen von ca. 1500 °C nicht zu erwarten. Jeder Tiegel ist von einem doppelten Strahlungsschild aus Tantal-Blechen umgeben. Dadurch ist die gegenseitige thermische Beeinflussung der Verdampferquellen gering.

Zur Verdampfung von Fe genügt eine Heizleistung von ca. 100 W. Damit wird eine Depositionsrate von ca. 0.5 Monolagen pro Minute erreicht. Der größte Teil der inneren Oberflächen, die von der Wärmestrahlung der Verdampfer getroffen werden, ist wassergekühlt, so daß deren Erwärmung und damit der Druckanstieg beim Betrieb der Verdampfer gering bleibt. Dazu trägt auch die oberhalb der Öfen angebrachte Kühlfalle bei, welche mit flüssigem Stickstoff betrieben wird. Während der Schichtherstellung kann ein Druck von $< 2 \cdot 10^{-10}$ hPa aufrecht erhalten werden. Zwar ist die Substratoberfläche direkt den heißen Verdampferöfen zugewandt, jedoch absorbiert sie nur einen geringen Teil der von den Öfen emittierten Wärmestrahlung, da die Querschnittsfläche der Tiegelöffnungen recht gering und der Abstand zwischen Öfen und Substrat recht groß ist. Außerdem ist die Wärmekapazität des Probenhalters relativ groß und die Dauer der Schichtherstellung relativ kurz. Die Erwärmung des Probenhalters bleibt kleiner als 1 °C, wie Messungen mit dem Thermoelement bestätigen. Wegen des guten Wärmekontakts zwischen Substrat und Probenhalter kann man davon ausgehen, daß sich auch die Substratoberfläche nicht stärker erwärmt.

Bei jeder Neuinbetriebnahme der Vakuumapparatur (d.h. Abpumpen und Ausheizen), insbesondere aber nach einer Neubestückung der Tiegel, müssen die Knudsen-Zellen vor der Herstellung der ersten Probe längere Zeit bis knapp unter Verdampfungstemperatur geheizt werden. Dies treibt Restgase aus dem Tiegelmaterial aus. Gleichzeitig wird auch eine Selbstreinigung des Aufdampfmaterials von solchen gelösten Substanzen erzielt, die bei diesen Temperaturen flüchtiger sind als das eigentliche Aufdampfmaterial. Die Beobachtung des Totaldrucks und gegebenenfalls auch der Partialdrücke mit dem Massenspektrometer hilft, um den Fortschritt des Ausgasungsprozesses zu beurteilen. Vor allem der Partialdruck der Masse 28 steigt erfahrungsgemäß zunächst stark an und klingt dann langsam wieder ab.

Um beim Aufdampfen von Gold (Reinheit 99.9 %, Firma Balzers) einen für die Schichtherstellung ausreichenden Dampfdruck zu erreichen, muß man die Schmelztemperatur deutlich überschreiten. Eisen wird dagegen unter normalen Umständen nicht zum Schmelzen gebracht. Es bleibt in Form von Körnern, die von einem 2 mm dicken Fe-Draht (Reinheit 99.9985 %, Firma Johnson&Matthey) abgezwickt wurden, als unregelmäßige Schüttung im Tiegel liegen. Es sublimiert an den Stellen, wo die Fe-Körner die heiße Tiegelwandung berühren. Wegen der Abschattungseffekte der Körner kann sich dabei ein schwer vorhersagbares Strahlprofil ergeben.

Während des Aufheizens und Ausgasens der Öfen wird die Substratoberfläche durch eine elektromagnetisch zu betätigende Klappe aus Aluminiumblech („Hauptshutter“) geschützt. Durch gezieltes

Öffnen und Schließen dieses Hauptshutters kann das Substrat anschließend während einer genau definierten Zeit dem Dampfstrahl ausgesetzt werden, um ganz bestimmte Schichtdicken zu realisieren. Mit Hilfe eines am Hauptshutter angebrachten Spiegels (Stück eines Silizium-Wafers) kann das Aufdampfmaterial in den Tiegeln über ein Sichtfenster visuell inspiziert werden. So ist eine Beurteilung des Füllstandes der Tiegel möglich. Ebenso können eventuelle Irrtümer z.B. beim Anschluß der Heizstromversorgung aufgedeckt werden, da erstens der jeweils in Betrieb befindliche Ofen über sein Glühen erkennbar ist und zweitens das Aufdampfmaterial an Hand von Form und Farbe eindeutig identifiziert werden kann. Durch die Verwendung eines Spiegels wird vermieden, daß das Sichtfenster vom Metalldampf getroffen wird, so daß es auch nach längerer Zeit noch gut durchsichtig ist.

Schwingquarz-Mikrowaagen

Zur Beobachtung der zeitlichen Entwicklung der deponierten Substanzmenge während des Aufdampfprozesses werden Schwingquarz-Mikrowaagen verwendet. Die Resonanzfrequenz der benutzten Schwingquarze beträgt im neuwertigen Zustand ca. 6 MHz. Wenn sich ein Film darauf abscheidet, sinkt die Frequenz proportional zur Massenbelegung, d.h. proportional zu der pro Flächeneinheit abgeschiedenen Masse. Oft ist man allerdings nicht unmittelbar an der Massenbelegung interessiert, sondern an der im Mittel pro Flächeneinheit abgeschiedenen Anzahl von Atomen. Diese läßt sich berechnen, indem man die Massenbelegung durch die Atommasse dividiert. Diese Größe ist allerdings recht unanschaulich. Man bevorzugt daher oft, eine *nominelle Schichtdicke* anzugeben. Dazu dividiert man bei einkristallinen Schichten durch die in einer zur Schichtoberfläche parallelen Netzebene des Massivmaterials vorhandene Anzahl von Atomen pro Flächeneinheit, welche sich aus der Kristallstruktur und der Gitterkonstanten herleiten läßt. So erhält man eine *nominelle Anzahl von Monolagen (ML)*, auch wenn das Schichtwachstum nicht atomlagenweise erfolgt. Durch Multiplikation mit dem Massivmaterial-Netzebenenabstand kann man diese nominelle Schichtdicke prinzipiell auch in Längeneinheiten (z.B. nm) ausdrücken. Dabei darf man allerdings nicht aus dem Auge verlieren, daß diese Daten nicht aus einer geometrischen Messung gewonnen wurden. Die so bestimmte nominelle Schichtdicke kann sich von der tatsächlichen mittleren geometrischen Schichtdicke unterscheiden, z.B. wenn die Schicht mit einer anderen als der Massivmaterial-Kristallstruktur und/oder mit einer elastischen Verspannung bzw. einer hohen Defektdichte aufwächst.

Insgesamt vier Schwingquarze sind kreuzförmig auf einem horizontalen Kreis von 60 mm Durchmesser um die vertikale Symmetrieachse des Verdampfersystems angeordnet. Die ebenfalls vier Verdampferquellen befinden sich 20 cm senkrecht unterhalb der Quarze auf einem Kreis von 30 mm Durchmesser. Der Mittelpunkt des Substrats liegt 10 cm oberhalb der Schwingquarze auf der Symmetrieachse, wenn der Manipulator auf Standardwerte eingestellt ist. Der Hauptshutter befindet sich zwischen der Ebene der Schwingquarze und dem Substrat. Dadurch ist es möglich, schon vor dem Beginn des Schichtwachstums, also bei noch geschlossenem Hauptshutter, die Verdampfungsrate der Öfen zu beurteilen, um die Heizleistung so einzustellen, daß sich eine bestimmte gewünschte Wachstumsrate ergibt.

Beim Aufheizen eines Verdampferofens werden die Schwingquarze durch die Wärmestrahlung etwas erwärmt, was sich in einer Erhöhung ihrer Resonanzfrequenz äußert. Dadurch wird vorübergehend eine negative Depositionsrate vorgetäuscht. Um die Einstellung des thermischen Gleichgewichts zu beschleunigen, wird die Haltekonstruktion der Schwingquarze mit Wasser gekühlt. Einige Minuten nach Einstellung einer festen Heizleistung am Ofen ist erfahrungsgemäß die thermische Drift der Schwingquarzfrequenz abgeklungen.

Da sich die Schwingquarze nicht am Ort des Substrats befinden, werden sich die Depositionsraten bei Substrat und Schwingquarzen unterscheiden. Wegen des festen Abstands zwischen Substrat und Schwingquarzen werden jedoch die Dampf-Flüsse an den beiden Orten proportional zueinander sein. Im allgemeinen kann man auch davon ausgehen, daß die Haftkoeffizienten von Substratoberfläche und Schwingquarzoberfläche und damit die Depositionsraten in einem festen Verhältnis zueinander stehen. Daher kann eine Eichung so durchgeführt werden, daß die auf dem *Substrat* zu erwartende Massenbelegung mit der Frequenzänderung der Schwingquarze quantitativ in Zusammenhang gebracht wird.

Die Eichung wird für denjenigen Quarz durchgeführt, welcher sich direkt über dem Ofen befindet, aus welchem verdampft wird („Referenzquarz“). Am Ort dieses Quarzes hat man im Vergleich zu den anderen Quarzen die höchste Depositionsrate und damit die höchste Nachweisempfindlichkeit. Durch Wägung einer Probe *ex-situ* mit einer kalibrierten Analysenwaage vor und nach dem Be-

dampfen erhält man unmittelbar den Proportionalitätsfaktor („Eichfaktor“) zwischen einer Änderung der Schwingquarzfrequenz und der Änderung der Massenbelegung am Ort der Probe. Ein noch eleganterer Weg um die Schwingquarze zu eichen, besteht in der Ausnutzung von RHEED-Oszillationen (vgl. Seiten 28 f. und 66 f.). Dabei bekommt man den Zusammenhang zwischen einer Frequenzänderung der Schwingquarze und einer Änderung der Schichtdicke am Ort der Probe in der Einheit Monolagen. Um auf eine Massenbelegung zurückrechnen zu können, verwendet man im allgemeinen Proben, bei welchen das aufgedampfte Material in guter Näherung mit der Gitterkonstanten des Massivmaterials aufwächst. Mit Hilfe dieser Eichung kann man dann auch Substanzmengen anderer aufzudampfender chemischer Elemente bestimmen. Da sich die Abstrahlcharakteristik der Verdampfer mit dem Füllstand ändern kann, ist nach Verdampfung von größeren Mengen an Material oder nach dem Auffüllen von Aufdampfmaterial mit einer gewissen Veränderung des Eichfaktors zu rechnen. Gegebenenfalls muß eine erneute Eichmessung durchgeführt werden.

Um die Schwingquarzfrequenz mit einer Auflösung von Bruchteilen eines Hz zu erfassen und trotzdem mindestens eine Messung pro Sekunde zu erreichen, wird ein besonderes Meßverfahren benutzt: Das Signal eines 200 MHz-Referenzoszillators wird während der Dauer von 2^{22} = 4194304 Perioden der Schwingquarzoszillation auf einen digitalen Zähler durchgeschaltet. Anschließend wird der Zählerstand in einen Rechner eingelesen. Er ist ein Maß für die Periodendauer der Schwingung des Quarzes und diese kann durch Kehrwertbildung in eine Frequenz umgerechnet werden. Bei einer Quarzfrequenz von ca. 6 MHz dauert eine Messung ca. 0.7 Sekunden. Die Auflösung bei der Bestimmung der Dauer von 2^{22} Schwingquarz-Perioden entspricht 1 Periode der 200 MHz-Oszillation, also 5 ns. Die relative Auflösung beträgt somit 5ns / 0.7s $\approx 7.1 \cdot 10^{-9}$. Damit ergibt sich eine Auflösung bei der Frequenzbestimmung von 0.043 Hz. Bei einem typischen Eichfaktor für Fe von 0.0434 ML/Hz entspricht dies einer Auflösung bei der Bestimmung der nominellen Schichtdicke von 0.002 ML. Der statistische Fehler ist allerdings größer als diese Auflösung. Die zufälligen Fluktuationen der Meßwerte machen ca. ±0.03 ML Fe aus. Je größer die Atommasse und je kleiner die Gitterkonstante des aufzudampfenden Materials, desto besser ist das Signal-Rausch-Verhältnis bei Auftragung der Schwingquarzdaten als nominelle Schichtdicke (bzw. Teilchenzahl pro Flächeneinheit) gegen die Zeit. Das Signal-Rausch-Verhältnis ist z.B. für Au um einen Faktor 3.7 besser als für Fe.

Vier parallele Zählsysteme ermöglichen einen gleichzeitigen Betrieb aller vier Mikrowaagen. Zur Herstellung einer Schicht läßt sich der Start und das Ende einer Schwingquarzmessung mit dem Öffnen bzw. Schließen des Hauptshutters synchronisieren, da der Elektromagnet des Hauptshutters über den selben Rechner angesteuert werden kann.

Eine mit dem Entwicklungssystem „Test Point“ erstellte Software gestattet die komfortable Darstellung der Meßdaten. Beim Start einer Messung wird zunächst die aktuelle Frequenz der Schwingquarze bestimmt. Zu späteren Zeitpunkten wird immer die Differenz zwischen der dann aktuellen Frequenz und diesem Wert betrachtet. Für den Referenzquarz wird diese Differenz mit Hilfe des Eichfaktors in eine nominelle Schichtdicke umgerechnet. Die anderen Quarze befinden sich in größerer Entfernung zum Ofen und außerdem seitlich versetzt, so daß dort pro Zeiteinheit etwas weniger Dampf ankommt. Um auch aus den Frequenzänderungen dieser Quarze die auf dem Substrat zu erwartende nominelle Schichtdicke zu berechnen, wird deren Frequenzänderung nicht nur mit dem Eichfaktor, sondern zusätzlich mit je einem „Gewichtungsfaktor“ multipliziert.

Gelegentlich treten sprunghafte Änderungen der Frequenz auf, wobei sich an einen solchen Sprung eine nichtlineare Drift der Frequenz anschließt, welche erst im Laufe von einigen Minuten abklingt. Während dieser Zeit ist ein betroffener Quarz für Zwecke der Schichtdickenbestimmung unbrauchbar. Daher ist eine gewisse Redundanz wünschenswert, die durch den gleichzeitigen Betrieb von vier Mikrowaagen erreicht wird. Somit kann die Schichtdicke auch dann noch zuverlässig beurteilt werden, wenn plötzlich einzelne Quarze gestört sind. Außerdem läßt sich mit der Anordnung der vier Quarze der unbeabsichtigte, aber nicht völlig vermeidbare Depositionsrategradient grob abschätzen.

Eine Überprüfung der Schwingquarze und gegebenenfalls eine Korrektur der Gewichtungsfaktoren erfolgt kurz vor der Herstellung einer Schicht: Bei geschlossenem Hauptshutter wird die nominelle Schichtdicke für alle vier Mikrowaagen graphisch gegen die Zeit aufgetragen. Im Idealfall verlaufen die Kurven zu allen vier Quarzen linear und deckungsgleich. Falls die Verläufe zwar linear sind, aber verschiedene Steigungen haben, ermöglicht ein Mausklick die Neuberechnung der Gewichtungsfaktoren. Sind alle Kurven nichtlinear, so hat sich vermutlich die Verdampfungsrate noch nicht stabilisiert und es muß noch etwas gewartet werden. Sind nur einzelne Kurven nichtlinear, so ist

vermutlich der zugehörige Quarz gestört. Falls diese Störung nicht innerhalb von einigen Minuten verschwindet, wird der betroffene Quarz ignoriert. Falls der Referenzquarz dauerhaft gestört ist, kann eine Neuberechnung der Gewichtungsfaktoren nicht durchgeführt werden. Man muß sich in diesem Fall auf die Verwendung von früher bestimmten Gewichtungsfaktoren beschränken.

Wegen des endlichen Signal-Rausch-Verhältnisses hat man bei der Bestimmung von Schichtdicken immer einen bestimmten *absoluten* Fehler. Der *relative* Fehler wird daher umso größer, je geringer die Schichtdicke ist. Möchte man nominelle Dicken von Fe-Schichten mit höherer Genauigkeit als ± 0.03 ML realisieren, so bietet sich folgendes Vorgehen an: Man läßt zunächst die Verdampfungsrate des Ofens bei konstant gehaltener Heizleistung stabilisieren. Dann läßt man bei geschlossenem Hauptshutter und laufender Schwingquarzmessung so lange dampfen, bis die aktuelle Depositionsrate als Quotient aus nomineller Schichtdicke und vergangener Zeit mit hinreichender Genauigkeit bekannt ist. Daraus berechnet man die Zeit, die zur Deposition der gewünschten Menge an Material auf dem Substrat erforderlich ist und öffnet den Hauptshutter für diese Zeit.

Kantenblende

Eine Kantenblende ermöglicht die Herstellung von *Stufenkeilschichten*. Dazu wird zunächst das Substrat mit Hilfe des Manipulators so einjustiert, daß sich die Blende mit Hilfe der Lineardurchführung, an welcher sie befestigt ist, in geringem Abstand von der Substratoberfläche verschieben läßt und dabei ein beliebiger Anteil der Oberfläche abgedeckt werden kann. Ein am Hauptshutter befestigter Spiegel gewährt dazu einen Blick senkrecht nach oben auf Blende und Probe. Die Lineardurchführung wird nun so eingestellt, daß die Kante der Blende mit einer Kante des Substrats zur Deckung kommt, wobei die Substratoberfläche gerade noch vollständig für den Dampfstrahl zugänglich ist. Dann wird am Verdampferofen eine geeignete Heizleistung eingestellt und die Schwingquarzanzeige beobachtet, bis sich die Verdampfungsrate stabilisiert hat und mit hinreichender Genauigkeit bekannt ist. Nun wird der Hauptshutter geöffnet und aufgedampft, bis die für den dünnsten Bereich des Stufenkeils beabsichtigte Schichtdicke erreicht ist. Dann schiebt man die Blende ruckartig um die vorgesehene Stufenbreite vor. Nach bestimmten Zeitintervallen wird die Blende jeweils ein weiteres Stück vorgeschoben. Die Zeitintervalle werden vor dem Öffnen des Hauptshutters aus der Depositionsrate und dem beabsichtigten Schichtdickeninkrement berechnet. Da die Schichtdickeninkremente bei diesem Verfahren über die Dauer des Aufdampfens gesteuert werden, statt über die mit zufälligen Fluktuationen behaftete Schwingquarzfrequenz, wird eine sehr geringe relative Unsicherheit der Schichtdicken erreicht und es sind auch sehr kleine Schichtdickeninkremente (z.B. von 0.1 ML) zuverlässig und genau realisierbar. Ein weiterer Vorteil solcher Keilschichten liegt in der Tatsache, daß alle unterschiedlich dicken Bereiche der Schicht auf einer einheitlichen Substratoberfläche aufgewachsen sind. Außerdem hat man eine beträchtliche Zeitersparnis gegenüber der Herstellung vieler Einzelproben. Durch Rotieren der Probe um 90° und Wiederholung des geschilderten Aufdampfprozesses können sogar „Doppelkeile“ hergestellt werden, womit die Zahl unterschiedlicher Probenbereiche nochmals vervielfacht werden kann. Zur magnetischen Untersuchung solcher Keilschichten ist die Verwendung ortsaufgelöster Meßverfahren, wie etwa des magneto-optischen Kerr-Effekts (MOKE), besonders vorteilhaft. Um die SQUID-Magnetometrie oder die Mössbauer-Spektroskopie anzuwenden, könnte man die Keilproben in Stücke von einheitlicher Schichtdicke zerteilen und diese einzeln vermessen. Bei diesen Meßmethoden ist jedoch die Signalstärke proportional zur Probengröße, weshalb man meist große Einzelproben verwendet.

3.2 Methoden zur strukturellen Charakterisierung

Zum Verständnis des magnetischen Verhaltens von dünnen Schichten ist es von ganz entscheidender Bedeutung, deren Struktur zu kennen. Dabei ist sowohl die *atomare Struktur* (Kristallstruktur) wichtig, als auch die *Morphologie* auf mesoskopischen Längenskalen. Das Wachstum von Schichten erfolgt grundsätzlich an der jeweils aktuellen Oberfläche und bei dünnen Schichten haben die Oberflächen entscheidenden Einfluß auf das Verhalten des gesamten Schichtmaterials. Es liegt daher nahe, schwerpunktmäßig die Oberflächen der Schichten zu untersuchen. Dies soll insbesondere *in-situ*, d.h. ohne Beeinträchtigung der Vakuumbedingungen und möglichst auch ohne Unterbrechung des Schichtwachstums erfolgen. Zur Untersuchung der atomaren Struktur von Oberflächen sind bereits seit längerer Zeit Elektronenbeugungsmethoden etabliert. Für die Zwecke der vorliegenden Arbeit wurde die Beugung hochenergetischer Elektronen unter streifendem Einfall

(RHEED) gewählt. Von überrragender Leistungsfähigkeit im Vergleich zu den anderen Methoden der Oberflächenphysik ist das erst gegen Ende der siebziger Jahre des zwanzigsten Jahrhunderts entdeckte Prinzip des Rastertunnelmikroskops. Es ermöglicht insbesondere die Aufklärung morphologischer Strukturen auf Längenskalen von einigen Mikrometern bis hinab in atomare Dimensionen. Daher wurde in dieser Arbeit auch die Rastertunnelmikroskopie zur Strukturaufklärung von GaAs(001)-Oberflächen und den darauf gewachsenen Fe-Schichten eingesetzt. Im Folgenden werden die beiden verwendeten Strukturuntersuchungsmethoden näher erläutert.

3.2.1 Elektronenbeugung unter streifendem Einfall (RHEED)

Versuchsanordnung

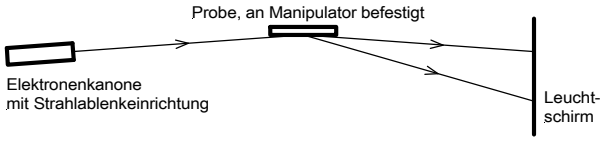

Abb. 3.5 : Skizze der RHEED-Anordnung

Bei der Beugung hochenergetischer Elektronen unter streifendem Einfall (RHEED = Reflective High Energy Electron Diffraction) wird ein Strahl von Elektronen mit z.B. 10 keV Energie (de Broglie-Wellenlänge, relativistisch: 0.112 Å) unter flachem Winkel (ca. 0 ... 5°) auf eine Probenoberfläche gerichtet (vgl. Abb. 3.5). Die gebeugten Elektronen treffen auf einem Leuchtschirm auf. Die Energie dieser Elektronen ist dabei groß genug, um den Schirm zum Leuchten anzuregen, weshalb auf eine Nachbeschleunigung verzichtet werden kann. Auf Grund des geringen Einfallswinkels der Elektronen beträgt deren Eindringtiefe nur wenige Monolagen. Das Beugungsbild enthält deswegen Informationen über die Struktur der obersten Atomlagen einer Probe. Da die Probe an einem Manipulator befestigt ist, kann sie relativ zum Elektronenstrahl verschoben und gedreht werden. So kann man z.B. den Azimutwinkel und den Polarwinkel der einfallenden Elektronen variieren. Außerdem ist an der Elektronenkanone (Hersteller: Firma Staib) eine elektromagnetische Strahlablenkeinrichtung vorhanden, welche eine Feinjustierung des Elektronenstrahls erlaubt.

Die auf dem Leuchtschirm entstehenden Beugungsbilder werden mit einer Videokamera aufgenommen. Ein Framegrabber ermöglicht, die Bilder zu digitalisieren und in einen PC zu übernehmen. Eine komfortable Auswertung der RHEED-Daten ist mit der Bildverarbeitungssoftware „AIDA-PC“ möglich. Bei Einzelbildern kann man den Kontrast optimieren, Abstände zwischen Bildstrukturen ausmessen und Linienprofile der Intensität darstellen, z.B. um Halbwertsbreiten von Beugungsreflexen zu bestimmen. Außerdem sind zeitabhängige Messungen möglich. Es können z.B. rechteckige Bereiche definiert werden, in welchen die mittlere Intensität gegen die Zeit aufgetragen wird. Zusätzlich kann man die Entwicklung von Linienprofilen als Funktion der Zeit aufzeichnen. Solche Messungen können *während* des Wachstums dünner Schichten stattfinden, denn die Geometrie der Anordnung gestattet, neben dem Elektronenstrahl auch einen Verdampfer auf die Probe zu richten.

Entstehung des Beugungsbildes

Um zu verstehen, wie RHEED-Beugungsbilder zustande kommen, soll eine idealisierte Probenoberfläche betrachtet werden, die aus einem zweidimensionalen quadratischen Gitter von Streuzentren besteht. Im dreidimensionalen reziproken Raum wird ein solches zweidimensionales Punktgitter repräsentiert durch Stäbe, welche senkrecht zu der Gitterebene des direkten Raumes verlaufen. Wenn man nur elastische Streuprozesse berücksichtigt, dann ergibt sich das Beugungsbild aus der *Laue-Bedingung* $\vec{k}_{hk} - \vec{k}_0 = \vec{G}$. Dabei ist $\vec{k}_0$ der Wellenvektor der einfallenden Elektronen, $\vec{k}_{hk}$ der Wellenvektor der ausfallenden Elektronen und $\vec{G}$ ein reziproker Gittervektor. Nach Ewald kann man das Beugungsbild konstruieren, indem man im reziproken Raum zunächst einen Pfeil zeichnet, dessen Länge und Richtung dem Wellenvektor $\vec{k}_0$ der einfallenden Elektronen entspricht und dessen Spitze mit einem Punkt des reziproken Gitters zusammenfällt (vgl. Abb. 3.6). Dann denkt man sich im reziproken Raum eine Kugel um den Anfangspunkt dieses Pfeils (*Ewald-Kugel*), deren Radius der Länge des Pfeils entspricht. Vom Mittelpunkt dieser Kugel zieht man Pfeile zu allen Schnittpunkten der Kugel mit dem reziproken Gitter. Diese Pfeile repräsentieren die

Wellenvektoren der gebeugten Elektronen. Die Pfeile werden geradlinig fortgesetzt bis zu der Ebene, in welcher sich der Leuchtschirm befindet. Die Schnittpunkte der Geraden mit dieser Ebene geben maßstabsgetreu das Beugungsbild wieder. Für die betrachtete ideal zweidimensionale und ideal periodische Probe ergeben sich Punkte, welche auf Kreisen liegen (*Laue-Kreise*). Diese Beugungsreflexe werden analog zu den Stäben des reziproken Gitters mit Hilfe der beiden Ziffern h und k indiziert (vgl. Abb. 3.6).

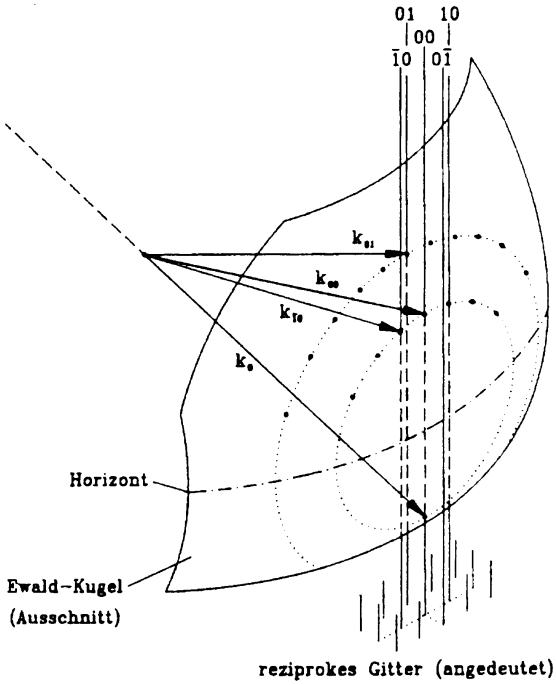

Abb. 3.6 : Konstruktion des Beugungsbildes nach Ewald, entnommen aus [Kisters 94]

Um allgemeinere Situationen zu beschreiben, kann in vielen Fällen die *kinematische Beugungstheorie* verwendet werden. Dabei werden die einfallenden Elektronen als ebene Welle angesetzt (Born'sche Näherung) und es wird angenommen, daß jedes einfallende Elektron nur ein einziges mal gestreut wird, bis es am Leuchtschirm ankommt. Falls jedoch diese Näherungen nicht ausreichen, muß man die wesentlich aufwendigere *dynamische Beugungstheorie* heranziehen, welche die Mehrfachstreuung berücksichtigt.

Da am Leuchtschirm nur die *Intensität* der gebeugten Elektronen nachgewiesen werden kann, während die *Phase* der zugehörigen Materiewelle nicht erfaßt wird, ist eine Rücktransformation des Beugungsbildes in den realen Raum nicht eindeutig möglich. Man muß sich darauf beschränken, Modelle für die Struktur im realen Raum aufzustellen und zu berechnen, ob diese mit dem beobachteten Beugungsbild verträglich sind. Aus solchen Betrachtungen ergeben sich einige allgemeine Aussagen, welche eine qualitative *ad-hoc* Interpretation von RHEED-Bildern erlauben (vgl. Abb. 3.7).

Ein RHEED-Beugungsbild liefert Informationen über Periodizitäten in der räumlichen Anordnung der Atome, also über die Kristallinität einer Oberfläche. Je schärfer die Beugungsreflexe („Spots"), desto perfekter ist die Periodizität der Struktur im Ortsraum. Allerdings kann in der Praxis auch bei perfekter Probe der Spotdurchmesser wegen des endlichen Durchmessers und der endlichen Divergenz des einfallenden Elektronenstrahls einen bestimmten Wert nicht unterschreiten. Strukturen einer Oberfläche, welche größer sind als die Kohärenzlänge der Elektronen (≈ 10 nm), tragen nicht zum Beugungsbild bei und können daher mit RHEED nicht beurteilt werden. Zu beachten ist außerdem, daß bei großer Oberflächenrauhigkeit Abschattungseffekte auftreten können, wodurch bestimmte Bereiche der Oberfläche vom Elektronenstrahl gar nicht erreicht werden. Das Beugungsbild repräsentiert eine Mittelung über die vom Elektronenstrahl „beleuchtete" Fläche (Ellipse von ca. 0.5 mm Breite und mehreren mm Länge). Durch manuelles Verschieben des Elektronenstrahls mit Hilfe der Strahlablenkeinrichtung können makroskopische Inhomogenitäten der Probenoberfläche erkannt werden.

Durch Drehen der Probe um eine Achse senkrecht zum Elektronenstrahl und parallel zur Probenoberfläche („Zweitrotationsachse“ des Manipulators) kann der Polarwinkel variiert werden (*„beam rocking“*). Dadurch kann man gewissermaßen mit der Ewald-Kugel das dreidimensionale reziproke Gitter abtasten. Die dabei gewonnenen Informationen gehen weit über die Aussagekraft eines einzelnen RHEED-Bildes hinaus und sind von großem Wert, wenn man die Gültigkeit von Strukturmodellen im Rahmen von Beugungstheorien beurteilen möchte.

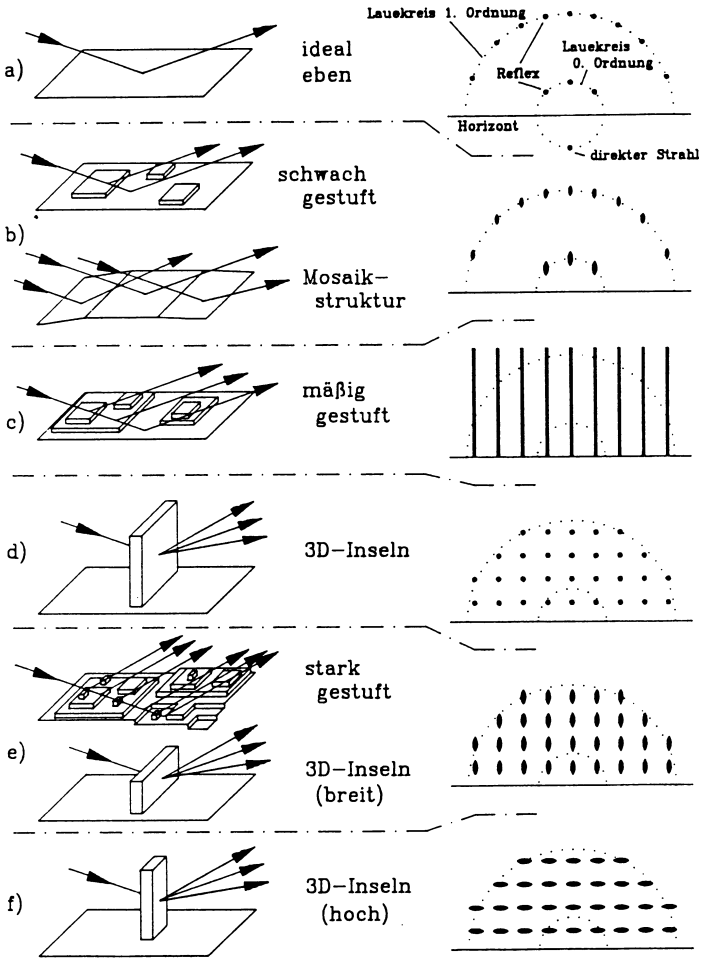

Abb. 3.7 : Qualitative Interpretation von RHEED-Beugungsbildern, entnommen aus [Kisters 94]

Für die Oberflächen vieler Einkristalle (so z.B. auch für GaAs(001)-Oberflächen) ist das Auftreten einer Überstruktur (*Oberflächenrekonstruktion*) typisch (vgl. Seite 53 f.). Dies bedeutet, daß die Atome der obersten Atomlagen so gegenüber den nach der Massivmaterial-Kristallstruktur zu erwartenden Positionen verschoben sind, daß die Periodizität der Oberflächenstruktur in bestimmten Richtungen ein ganzzahliges Vielfaches des Massivmaterial-Atomabstandes beträgt. Dieser Vervielfachung der Periodenlänge im Ortsraum entspricht im reziproken Raum eine Verkürzung der Periode auf den entsprechenden Bruchteil. Für RHEED-Beugungsbilder hat das zur Folge, daß zwischen den sogenannten „Hauptreflexen“, welche auch dann auftreten würden, wenn keine Überstruktur vorläge, zusätzliche „Zwischenreflexe“ oder „Überstrukturreflexe“ auftreten. Wenn die Periodizität in der Richtung *senkrecht* zum Elektronenstrahl dem n-fachen Atomabstand entspricht, dann erhält man (n-1) Zwischenreflexe, welche auf demselben Lauekreis liegen wie die Hauptreflexe. Wenn *parallel* zum Elektronenstrahl eine m-fach Überstuktur existiert, dann treten zwischen den nach der Massivmaterial-Kristallstruktur zu erwartenden „Hauptlauekreisen“ (m-1) zusätzliche „Zwischenlauekreise“ auf.

RHEED-Oszillationen

Während des lagenweisen Wachstums einkristalliner Schichten wurden gelegentlich Oszillationen der Intensitäten von RHEED-Beugungsreflexen gefunden (*RHEED-Oszillationen*). Die von den diffus gestreuten Elektronen verursachte Hintergrundintensität oszilliert dabei genau gegenläufig,

und die über den gesamten Raumwinkel integrierte Intensität bleibt im Wesentlichen konstant. Die Periode der Oszillation korreliert mit dem Aufwachsen von einem Monolagenäquivalent an Material.

Zur Deutung wurden zwei mögliche Mechanismen vorgeschlagen. Erstens sollte das Ausmaß der diffusen Streuung abhängig sein von der Dichte atomarer Stufen an der Oberfläche. Tatsächlich konnten Stroscio et al. am Beispiel der Homoepitaxie von Fe auf Fe(001)-Whiskeroberflächen durch Vergleich mit STM-Bildern zeigen, daß im Maximum der RHEED-Intensität ein Minimum der Stufendichte vorliegt und umgekehrt [Stroscio 93]. Zweitens können die an benachbarten atomar glatten Terrassen reflektierten Elektronen destruktiv interferieren, wenn eine Antibragg-Bedingung erfüllt ist und die mittlere Ausdehnung der Terrassen kleiner ist als die Kohärenzlänge der Elektronen. Die Spotintensität sollte nach diesem Mechanismus oszillieren, wenn die Ausdehnung der Terrassen oszilliert und dabei die Kohärenzlänge der Elektronen periodisch über- und unterschritten wird. Während der erste Mechanismus unabhängig ist vom polaren Einfallswinkel der Elektronen, sollte im zweiten Fall die Amplitude der Oszillationen von diesem Winkel abhängen. In der Praxis spielen offenbar beide Mechanismen eine Rolle.

RHEED-Oszillationen sind grundsätzlich zu erwarten, wenn das Wachstum jeder neuen Monolage durch Bildung von Keimen beginnt und anschließend die Monolage durch Anlagerung der neu eintreffenden Atome an vorhandene atomare Stufen abgeschlossen wird. Dabei oszilliert sowohl die Dichte der atomaren Stufen als auch die laterale Ausdehnung der atomar glatten Terrassen. Dieser Wachstumsmodus setzt eine hinreichende Mobilität von Adatomen auf der Oberfläche voraus, ist also nur bei hinreichend hohen Probentemperaturen zu erwarten. Bei zu tiefen Temperaturen erhält man „dreidimensionales Wachstum“ und es treten keine RHEED-Oszillationen auf. Aber auch hohe Temperaturen sind keine hinreichende Voraussetzung für solche Oszillationen. Ist zum Beispiel die Mobilität der Adatome so groß, daß das Wachstum durch „Fließen von Stufenkanten“ erfolgt („step-flow growth“), d.h. durch Anlagerung der ankommenden Atome an ständig vorhandene Stufenkanten, dann oszilliert die Stufendichte bzw. Terrassenbreite nicht. Als Ursache für ständig vorhandene Stufenkanten spielt zum einen der (absichtliche oder unabsichtliche) Fehlschnitt der Substratoberfläche relativ zu den hochsymmetrischen Kristallrichtungen (*vizinaler Schnitt*) eine Rolle. Außerdem sind Schraubenversetzungen Ausgangspunkte von Stufenkanten, wodurch es zu Spiralwachstum kommen kann, welches ebenso nicht mit RHEED-Oszillationen verbunden ist.

Da RHEED-Oszillationen mit einer Periode von einer Monolage auftreten, kann man sie sehr vorteilhaft zur Schichtdickenbestimmung heranziehen. Allerdings muß dazu gegebenenfalls eine Probenoberfläche speziell präpariert werden und das Aufwachsen bei einer ganz bestimmten Substrattemperatur erfolgen, um den erforderlichen Wachstumsmodus zu erhalten (vgl. Seite 66 ff.).

3.2.2 Rastertunnelmikroskopie (STM)

Prinzip

Bei einem Rastertunnelmikroskop (STM = Scanning Tunneling Microscope) ist eine scharfe Metallspitze an einem Piezoelement befestigt, welches durch Anlegen elektrischer Spannungen an seine x-, y- und z-Elektroden eine hochpräzise Bewegung der Spitze über Distanzen von einigen Mikrometern in allen drei Raumrichtungen ermöglicht. Mit Hilfe eines Grobantriebsmechanismus, z.B. eines mit piezoelektrischen Trägheitsmotoren ausgerüsteten Schlittens, wird die Spitze einschließlich des Piezoelementes zunächst so weit an die Oberfläche einer zu untersuchenden Probe angenähert, daß mit einer an die z-Elektrode angelegten Spannung der Abstand zwischen Spitze und Probe in kontrollierter Form bis in den Bereich von wenigen Atomdistanzen verringert werden kann. Wenn Probe und Spitze elektrisch leitfähig sind, ist es möglich, das Erreichen eines Abstandes dieser Größenordnung mit Hilfe des quantenmechanischen Tunneleffekts zu erkennen. Man legt dazu zwischen Spitze und Probe eine elektrische Spannung an und führt die Spitze heran, bis ein bestimmter Tunnelstrom fließt. Damit die Spitze die Probenoberfläche nicht verändert, darf dieser Strom nur in der Größenordnung von einigen 100 pA liegen. Man verwendet eine Regelelektronik, um die Spannung an der z-Elektrode des Piezoelements stets so nachzuführen, daß der Tunnelstrom und damit im Wesentlichen auch der Abstand zwischen Spitze und Probe konstant bleibt. Nun legt man an die x- und y-Elektroden des Piezoelements Sägezahnspannungen an, durch welche die Spitze zeilenweise über die Probenoberfläche gerastert wird. Wegen der Regelung der Spannung an der z-Elektrode folgt die Spitze dabei der Topographie der Oberfläche und man erhält ein Bild der Oberfläche, wenn man die z-Spannung gegen die Spannungen an den x- und y-Elektroden graphisch aufträgt. Dazu wird ein Rechner verwendet.

Der Tunnelstrom I hängt exponentiell vom Abstand s zwischen Spitze und Probe ab:

$$I \propto \frac{U}{s} \cdot \exp\left(-\frac{2\sqrt{2m_e}}{\hbar} \cdot \sqrt{\frac{\Phi_P + \Phi_S}{2}} \cdot s \right)$$

m_e : Ruhemasse des Elektrons
U : Spannung zwischen Spitze und Probe
Φ_P, Φ_S : Austrittsarbeiten von Probe und Spitze

Er ändert sich um ca. eine Größenordnung, wenn der Abstand um 1 Å variiert. Wegen dieser enorm starken Abstandsabhängigkeit des Tunnelstroms wird in z-Richtung eine Auflösung von Bruchteilen eines Atomabstands erreicht. Da auch die laterale Positionierung der Spitze auf Bruchteile eines Å genau erfolgen kann, ist prinzipiell die Abbildung einzelner Atome möglich.

Wenn z.B. die Probe gegenüber der Spitze auf negativem Potential liegt, dann wird genaugenommen die Spitze so nachgeführt, daß das Produkt aus der Dichte der besetzten Elektronenzustände in der Probe ρ_P, der Dichte der unbesetzten Elektronenzustände in der Spitze ρ_S und der Übergangswahrscheinlichkeit T, integriert nach der Energie, konstant bleibt. Im Rahmen der sogenannten *WKB-Näherung* bedeutet das formal:

$$I \propto \int_0^{eU} \rho_P(E)\, \rho_S(eU + E)\, T(E, eU)\, dE$$

mit

$$T(E, eU) = \exp\left(-\frac{2\sqrt{2m_e}}{\hbar} \cdot \sqrt{\frac{\Phi_P + \Phi_S}{2} + \frac{eU}{2} - E} \cdot s \right)$$

Entsprechendes gilt bei umgekehrter Polarität der angelegten Spannung U. Daher geht prinzipiell neben der reinen Topographie auch eine Variation der lokalen elektronischen Struktur des untersuchten Materials in die STM-Bilder ein.

Weiterhin ist zu bedenken, daß im Prinzip zwischen jedem Ort auf der Oberfläche der Probe und jedem Ort auf der Oberfläche der Spitze Tunnelprozesse stattfinden können. Wegen der unterschiedlichen Abstände zwischen solchen Orten sind diese „Tunnelpfade“ aber mit sehr unterschiedlichen Tunnelwahrscheinlichkeiten behaftet. Zur Bestimmung des Tunnelstroms muß die Tunnelwahrscheinlichkeitsdichte über alle Paare von Orten auf Probe und Spitze integriert werden. Daher repräsentiert ein STM-Bild eigentlich eine Faltung der Topographie der Spitze mit der Topographie der Probe. Damit das Bild möglichst nur die Topographie der Probe repräsentiert, sollte die Spitze sehr schlank sein, so daß der Tunnelstrom größtenteils vom vordersten Atom getragen wird. Die Schlankheit der Spitze ist besonders wichtig, wenn die Probenoberfläche sehr steile Strukturen aufweist. Somit kommt der Präparation von Tunnelspitzen große Bedeutung zu. Bisher gibt es dafür allerdings keine zuverlässigen Standardrezepte.

In einer neben der Hauptkammer der MBE-Anlage befindlichen „STM-Kammer“ (vgl. Abb. 3.1) steht ein kommerzielles Rastertunnelmikroskop („Micro-STM“ der Firma Omicron) zur Verfügung. Es befindet sich im Ultrahochvakuum und auch der Probentransport zwischen Hauptkammer und STM-Kammer ist ohne Verschlechterung der Vakuumbedingungen möglich. Daher ist die Rastertunnelmikroskopie als *in-situ* Methode einsetzbar. Ein mit Piezo-Trägheitsmotoren ausgestatteter Probenhalter ermöglicht, die Probe gegenüber der STM-Spitze beliebig zu verschieben. Dadurch kann man mehrere STM-Bilder an ganz verschiedenen Orten auf der Probenoberfläche aufnehmen und somit kontrollieren, ob bestimmte Strukturen wirklich für die gesamte Probe repräsentativ sind.

Mechanische Vibrationen, die von außen in das Tunnelmikroskop einkoppeln, können auf Grund der Elastizität der verwendeten Baumaterialien zu einer Bewegung der Probe relativ zum Sockel des Piezoelements führen. Sie werden von der z-Abstandsregelung kompensiert und äußern sich deshalb als Störungen im STM-Bild. Daher müssen während einer STM-Messung z.B. alle mechanischen Vakuumpumpen der MBE-Anlage abgeschaltet werden. Da aber trotzdem solche Störungen noch deutlich in Erscheinung traten, wurde inzwischen von R. Moosbühler zusammen mit dem

Autor der vorliegenden Arbeit eine Federaufhängung mit Wirbelstromdämpfung im Vakuum nachgerüstet. Damit wird eine Entkopplung von Vibrationen bezüglich aller drei Raumrichtungen erzielt. Störungen durch Vibrationen sind seither nicht mehr relevant.

Vergleich von RHEED und STM

RHEED liefert routinemäßig Informationen über die Periodizitäten der Atomanordnung an einer Oberfläche, gemittelt über einen Bereich von makroskopischer Ausdehnung, ohne daß dabei das Schichtwachstum unterbrochen werden muß. Aussagen über Strukturen mit Längenskalen von mehr als 10 nm sind mit diesem Verfahren allerdings kaum möglich und die Details der Beugungsbilder sind gelegentlich nur mit Schwierigkeiten anschaulich interpretierbar. STM ermöglicht demgegenüber eine direkte Beobachtung der Struktur von Oberflächen im Ortsraum, und zwar auf Längenskalen bis zu einigen Mikrometern. Zur Erzielung atomarer Auflösung ist allerdings eine unter Umständen langwierige Präparation der Tunnelspitze notwendig, weshalb dies nicht routinemäßig gelingt. Insgesamt ergänzen sich STM und RHEED in der Praxis sehr effektiv.

3.3 Methoden zur magnetischen Charakterisierung

Die Untersuchung der dieser Arbeit zugrundeliegenden Fragestellungen erfordert eine Bestimmung der Magnetisierung bzw. der magnetischen Momente von dünnen Fe-Schichten auf GaAs-Substraten als Funktion eines externen Magnetfeldes von bis zu einigen Tesla, sowie als Funktion der Temperatur im Bereich zwischen Zimmertemperatur und einigen wenigen Kelvin. Zur Untersuchung der Schärfe des magnetischen Phasenübergangs ist insbesondere wichtig, auch bei möglichst wenig von Null verschiedenem externen Magnetfeld temperaturabhängig messen zu können (zulässiges Restmagnetfeld: wenige mOe). Die außerordentlich dünnen Fe-Schichten erfordern dabei eine sehr hohe Meßempfindlichkeit, zumal die Magnetisierung bei Annäherung an die Curietemperatur beliebig klein wird. Um Keilschichten mit den auf Seite 25 f. erläuterten bedeutenden Vorteilen verwenden zu können, sowie um die Auswirkung eines unbeabsichtigten Schichtdickengradienten zu minimieren, ist eine Ortsauflösung im Bereich von einigen 100 µm erwünscht. Die Bestimmung atomarer magnetischer Momente erfordert außerdem eine Eichung des Meßverfahrens in absoluten Einheiten. Schließlich gilt es, das Auftreten einer magnetischen Domänenstruktur mit verschwindender mittlerer Magnetisierung vom vollständigen Verschwinden der magnetischen Ordnung unterscheiden zu können.

Von den zahlreichen bekannten magnetischen Meßverfahren kamen im vorliegenden Fall insbesondere der magneto-optische Kerr-Effekt (MOKE), die SQUID-Magnetometrie und die Mössbauer-Spektroskopie in Frage. Allerdings kann keines dieser Verfahren für sich alleine alle gestellten Forderungen erfüllen. Daher wurden diese Methoden in Kombination eingesetzt. Im Folgenden werden Einzelheiten zu diesen Meßverfahren erläutert.

3.3.1 Magneto-optischer Kerr-Effekt (MOKE)

Grundlagen

Beim magneto-optischen Kerr-Effekt (MOKE) handelt es sich ganz allgemein um eine Veränderung des Polarisationszustandes und/oder der Intensität von Licht bei der Reflexion an der Oberfläche eines magnetisierten Metalls. Einige wichtige Aspekte dieses Phänomens können bereits durch eine quasi-klassische Betrachtung qualitativ verstanden werden: Einfallendes linear polarisiertes Licht regt durch sein oszillierendes elektrisches Feld Leitungselektronen im Metall zu Schwingungen an. Wenn im Metall eine Magnetisierung vorhanden ist, die nicht parallel zum elektrischen Feldvektor des einfallenden Lichtes gerichtet ist, dann wirkt eine Lorentzkraft, welche die Elektronen auf Ellipsenbahnen ablenkt. Berücksichtigt man außerdem, daß die Elektronen auch einer „Reibungskraft“ ausgesetzt sind, etwa wegen des ohmschen Widerstands im Metall, so entsteht zusätzlich eine Drehung der Hauptachsen der Ellipsenbahnen gegenüber der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichtes. Den Polarisationszustand und die Amplitude des reflektierten Lichts erhält man durch Projektion der Ellipsenbahnen auf eine zur Reflexionsrichtung senkrechte Fläche.

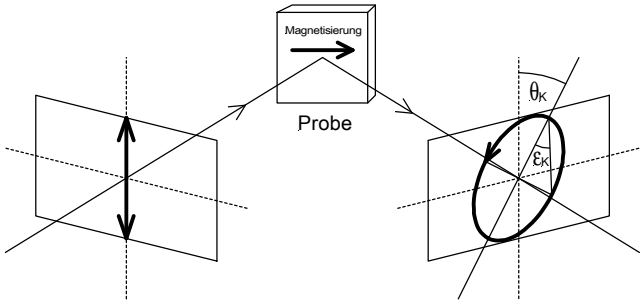

Abb. 3.8 : longitudinaler Kerr-Effekt bei „s-Polarisation“

Zur Vereinfachung betrachtet man praxisrelevante Spezialfälle: Man spricht vom *polaren Kerreffekt*, wenn linear polarisiertes Licht senkrecht zur Probenoberfläche einfällt und die Magnetisierung der Probe senkrecht zur Oberfläche orientiert ist. Vom *longitudinalen Kerreffekt* spricht man, wenn das linear polarisierte Licht schräg zum Normalenvektor der Probenoberfläche einfällt und die Magnetisierung der Probe innerhalb der Einfallsebene des Lichts parallel zur Oberfläche orientiert ist. In diesem Fall unterscheidet man weiter zwischen „s-Polarisation“ und „p-Polarisation“, je nach dem, ob der Vektor des elektrischen Feldes des einfallenden Lichtes senkrecht oder parallel zur Einfallsebene gerichtet ist. Das reflektierte Licht ist sowohl beim polaren als auch beim longitudinalen Kerreffekt elliptisch polarisiert und die große Halbachse der Polarisationsellipse ist gegenüber dem einfallenden Licht um einen bestimmten Winkel gedreht. Die genaue Definition der Winkel ε_K („*Kerr-Elliptisierung*“) und θ_K („*Kerr-Rotation*“) ist aus Abb. 3.8 zu entnehmen.

Beide Größen („Kerr-Signale“) sind erfahrungsgemäß proportional zur Vektorkomponente der *Magnetisierung M* in der Probe parallel zur Einfallsebene und innerhalb der Schichtebene, d.h. sie sind nicht etwa proportional zur magnetischen Flußdichte B. Eine theoretische Begründung dieser Tatsache kann nur auf der Basis einer quantenmechanischen Berechnung der austauschaufgespaltenen elektronischen Bandstruktur unter Einbeziehung der Spin-Bahn-Kopplung gegeben werden [Ebert 99]. Der Proportionalitätsfaktor hängt von einer ganzen Reihe verschiedener Randbedingungen ab, so z.B. von der Photonenenergie des verwendeten Lichtes, von der Art und Struktur des magnetischen Materials, von eventuell vorhandenen Abdeckschichten sowie vom Einfallswinkel und der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts (z.B. s- oder p-Polarisation). Daher ist eine dauerhafte absolute Eichung einer Kerr-Apparatur in Einheiten einer Magnetisierung kaum möglich. In den meisten Fällen kann man jedoch davon ausgehen, daß sich der Proportionalitätsfaktor zwischen M und ε_K bzw. M und θ_K bei Veränderung der Temperatur T und/oder des äußeren Magnetfeldes H nicht ändert, wenn alle anderen Parameter unverändert bleiben. Somit kann die Magnetisierung zumindest in relativen Einheiten als Funktion von H und T gemessen werden.

Bei dünnen Schichten muß die Eindringtiefe des Lichts berücksichtigt werden. In Metallen wie Fe oder Au wird die Intensität von Licht im sichtbaren Spektralbereich beim Durchlaufen einer Strecke von ungefähr 10 nm (ca. 50 ML) um den Faktor 1/e abgeschwächt. Bei Schichtdicken, die klein sind gegenüber dieser Eindringtiefe, sind die Kerr-Signale proportional zur Schichtdicke. Abdeckschichten können als Korrosionsschutz verwendet werden, wenn sie dünn genug sind, um ausreichende Kerr-Signale sicherzustellen.

Übersicht über die verwendete MOKE-Apparatur

Die in Abb. 3.9 skizzierte Apparatur wurde von E. Beaurepaire am Institut de la Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) zur Verfügung gestellt. Sie nutzt den longitudinalen Kerr-Effekt. Die Messung des Polarisationszustandes des Lichts nach Reflexion an der Probe erfolgt durch ein optisches Modulationsverfahren, welches weiter hinten in diesem Kapitel näher erläutert ist.

Das Licht eines Halbleiterlasers geht zunächst durch ein Polarisationsstrahlteilerprisma. Der aus dem Prisma austretende außerordentliche Strahl wird ausgeblendet. Der ordentliche Strahl verläßt das Prisma mit „s-Polarisation“ auf geradem Weg und trifft nach Passieren des „Quarzglasfingers“ des Kryostaten unter ca. 65° relativ zum Normalenvektor auf die Probenoberfläche auf. Durch die Wahl dieses Einfallswinkels und der „s-Polarisation“ wird eine maximale Empfindlichkeit auf Magnetisierungsänderungen in der Probe erzielt [Zak 91]. Das reflektierte Licht tritt wieder durch den Quarzglasfinger aus dem Kryostaten aus und passiert anschließend einen photoelastischen Modu-

lator, sowie ein als Analysator dienendes Polarisationsstrahlteilerprisma, bevor es schließlich mit einer Linse auf den Detektor fokussiert wird. Die Auswertung des Detektorsignals erfolgt mit Lock-In-Technik.

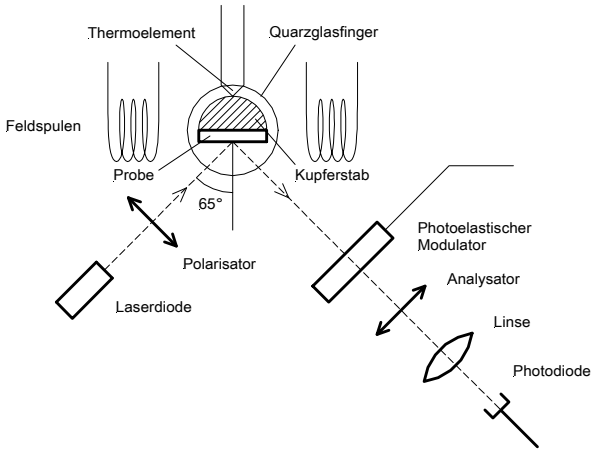

Abb. 3.9 : Der Strahlengang des MOKE-Systems

Der „Kryostat“

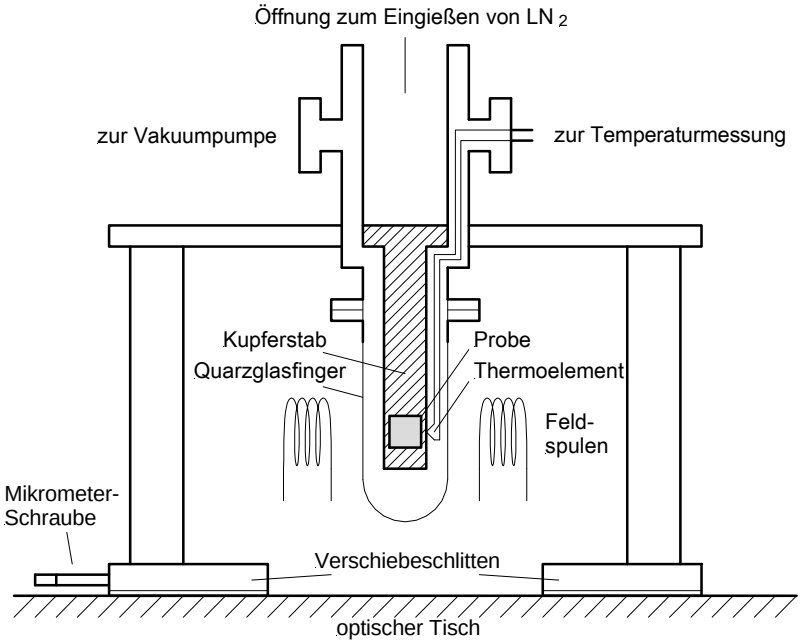

Abb. 3.10 : Der „Kryostat“ des MOKE-Systems

Die Probe wird mittels Leitsilber an einem vertikalen plangefrästen Kupferstab angeklebt, wodurch sich ein guter Wärmekontakt zwischen Probe und Kupferstab ergibt (vgl. Abb. 3.10). Daher kann ein signifikanter Temperaturgradient auf der Probenoberfläche ausgeschlossen werden. Die Probenorientierung wird so gewählt, daß die gewünschte Meßrichtung horizontal liegt und die unterschiedlich dicken Bereiche eines zu untersuchenden Stufenkeils sich horizontal nebeneinander befinden. Ein Quarzglasfinger schließt den Probenraum ab und ermöglicht die Erzeugung eines Vakuums zur thermischen Isolation, sowie um Luftfeuchtigkeit abzuhalten, die bei niedrigen Temperaturen auf der Probenoberfläche kondensieren würde. Quarzglas wurde gewählt, da es kaum paramagnetische Verunreinigungen enthält und daher die Faradaydrehung nur linear vom Magnetfeld abhängt. Am oberen Ende des Kupferstabes befindet sich ein nach oben offenes, vakuummantelisoliertes Gefäß, in das von außen flüssiger Stickstoff (LN_2) eingegossen werden kann. Auf diese Weise sind Temperaturen zwischen 300 K und ca. 80 K am Ort der Probe erzielbar. Die Temperatur kann allerdings nicht auf einen beliebigen festen Wert stabilisiert werden, daher ist der

Begriff „Kryostat“ etwas irreführend. Statt dessen gießt man zunächst gerade so viel LN_2 ein, daß die niedrigste gewünschte Temperatur unterschritten wird. Anschließend beginnt die Temperatur mit einer Rate von ca. 0.5 K/min kontinuierlich anzusteigen. Während dieses langsamen Temperaturanstiegs werden die magnetischen Messungen durchgeführt und die jeweils aktuelle Temperatur protokolliert.

Temperaturmessung im Kryostaten

Die Bestimmung der Temperatur erfolgt mit einem NiCr-Ni-Thermoelement („Typ K“). Die Referenzlötstelle des Thermopaars befindet sich außerhalb des Kryostaten und wird in ein „Wärmebad“ aus siedendem Stickstoff eingetaucht, welches eine stabile Referenztemperatur von 77.33 K bzw. -195.82 °C sicherstellt. Der Zusammenhang zwischen Thermospannung und Temperatur ist bei Thermoelementen nicht linear. Die Abweichungen von der Linearität sind bei tiefen Temperaturen besonders groß. Daher wurde eine Eichtabelle für Thermoelemente vom Typ K herangezogen, die für eine Referenztemperatur von 0°C gilt. Um kontinuierlich zu interpolieren, wurde an die Daten der Eichtabelle eine Potenzreihe numerisch angepaßt. Zur Umrechnung zwischen Thermospannung U und Temperatur T ergaben sich daraus folgende Formeln:

$$(1)\quad \frac{T}{^\circ C} = 2.500\cdot 10^{1}\cdot\frac{U}{mV} - 4.775\cdot 10^{-1}\cdot\left(\frac{U}{mV}\right)^2 + 3.038\cdot 10^{-1}\cdot\left(\frac{U}{mV}\right)^3 + 1012\cdot 10^{-1}\cdot\left(\frac{U}{mV}\right)^4 + 1346\cdot 10^{-2}\cdot\left(\frac{U}{mV}\right)^5$$

$$(2)\quad \frac{U}{mV} = 3.944\cdot 10^{-2}\cdot\frac{T}{^\circ C} + 2.660\cdot 10^{-5}\cdot\left(\frac{T}{^\circ C}\right)^2 - 1390\cdot 10^{-7}\cdot\left(\frac{T}{^\circ C}\right)^3 - 1701\cdot 10^{-10}\cdot\left(\frac{T}{^\circ C}\right)^4 - 2.899\cdot 10^{-13}\cdot\left(\frac{T}{^\circ C}\right)^5$$

Da im vorliegenden Fall eine Referenztemperatur von -195.82 °C verwendet wurde, muß zunächst mit Formel (2) die Thermospannung berechnet werden, die ein Thermopaar mit Referenztemperatur 0 °C bei einer Meßtemperatur von -195.82 °C liefern würde: $U_{-195.82°C,0°C}$ = -5.826 mV. Dieser Wert wird zu der tatsächlich gemessenen Thermospannung addiert und die Summe in Formel (1) eingesetzt. Die Temperatur am Ort des Thermoelements in Kelvin bekommt man dann durch Addition von 273.15.

Erzeugung von Magnetfeldern am Ort der Probe

Die magnetische Feldstärke wird im Folgenden stets in der cgs-Einheit Oersted (Oe) angegeben. Für die Umrechnung in die offiziellen SI-Einheiten gilt:

$$1\ A/m = 4\pi\cdot 10^{-3}\ Oe$$

Für Magnetfelder von bis zu 50 Oe wird ein Paar von Luftspulen in Helmholtz-Anordnung verwendet. Luftspulen haben gegenüber von Spulen mit Eisenkern eine wesentlich geringere Induktivität. Dies ist wichtig, wenn man das Magnetfeld schnell ändern möchte. Außerdem hat man bei Luftspulen eine zuverlässige Proportionalität zwischen dem Strom I in der Spule und der Stärke H des Magnetfeldes, während ein Elektromagnet mit Eisenkern einen mehr oder weniger nichtlinearen und hysteresebehafteten Zusammenhang zwischen dem Feld H im Luftspalt und dem Spulenstrom I aufweist. Mittels Luftspulen können auch sehr kleine Magnetfelder mit hoher Genauigkeit und guter Reproduzierbarkeit erzeugt werden, wie es z.B. erforderlich ist, um zufällig vorhandene Magnetfelder am Ort einer Probe möglichst perfekt zu kompensieren. Die Kalibrierung mit einer geeichten Hallsonde ergab im vorliegenden Fall einen Proportionalitätsfaktor von 8 Oe/A.

Die Stromversorgung der Feldspulen erfolgt mit einem „Bipolar Operational Power Supply“ der Firma KEPCO. Die angelegte Eingangsspannung kann wahlweise den Ausgangsstrom oder die Ausgangsspannung steuern. Da das Magnetfeld zum Strom proportional ist, wurde der Modus zur Steuerung des Ausgangsstroms verwendet. Eine Eingangsspannung von 1 V führt dabei zu einem Strom von 1 A. Ein Gleichstromanteil („Offsetstrom“) kann mit Hilfe eines Potentiometers eingestellt werden. Dies ist unter anderem nützlich zur Kompensation des Erdmagnetfeldes oder anderer sta-

tischer Felder am Ort der Probe. Der Gleichstrom reagiert allerdings sehr empfindlich auf eine Betätigung des Potentiometers, weshalb eine präzise Justierung schwierig ist.

Die Lichtquelle

Es wird eine Halbleiter-Laserdiode verwendet, die rotes Licht der Wellenlänge 670 nm emittiert. Sie wird über ein stabilisiertes Netzgerät („Gossen-Konstanter“) mit einer Gleichspannung von 4.5 V versorgt. Aus der Laserdiode tritt das Licht als breites konvergentes Bündel aus. Die Brennweite kann durch Justieren einer eingebauten Linse variiert werden. Um eine hohe Ortsauflösung zu erhalten, wird sie so eingestellt, daß der Leuchtfleck auf der Probe so klein wie möglich ist. Es wird ein praktisch kreisförmiger Leuchtfleck von ca. 0.5 mm Durchmesser erreicht. Zwar setzt das Modulationsverfahren grundsätzlich monochromatisches Licht voraus, eine so hohe Kohärenz wie bei Laserlicht ist aber eigentlich gar nicht erforderlich. Die Kohärenz kann sogar von Nachteil sein, weil dadurch unerwünschte Interferenzeffekte auftreten können. Dies bildete bei den durchgeführten Messungen allerdings kein Problem.

Erwärmung der Probe durch den Lichtstrahl

Da ein Teil des auf die Probe auftreffenden Laserlichts absorbiert wird, ist eine lokale Erwärmung der Probe zu erwarten. Zur Abschätzung der Größenodnung dieses Effekts kann auf eine von F. Bammes durchgeführte Berechnung des Wärmeausbreitungsprozesses in typischen Proben zurückgegriffen werden [Bammes 99]. Dabei wird eine flächige Wärmesenke an der Rückseite eines 1 mm dicken Substrats angenommen und für die Wärmeleitfähigkeit von Substrat- und Schichtmaterial ein Wert von 1 W/m·K angesetzt. Mit einem Radius des beleuchteten Bereichs von 0.3 mm und einer absorbierten Leistung von 1 mW folgt eine Temperaturerhöhung von ca. 1 K. Die Temperaturerhöhung bei den im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben sollte allerdings wesentlich geringer sein, da erstens nicht die gesamte Laserleistung von 1 mW in der Probe absorbiert wird und zweitens die spezifische Wärmeleitfähigkeit von GaAs größer als 50 W/m·K ist [Landolt-Börnstein 82]. Sie wird daher im folgenden vernachlässigt.

Der Verschiebeschlitten

Um den Laserstrahl gezielt auf verschieden dicke Bereiche einer Stufenkeil-Probe richten zu können, wurde der gesamte Kryostat auf einem Präzisionsschlitten montiert. Damit kann die Probe relativ zum Strahl horizontal verschoben werden. Der Positionierfehler ist dabei kleiner als ± 0.01 mm. Allerdings muß beachtet werden, daß sich beim Verschieben des Kryostaten der Auftreffwinkel des Lichtstrahls auf dem Glasfinger verändert, wodurch der Lichtbrechungswinkel variiert. Der Laserspot auf der Probe bewegt sich daher nicht exakt proportional zum Verschiebeweg des Kryostaten.

Der Detektor

Zum Nachweis des von der Probe reflektierten Lichtes wird eine Fotodiode der Firma Hamamatsu verwendet, deren aktive Fläche einen Durchmesser von 5 mm hat. Mit Hilfe einer Linse wird das auftreffende Licht zu einem Fleck mit Durchmesser 3 mm gebündelt. Dieser Fleck ist deutlich kleiner als die aktive Fläche und hat zu den Rändern dieser Fläche einen gewissen Abstand. So wird erreicht, daß kleine Verschiebungen des Leuchtflecks, wie sie z.B. durch mechanische Vibrationen verursacht werden können, nicht zu einer Änderung der auf der aktiven Fläche auftreffenden Lichtleistung führen. Der Fleck soll nicht sehr scharf fokussiert sein, da sonst die Empfindlichkeitsinhomogenitäten auf der aktiven Fläche bei Verschiebungen des Leuchtflecks zu einer merklichen Änderung des Detektorsignals führen würden und auch die zulässige Leuchtdichte überschritten werden könnte, was eine lokale Beschädigung der Fotodiode nach sich ziehen würde, welche die Empfindlichkeitsinhomogenitäten erhöht. Ein elektronischer Verstärker wandelt den Fotostrom in eine Ausgangsspannung um. Die Bandbreite dieses Verstärkers beträgt ein Mehrfaches der Frequenz der optischen Modulation von 50 kHz. Da das Licht der Laserdiode bereits eine gewisse lineare Polarisation aufweist, kann durch Verdrehen der Lichtquelle gegenüber dem Polarisator die Intensität des Lichtstrahls so eingestellt werden, daß der Dynamikbereich des Detektors gut ausgenutzt wird.

Der photoelastische Modulator

Um zur Detektion des Polarisationszustandes des von der Probe reflektierten Lichts ein Lock-In-Verfahren nutzen zu können, wird dieses Licht zunächst durch einen photoelastischen Modulator

vom Typ PEM-90 der Firma HINDS geleitet. Die entscheidende Komponente dieses Modulators ist ein Quader aus Quarzglas. Eine uniaxiale elastische Deformation senkrecht zur Lichtausbreitungsrichtung führt dazu, daß die Ausbreitungsgeschwindigkeit für linear polarisiertes Licht abhängig wird von der Polarisationsrichtung. Diese Erscheinung bezeichnet man als lineare Spannungsdoppelbrechung bzw. Photoelastizität. Einfallendes, beliebig elliptisch polarisiertes Licht kann man sich zusammengesetzt denken aus je einer linear polarisierten Komponente parallel und senkrecht zur Achse der elastischen Deformation. Wegen der unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten dieser beiden Komponenten ändert sich beim Durchlaufen des Materials die Phasenverschiebung zwischen diesen Komponenten, und zwar in erster Näherung proportional zur relativen elastischen Dehnung. Durch einen piezoelektrischen Wandler wird der Quarzglasquader parallel zu seiner längsten Kante („Modulatorachse“) zu elastischen Schwingungen mit seiner Eigenfrequenz von $f \approx 50$ kHz angeregt. Dadurch oszilliert die Phasenverschiebung φ zwischen den beiden linear polarisierten Komponenten des Lichtes sinusförmig: $\varphi(t) = \varphi_0 \cdot \sin(2\pi f \cdot t)$. Die Amplitude der mechanischen Schwingung kann am Steuergerät des Modulators vorgegeben werden. Sie bestimmt die Amplitude φ_0 der oszillierenden Phasenverschiebung. Zu beachten ist dabei, daß φ_0 von der Wellenlänge des Lichts abhängt.

Eine anschaulich besonders leicht nachvollziehbare Situation ergibt sich, wenn linear polarisiertes Licht auf den Modulator trifft, dessen Polarisationsebene um 45° gegenüber der Modulatorachse gedreht ist. Dann haben die beiden linear polarisierten Komponenten parallel und senkrecht zur Modulatorachse gleiche Amplitude und gleiche Phasenlage. Für $\varphi_0 = \pi/2 = 90°$ entspricht die Amplitude der vom Modulator bewirkten Phasenverschiebung einer Verschiebung der Wellenzüge um ein Viertel der Wellenlänge ($\pm\lambda/4$). Das Licht, das den Modulator verläßt, wechselt daher in diesem Fall periodisch zwischen linearen und zirkularen Polarisationszuständen (vgl. Abb. 3.11 oben). Für $\varphi_0 = \pi = 180°$ hat man eine maximale Verschiebung der Wellenzüge um eine halbe Wellenlänge ($\pm\lambda/2$) und die Polarisationszustände des transmittierten Lichts wechseln in noch komplizierterer Weise (vgl. Abb. 3.11 unten).

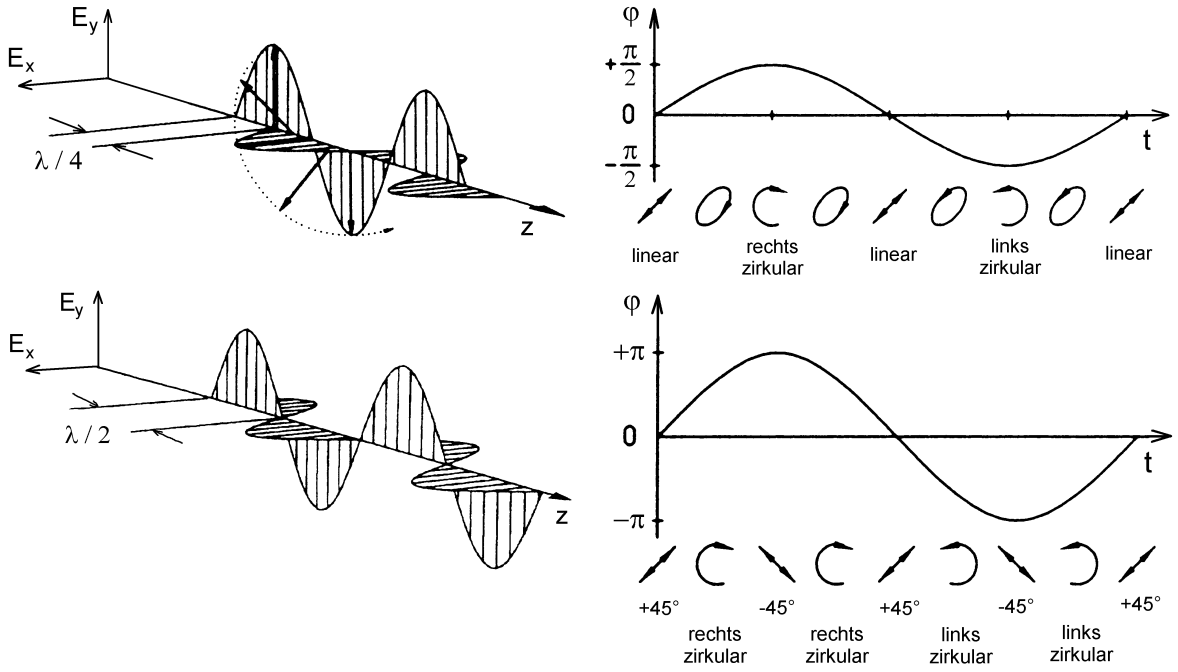

Abb. 3.11 Veranschaulichung der Wirkung des photoelastischen Modulators auf linear polarisiertes Licht, dessen Polarisationsrichtung unter 45° zur Modulatorachse orientiert ist. Linke Seite: Komponenten E_x, E_y des transmittierten Lichtes parallel und senkrecht zur Modulatorachse, zu einer festen Zeit t, als Funktion der Ortskoordinate z, bei einer Phasenverschiebung von $j = 90°$ (oben) und $j = 180°$ (unten). Rechte Seite: zeitlicher Verlauf der Phasenverschiebung j mit zugehörigen Polarisationszuständen des transmittierten Lichtes bei einer Modulationsamplitude von $j_0 = 90°$ (oben) und $j_0 = 180°$ (unten).

Bestimmung der Kerr-Elliptisierung e_K und der Kerr-Rotation q_K

Um die Wirkung des photoelastischen Modulators sowie des dahinter angeordneten Analysators auf das von der Probe reflektierte Licht in voller Allgemeinheit zu beschreiben, wird im Folgenden der *Jones-Formalismus* benutzt [Garreau 97b] [Azzam 77]. Es wird sich dabei zeigen, daß aus bestimmten Fourierkomponenten des am Detektor registrierten zeitlichen Verlaufs der Lichtintensität eindeutig und quantitativ auf den Polarisationszustand des in den Modulator eintretenden Lichtes geschlossen werden kann. Dadurch können im Endeffekt die beiden Größen ε_K (Kerr-Elliptisierung) und θ_K (Kerr-Rotation) getrennt voneinander in absoluten Einheiten bestimmt werden.

Der Polarisationszustand einer homogenen, monochromatischen, transversal-elektrischen, ebenen Welle mit Kreisfrequenz ω und Wellenzahl k, welche sich parallel zur z-Achse eines kartesischen xyz-Koordinatensystems ausbreitet, kann durch folgenden *Jones-Vektor* ausgedrückt werden:

$$\vec{J} = Ae^{i\delta}\begin{pmatrix}\cos\theta\cos\varepsilon - i\sin\theta\sin\varepsilon\\ \sin\theta\cos\varepsilon + i\cos\theta\sin\varepsilon\end{pmatrix}$$

Der Vektor des elektrischen Feldes in der xy-Ebene ergibt sich daraus zum Zeitpunkt t am Ort z mit der Beziehung:

$$\vec{E}(z,t) = Re\left[\vec{J}e^{i(\omega t - kz)}\right]$$

Der Polarisationszustand wird also durch vier Größen eindeutig festgelegt: Amplitude A, absolute Phase δ, Azimutwinkel θ, Elliptizitätswinkel ε. Dabei gilt $-\pi \le \delta < \pi$, $-\pi/2 \le \theta \le \pi/2$, $-\pi/4 \le \varepsilon \le \pi/4$. Diese Größen sind in Abb. 3.12 skizziert.

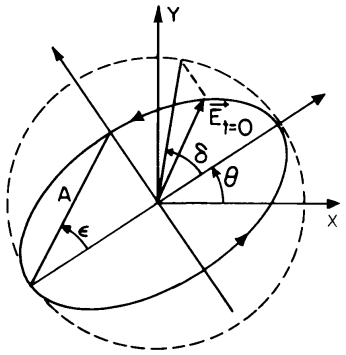

Abb. 3.12 : Veranschaulichung der Größen A, d, q, e

Die Wirkung des Modulators auf das durch ihn hindurchtretende Licht wird durch Multiplikation des Jones-Vektors mit folgender Matrix beschrieben, wenn die Modulatorachse parallel zur x-Achse des Koordinatensystems orientiert ist:

$$\begin{pmatrix}e^{i\varphi} & 0\\ 0 & 1\end{pmatrix}$$

Dabei ist $\varphi = \varphi_0 \cdot \sin(\omega_M \cdot t)$, wobei φ_0 die Modulationsamplitude und $\omega_M = 2\pi f$ die Kreisfrequenz der Modulation repräsentiert. Die Wirkung des Analysators, der unter einem Winkel α gegenüber der Achse des Modulators verdreht ist, wird schließlich durch Multiplikation mit einer Drehmatrix

$$\begin{pmatrix}\cos\alpha & \sin\alpha\\ -\sin\alpha & \cos\alpha\end{pmatrix}$$

und einer Projektionsmatrix

$$\begin{pmatrix}1 & 0\\ 0 & 0\end{pmatrix}$$

beschrieben. Der Polarisationszustand der Lichtwelle beim Verlassen des Analysators ist also durch folgenden Jones-Vektor gegeben:

$$\vec{J}_f = Ae^{i\delta}\begin{pmatrix}1 & 0\\ 0 & 0\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\cos\alpha & \sin\alpha\\ -\sin\alpha & \cos\alpha\end{pmatrix}\begin{pmatrix}e^{i\varphi} & 0\\ 0 & 1\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\cos\theta\cos\varepsilon - i\sin\theta\sin\varepsilon\\ \sin\theta\cos\varepsilon + i\cos\theta\sin\varepsilon\end{pmatrix}$$

Die am Detektor registrierte Intensität ergibt sich als Skalarprodukt dieses Vektors mit seinem hermitesch adjungierten Vektor:

$$I = \vec{J}_f^{+}\cdot\vec{J}_f = A^2\cdot\Big[\ (\sin\theta)^2(\cos\varepsilon)^2 + (\cos\theta)^2(\sin\varepsilon)^2 + (\cos\alpha)^2\cos(2\theta)\cos(2\varepsilon) + \\ + \tfrac{1}{2}\sin(2\alpha)\sin(2\theta)\cos(2\varepsilon)\cos\varphi + \tfrac{1}{2}\sin(2\alpha)\sin(2\varepsilon)\sin\varphi\ \Big]$$

Für kleine θ und kleine ε kann man nähern: $(\sin\theta)^2 \approx 0$, $(\cos\theta)^2 \approx 1$, $\cos(2\theta) \approx 1$, $(\sin\varepsilon)^2 \approx 0$, $(\cos\varepsilon)^2 \approx 1$, $\cos(2\varepsilon) \approx 1$. Wenn man die Winkel im Bogenmaß angibt, kann man außerdem schreiben: $\sin(2\theta) \approx 2\theta$, $\sin(2\varepsilon) \approx 2\varepsilon$. Damit erhält man:

$$I = A^2\cdot\Big[\ (\cos\alpha)^2 + \sin(2\alpha)\cdot\theta\cdot\cos\varphi + \sin(2\alpha)\cdot\varepsilon\cdot\sin\varphi\ \Big]$$

Die Funktionen $\cos\varphi$ und $\sin\varphi$ können in eine Fourierreihe entwickelt werden, wobei als Koeffizienten J_n die Bessel-Funktionen erster Gattung n-ter Ordnung auftreten:

$$\cos\varphi = \cos\big(\varphi_0\sin\omega_M t\big) = 2\sum_{k=0}^{\infty}\Big\{J_{2k}(\varphi_0)\cos\big[(2k)\omega_M t\big]\Big\} = 2J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0)\cdot\cos(2\omega_M t)\ +\ \ldots$$

$$\sin\varphi = \sin\big(\varphi_0\sin\omega_M t\big) = 2\sum_{k=0}^{\infty}\Big\{J_{2k+1}(\varphi_0)\sin\big[(2k+1)\omega_M t\big]\Big\} = 2J_1(\varphi_0)\cdot\sin(\omega_M t)\ +\ \ldots$$

Damit folgt die Fourierentwicklung der Intensität am Detektor:

$$I = \underbrace{A^2\cdot\Big[(\cos\alpha)^2 + 2J_0(\varphi_0)\sin(2\alpha)\cdot\theta\Big]}_{I_{DC}}\ + \\ + \underbrace{A^2\cdot 2J_1(\varphi_0)\sin(2\alpha)\cdot\varepsilon}_{I_{1f}}\cdot\sin(\omega_M t)\ +\ \underbrace{A^2\cdot 2J_2(\varphi_0)\sin(2\alpha)\cdot\theta}_{I_{2f}}\cdot\cos(2\omega_M t)$$

Ein Lock-In-Verstärker, an dessen Eingang die Ausgangsspannung des Detektors angeschlossen ist, kann die Koeffizienten, die in dieser Entwicklung auftreten, messen. Wenn er mit der einfachen Modulationsfrequenz $f = \omega_M/2\pi$ als Referenzfrequenz versorgt wird, ist seine Ausgangsspannung U_{1f} („1f-Signal“) proportional zum Effektivwert I_{1f} der Fourierkomponente mit Kreisfrequenz ω_M. Wird er mit der doppelten Modulationsfrequenz $2f = 2\omega_M/2\pi$ als Referenz versorgt, dann entspricht seine Ausgangsspannung U_{2f} („2f-Signal“) dem Effektivwert der Fourierkomponente I_{2f} mit Kreisfrequenz $2\omega_M$. Der zeitlich konstante Beitrag I_{DC} zur Gesamtintensität am Detektor kann gemessen werden, indem man die Ausgangsspannung des Detektors nicht nur an den Eingang des Lock-In-Verstärkers, sondern zusätzlich auf einen Analog/Digital-Wandler legt. Da die Amplitude der zeitlich oszillierenden Komponenten dieser Spannung vernachlässigbar klein ist gegenüber dem zeitlich konstanten Anteil U_{DC} („DC-Signal“) kann dabei auf ein Tiefpaßfilter verzichtet werden. Es gilt also:

$$U_{1f} = C\cdot\frac{1}{\sqrt{2}}\cdot I_{1f}\quad,\quad U_{2f} = C\cdot\frac{1}{\sqrt{2}}\cdot I_{2f}\quad,\quad U_{DC} = C\cdot I_{DC}$$

Wegen der Effektivwertbildung des Lock-In-Verstärkers treten hier Faktoren $1/\sqrt{2}$ auf. Man erkennt in obiger Formel, daß das 1f-Signal Information über den Elliptizitätswinkel ε enthält, während das 2f-Signal den Azimutwinkel θ verkörpert. Allerdings sind diese Signale nicht unabhängig von der Amplitude A und der Detektorempfindlichkeit C. Als Maß für das Produkt $A^2\cdot C$ kann das DC-Signal herangezogen werden, wenn es unabhängig ist von den Unbekannten θ und ε. Daher wählt man φ_0 so, daß die Besselfunktion J_0 verschwindet. Die erste Nullstelle dieser Funktion liegt bei $\varphi_0 = 137.8° = 2.405$ rad (entspricht 0.3828 Wellenlängen). Für diese Modulatoreinstellung gilt: $J_1(\varphi_0) = 0.5191$ und $J_2(\varphi_0) = 0.4318$. Das sind jeweils 89% des Maximalwertes dieser Funktionen. Daher ist bei dieser Wahl von φ_0 die Empfindlichkeit der 1f- und 2f-Signale auf Änderungen von ε bzw. θ kaum reduziert gegenüber dem jeweiligen Optimum. Es gilt nun:

$$\frac{U_{1f}}{U_{DC}} = \sqrt{2} \cdot 0.5191 \cdot \frac{\sin(2\alpha)}{(\cos\alpha)^2} \cdot \varepsilon \quad , \quad \frac{U_{2f}}{U_{DC}} = \sqrt{2} \cdot 0.4318 \cdot \frac{\sin(2\alpha)}{(\cos\alpha)^2} \cdot \theta$$

Um im 1f- und 2f-Signal minimales Rauschen zu erzielen, stellt man den Analysator auf $\alpha = 45°$ ein, denn dann ist $\sin(2\alpha) = 1$, also maximal. Um diesen Winkel genau zu treffen, kann man die Tatsache ausnutzen, daß bei dieser Einstellung das DC-Signal wegen $(\cos\alpha)^2 = 0.5$ gerade halb so stark ist, wie sein Maximalwert bei $\alpha = 0°$. Damit folgt schließlich:

$$\varepsilon = 0.6811 \text{ rad} \cdot \frac{U_{1f}}{U_{DC}} \quad , \quad \theta = 0.8188 \text{ rad} \cdot \frac{U_{2f}}{U_{DC}}$$

Es ist zu beachten, daß der Meßwert für θ nur dann identisch ist mit der Kerr-Rotation θ_K, wenn die Achse des Modulators genau parallel ist zur Polarisationsrichtung des auf die Probe einfallenden linear polarisierten Lichtes. Anderenfalls entspricht θ der Summe aus θ_K und dem Winkel θ_M zwischen der Modulatorachse und dieser Polarisationsrichtung. Ein zu großes θ_M kann zur Übersteuerung des Lock-In führen und es würde im Extremfall auch die oben gemachte Näherung für kleine θ nicht mehr gelten. Daher muß in der Praxis eine Feinjustierung auf $\theta_M \approx 0$ erfolgen. Dazu wird die Probe periodisch ummagnetisiert und θ_M so eingestellt, daß die zur Ummagnetisierung synchronen Sprünge im 2f-Signal symmetrisch um Null erfolgen.

Der Meßwert für ε sollte nach der Berechnung nicht von θ_M abhängen, also unmittelbar die Kerr-Elliptisierung ε_K repräsentieren. In der Praxis beobachtet man jedoch eine Änderung des 1f-Signals beim Drehen des Polarisators. Dies beruht vermutlich auf einer linearen Spannungsdoppelbrechung im Quarzglasfinger des Kryostaten auf Grund nicht völlig spannungsfreier Montage. Dadurch wird das mit linearer Polarisation eintreffende Licht etwas elliptisiert und das Ausmaß dieser Elliptisierung sollte tatsächlich vom Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts und der Richtung der mechanischen Spannung im Quarzglasfinger abhängen. Zu ε_K addiert sich also die Elliptisierung durch Spannungsdoppelbrechung. Diesen konstanten Wert könnte man im Prinzip mit einem Babinet-Soleil-Kompensator ausgleichen, um bei nichtmagnetisierter Probe ein Verschwinden des 1f-Signals zu erreichen. Dies war bei den durchgeführten Messungen jedoch nicht erforderlich, denn kleine konstante Abweichungen zwischen ε und ε_K bzw. θ und θ_K werden eliminiert, wenn man bei zwei entgegengesetzten Magnetisierungszuständen der Probe mißt und die Differenz bildet.

Das mit dem beschriebenen Modulationsverfahren erzielbare Signal-Rausch-Verhältnis kann im Prinzip bei hinreichend hohem Aufwand auch ohne optische Modulation erreicht werden. Das System wird jedoch durch die optische Modulation robuster. Insbesondere wird es unempfindlicher gegenüber Streulicht. Außerdem ist eine getrennte Bestimmung von Kerr-Rotation und Kerr-Elliptisierung möglich. Beide Größen enthalten zwar im Wesentlichen die gleiche magnetische Information über die Probe, der Faraday-Effekt in einem vom Lichtstrahl durchsetzten Material, wie dem hier benutzten Quarzglasfinger, der dem an die Probe angelegten Magnetfeld ausgesetzt ist, wirkt sich jedoch auf den Meßwert der Elliptizität ε weniger stark störend aus als auf den Meßwert des Azimutwinkels θ.

Eine gewisse Drift des Meßsignals auf Grund von Störeinflüssen, die den Polarisationszustand des Lichts vor dem Eintritt in den Modulator verändern, kann durch das optische Modulationsverfahren nicht unterdrückt werden. Eine mögliche Ursache dafür sind Bewegungen der optischen Komponenten. Man versucht, solche Bewegungen z.B. durch einen sehr starren mechanischen Aufbau und durch Vermeidung von Temperaturschwankungen zu minimieren.

Der „dc-MOKE“ - Meßmodus

Um die *Magnetisierungskurve* einer Probe zu bestimmen, d.h. die Abhängigkeit der Magnetisierung von einem externen Magnetfeld, kann man z.B. das Magnetfeld kontinuierlich verändern und dabei die Kerr-Rotation oder die Kerr-Elliptisierung aufzeichnen. In diesem Fall wirkt sich jedoch die Drift des Meßsignals während der Registrierung einer *gesamten* Magnetisierungskurve aus. Prinzipiell könnte man dieses Problem mindern, indem man über viele Meßdurchläufe mittelt. Dabei gibt es jedoch die zusätzliche Komplikation, daß bei dem verwendeten Aufbau die Probentemperatur nicht stabilisiert werden kann. Bei Proben mit sehr schwachem magnetischen Signal, wie sie im Rahmen der vorliegenden Arbeit zu untersuchen waren, kann die Drift von der Größenordnung des eigentlichen magnetischen Effektes sein. Die im folgenden erläuterten Meßmodi, welche mit einer Modulation des externen Feldes arbeiten, haben deshalb entscheidende Vorteile.

Der „digital-ac-MOKE“ - Meßmodus

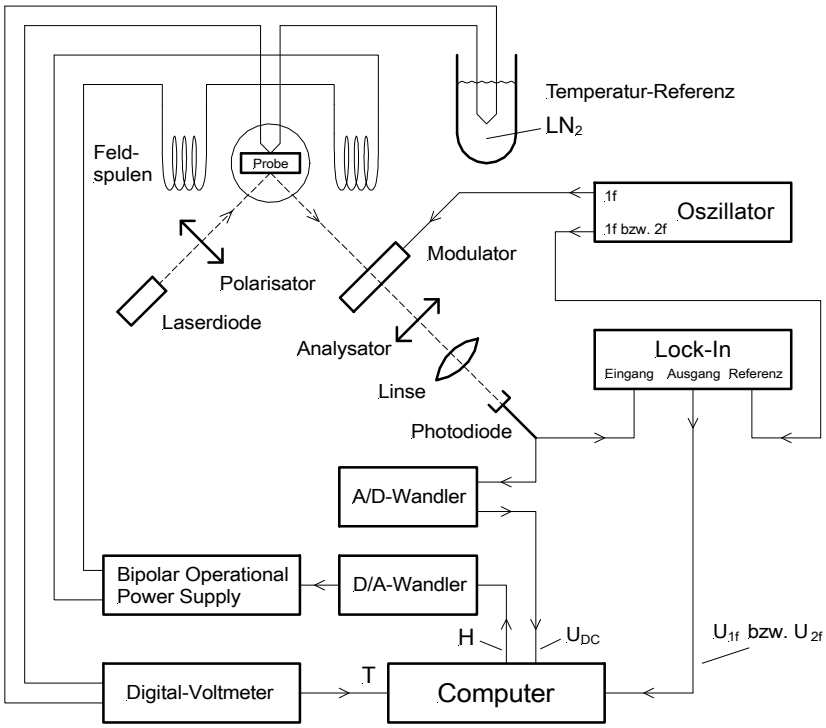

Abb. 3.13 : Blockschaltbild zum „digital-ac-MOKE“ - Meßmodus

Der „digital-ac-MOKE“-Meßmodus ermöglicht die Registrierung der bei einem bestimmten Magnetfeld auftretenden Kerr-Rotation θ_K bzw. Kerr-Elliptisierung ε_K als Funktion der Temperatur (vgl. Abb. 3.13). Dabei wird die Probe mittels kurzer Magnetfeldimpulse (typische Dauer 100 ms) periodisch ummagnetisiert (Impulsfolgezeit typ. 800 ms) (vgl. Abb. 3.14). Nach dem Ende eines jeden Ummagnetisierungsimpulses wird der Strom durch die Feldspulen so eingestellt, daß am Ort der Probe das gewünschte Meßfeld herrscht, und zwar immer mit dem Vorzeichen des vorherigen Ummagnetisierungsimpulses. Wegen der Trägheit des Tiefpaßfilters des Lock-In-Verstärkers (typ. Zeitkonstante 100 ms) tritt nach jedem Ummagnetisierungsimpuls eine Relaxation der Ausgangsspannung dieses Verstärkers auf (vgl. Abb. 3.14 d). Diese Relaxation wird während einer bestimmten Verzögerungszeit (typ. 700 ms) abgewartet, bevor die Ausgangsspannung digitalisiert und registriert wird. Die Lock-In-Ausgangsspannung hat daher genug Zeit, um sich bis auf $(1/e)^7 \approx 0.1\%$ auf den neuen Wert einzustellen. Die mit den Ummagnetisierungen verbundenen Änderungen des Kerr-Signals werden während eines Zeitintervalles gemittelt, in welchem sich die Temperatur um einen bestimmten Wert ändert (z.B. um 0.1 K in ca. 12 Sekunden). Dieser Mittelwert wird dann der während dieses Zeitintervalles herrschenden mittleren Temperatur zugeordnet. Er entspricht der doppelten Kerr-Rotation bzw. Kerr-Elliptisierung der Probe bei dem verwendeten Meßfeld. Die Drift kann sich bei diesem Verfahren nur während des kurzen Zeitraums zwischen zwei Ummagnetisierungen auswirken. Die Wahl der verschiedenen Zeitparameter stellt einen Kompromiß dar zwischen der Unterdrückung höherfrequenten Rauschens, der Ermöglichung der Relaxation des Lock-In-Signals und der Einschränkung der Drift auf ein möglichst kurzes Zeitintervall.

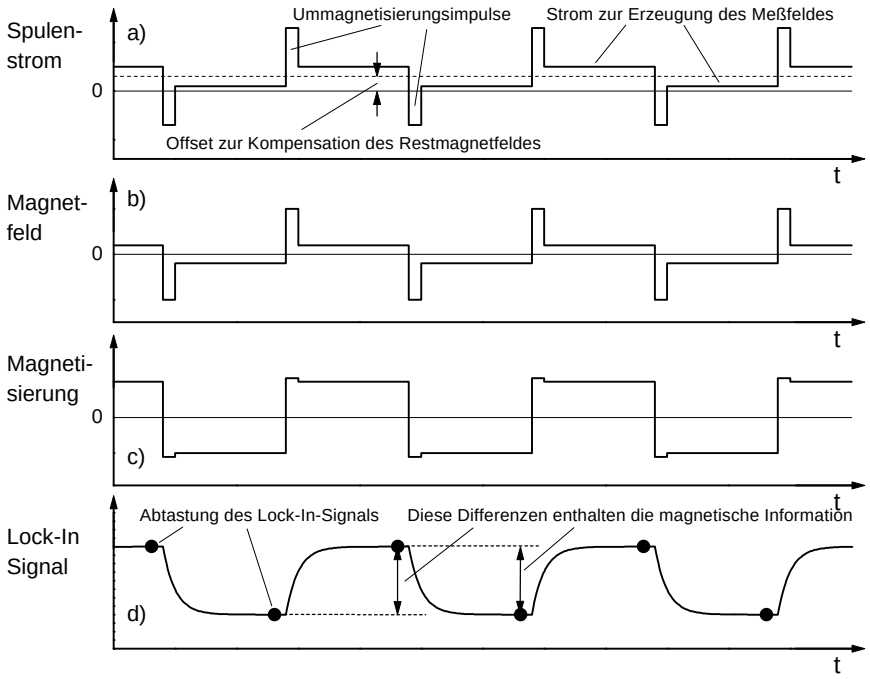

Abb. 3.14 : Prinzip der Feldmodulation beim „digital-ac-MOKE“-Meßmodus

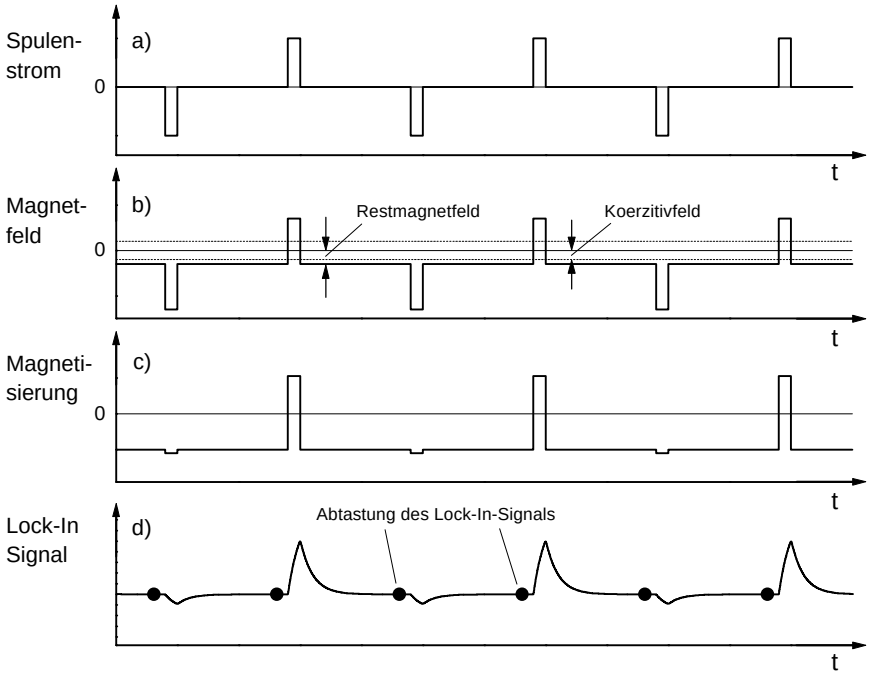

Abb. 3.15 : Asymmetrisches Lock-In-Signal bei nicht hinreichend kompensiertem Restmagnetfeld

Wenn man sich für das Kerr-Signal im remanenten Zustand als Funktion der Temperatur interessiert, könnte man daran denken, zwischen den Ummagnetisierungsimpulsen den Strom durch die Feldspulen völlig abzuschalten. Das Magnetfeld ist damit aber nicht unbedingt gleich Null, sondern man hat unter Umständen ein nicht-vernachlässigbares „Restmagnetfeld“. Zum Beispiel kann das Erdmagnetfeld eine Rolle spielen oder Streufelder aus benachbarten magnetisierten Materialien. Es ist wichtig, sich klar zu machen, daß bei der Untersuchung eines idealen Ferromagneten mit diesem „digital-ac-MOKE“-Meßverfahren das Meßsignal verschwinden würde, wenn das Koerzitivfeld H_C der Probe kleiner wird als das Restmagnetfeld (vgl. Abb. 3.15). Da bei Annäherung an die Curietemperatur T_C das Koerzitivfeld beliebig klein wird, würde das Signal also schon bei einer

Temperatur verschwinden, welche kleiner ist als T_C. Ein an realen Proben gefundenes steiles Einmünden des Meßsignals auf den Wert Null bei einer bestimmten Temperatur könnte deshalb bei nicht-vernachlässigbarem Restmagnetfeld fälschlicherweise als magnetischer Phasenübergang interpretiert werden. Um also tatsächlich im gesamten Temperaturbereich den Verlauf der remanenten Magnetisierung unverfälscht zu erfassen, ist eine präzise Kompensation des statischen Restmagnetfeldes am Ort der Probe erforderlich. Dazu verwendet man einen zeitlich konstanten Offsetstrom durch die Feldspulen (vgl. Abb. 3.14 a). Ein gutes Kriterium für die korrekte Justierung dieses Offsetstroms ist ein symmetrischer Zeitverlauf des Lock-In-Ausgangssignals (vgl. Abb. 3.14 d im Unterschied zu Abb. 3.15 d).

Wenn man sich für die Abhängigkeit der Magnetisierung vom externen Magnetfeld bei fester Temperatur interessiert, kann man mehrere „digital-ac-MOKE“-Messungen bei verschiedenen Meßfeldern in einem gewissen Temperaturintervall um die interessierende Temperatur durchführen und die dabei erhaltenen Temperaturverläufe des Kerr-Signals, gegebenenfalls nach geeigneter Interpolation, bei der interessierenden Temperatur auswerten. Dies führt zu einer deutlich höheren Meßgenauigkeit als eine entsprechende „dc-MOKE“-Messung, ist allerdings auch mit einem erheblich höheren Zeitaufwand verbunden. Außerdem ist der „digital-ac-MOKE“-Meßmodus nur anwendbar, wenn bekannt ist, daß die Magnetisierungskurve der Probe punktsymmetrisch ist bezüglich des Koordinatenursprungs. Dies kann im allgemeinen vorausgesetzt werden. Nur bei sehr speziellen Systemen (z.B. „spin-valves“) ist dies nicht der Fall.

Der „analog-ac-MOKE“ - Meßmodus

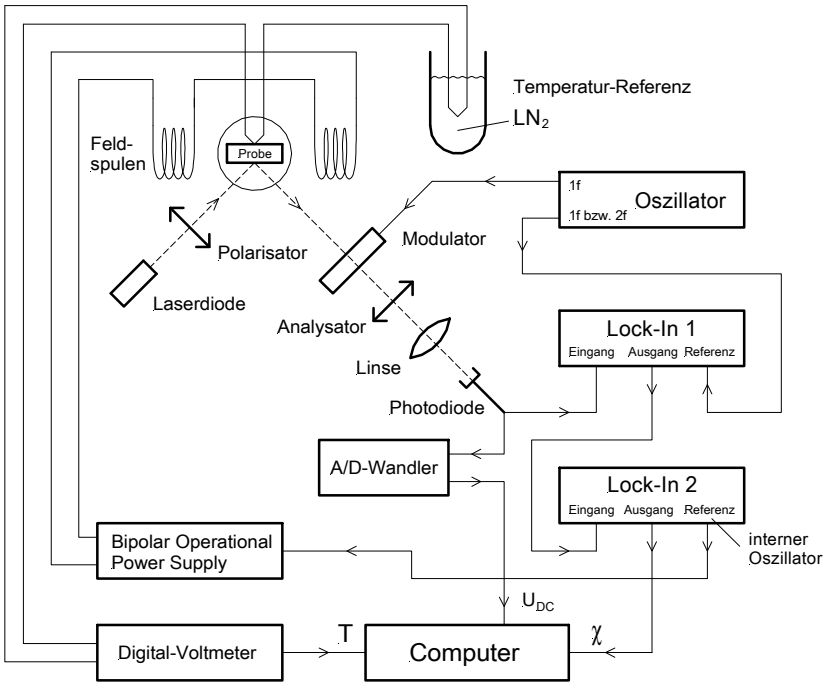

Abb. 3.16 : Blockschaltbild zum „analog-ac-MOKE“-Meßmodus

Beim „analog-ac-MOKE“-Meßverfahren wird das Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers, der die optische Modulation auswertet, auf den Eingang eines zweiten Lock-In-Verstärkers geschaltet (vgl. Abb. 3.16). Der interne Referenzoszillator dieses zweiten Lock-In-Verstärkers wird mit dem Treiber-Verstärker der Feldspulen („Bipolar Operational Power Supply“) verbunden. Dadurch entsteht ein sinusförmig oszillierendes Magnetfeld am Ort der Probe und das Kerr-Signal wird synchron zu dieser Oszillation detektiert. Das Ausgangssignal des zweiten Lock-In-Verstärkers entspricht daher der Ableitung des Kerr-Signals nach dem Magnetfeld. Es ist also ein Maß für die differentielle magnetische Suszeptibilität χ.

Ein am Treiber-Verstärker einstellbarer Gleichstrom („Offsetstrom“) durch die Feldspulen legt das statische Magnetfeld fest, bei welchem die differentielle magnetische Suszeptibilität gemessen wird. Er wird dem zur Erzeugung des Wechselfeldes dienenden Wechselstrom überlagert. Wenn man

sich für die *Nullfeld*-Suszeptibilität interessiert, kann mit Hilfe dieses Offsetstromes ein eventuell vorhandenes statisches Restmagnetfeld kompensiert werden (zumindest seine Komponente parallel zur Meßrichtung).

Die Frequenz der Feldoszillation muß klein gewählt werden gegenüber der optischen Modulationsfrequenz von 50 kHz. Um Drifteffekte zu minimieren sollte Sie aber auch nicht kleiner sein als nötig. Außerdem sollte sie in einem Frequenzbereich liegen, in welchem möglichst wenig Störungen einkoppeln. Ein Wert von f_{ac} = 140 Hz erwies sich als gut geeignet. Die Zeitkonstante am Lock-In-Verstärker der optischen Modulation wurde auf 1 ms und die am Lock-In der Feldmodulation auf 100 ms eingestellt. Die Ausgangsspannung des zweiten Lock-In-Verstärkers wird ca. 5 mal pro Sekunde digitalisiert und während einer Zeit gemittelt, in welcher sich die Temperatur um 0.1 K ändert (typ. 12 sec).

Die Amplitude des Wechselfeldes H_{ac} sollte prinzipiell möglichst wenig von Null verschieden sein, um die *differentielle* Suszeptibilität möglichst unverfälscht zu erfassen. Sie muß aber groß genug gewählt werden, um ein hinreichend starkes Signal und damit ein hinreichendes Signal-Rausch-Verhältnis sicherzustellen. Ein Wert von H_{ac} = 0.04 Oe erwies sich für Fe/GaAs(001) als guter Kompromiß. Am besten wäre es eigentlich, bei mehreren verschiedenen Feldamplituden zu messen und dann auf $H_{ac} \rightarrow 0$ zu extrapolieren. Wie im Anhang auf Seite 109 gezeigt, ist dies für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente jedoch gar nicht erforderlich.

Durch eine geeignete Einstellung des im Lock-In-Verstärker eingebauten Phasenschiebers muß die Phasenverschiebung, die bei der Ansteuerung der Feldspulen unbeabsichtigt auftritt, kompensiert werden, denn nur bei korrekter Phaseneinstellung entspricht das Ausgangssignal des Lock-In tatsächlich der Suszeptibilität. Es wird allerdings grundsätzlich neben dem Ausgangssignal S auch das zugehörige Quadratursignal Q als Funktion der Temperatur aufgezeichnet. Dadurch erfaßt man unabhängig von der aktuellen Einstellung des Phasenschiebers immer die volle Information und man kann die Daten nachträglich, falls notwendig, auf eine bessere Phaseneinstellung umrechnen, ohne daß die Messung wiederholt werden muß. Dazu können folgende Formeln verwendet werden, welche eine Phasendrehung um einen Winkel α beschreiben:

$$S_{neu} = \sqrt{S_{alt}^2 + Q_{alt}^2} \cdot \cos\left(\arctan\left(\frac{Q_{alt}}{S_{alt}} \right) + \frac{\pi}{2} \cdot \left[\mathrm{sgn}(S_{alt}) - 1 \right] + \alpha \right)$$

$$Q_{neu} = \sqrt{S_{alt}^2 + Q_{alt}^2} \cdot \sin\left(\arctan\left(\frac{Q_{alt}}{S_{alt}} \right) + \frac{\pi}{2} \cdot \left[\mathrm{sgn}(S_{alt}) - 1 \right] + \alpha \right)$$

Wenn man primär am magnetischen Phasenübergang interessiert ist, möchte man meist die Ableitung des *Betrages* der Magnetisierung M nach dem Magnetfeld H bei H=0, d.h. die ausschließlich auf dem Paraeffekt beruhende differentielle Nullfeld-Suszeptibilität, bestimmen (vgl. Seite 13). Nur von diesem Beitrag zum Suszeptibilitäts-Meßsignal kann man berechtigterweise annehmen, daß er bei der Curietemperatur T_C divergiert und nur dieser Beitrag darf z.B. mit einem kritischen Potenzgesetz verglichen werden. Beiträge, welche durch Drehprozesse gegen magnetische Anisotropien und/oder durch Domänenwandverschiebungen verursacht sind, würden dagegen z.B. eine Bestimmung des kritischen Exponenten γ verfälschen und evtl. auch dazu führen, daß das absolute Maximum des Suszeptibilitäts-Meßsignals nicht bei der Curietemperatur auftritt. Drehprozesse gegen magnetische Anisotropien lassen sich bei einkristallinen Proben vermeiden, indem man die Proben in der leichtesten Richtung der magnetischen Anisotropie orientiert und die Magnetfeldamplitude kleiner wählt als die Anisotropiefeldstärke. Domänenwandverschiebungen sollten für $T \geq T_C$ ebenfalls keine Rolle spielen. Im Temperaturbereich $T < T_C$ hängt ihr Beitrag jedoch entscheidend von der Wahl des Offsetstromes und der Wechselfeldamplitude ab.

Gut wäre es, den Offsetstrom so einzustellen, daß das Wechselfeld zwischen dem Wert H_{min} = 0 und einem bestimmten Maximalwert $H_{max} > 0$ oszilliert. Das Magnetfeld wechselt in diesem Fall während seiner Oszillation nicht das Vorzeichen. Abgesehen von eventuellen „pathologischen“ Fällen sollte damit sichergestellt sein, daß keine Domänenwandverschiebungen auftreten. Die Probe wird unter der Einwirkung dieses oszillierenden Feldes keine magnetische Hysterese durchlaufen und somit sollte keine Energiedissipation aus dem Wechselfeld stattfinden. Das Quadratursignal sollte deshalb nicht nur im Temperaturbereich $T \geq T_C$, sondern auch für alle $T < T_C$ identisch Null sein, was als Kriterium für die Einstellung des Offsetstroms herangezogen werden könnte.

Den besten Näherungswert für die differentielle Nullfeld-Suszeptibilität im Temperaturbereich $T \geq T_C$ und auch das bestmögliche Signal-Rausch-Verhältnis erhält man, wenn man den Offsetstrom so wählt, daß das Magnetfeld symmetrisch um den Wert Null oszilliert. Allerdings bewirkt das oszillierende Magnetfeld bei dieser Einstellung des Offsetstromes in einem gewissen Temperaturbereich unterhalb T_C, in welchem die Koerzitivfeldstärke der Probe kleiner ist als die Feldamplitude, einen periodischen Vorzeichenwechsel der Magnetisierung auf Grund von Domänenwandverschiebungen. Man erfaßt also in diesem Temperaturbereich nicht wirklich die differentielle Nullfeld-Suszeptibilität, sondern einen viel größeren Wert. Beim Unterschreiten der Temperatur, bei welcher die Koerzitivfeldstärke größer wird als die Amplitude des Wechselfeldes, geht das Signal plötzlich zurück auf ungefähr den Wert der differentiellen Nullfeld-Suszeptibilität. Es ergeben sich somit asymmetrische $\chi(T)$-Peakformen.

Im Rahmen der durchgeführten Experimente konnten die eben formulierten Bedingungen für die Justierung des Offsetstroms nicht mit großer Präzision realisiert werden, da nur ein mechanisch zu betätigendes Potentiometer zur Verfügung stand, das keine feinfühlige und reproduzierbare Einstellung des Gleichstroms erlaubt. Es wurde jedoch angestrebt, den Gleichstrom so einzujustieren, daß die $\chi(T)$-Peaks so hoch wie möglich wurden. Dies sollte einer Feldoszillation symmetrisch um den Wert H = 0 nahekommen. Man kann davon ausgehen, daß das statische Restmagnetfeld in jedem Fall auf Werte von $|H_{stat}| < 0.01$ Oe kompensiert war.

Bei korrekter Einstellung der Phase repräsentiert das Quadratursignal die Energiedissipation. Das bedeutet, daß das Quadratursignal nur dann von Null verschieden sein kann, wenn die Probe im oszillierenden Magnetfeld eine magnetische Hysterese durchläuft. Da bei der Curietemperatur T_C ein Maximum der differentiellen Nullfeld-Suszeptibilität auftreten sollte und außerdem zu erwarten ist, daß die magnetische Hysterese für alle Temperaturen $T \geq T_C$ verschwindet, wird die Phase so festgelegt, daß das Quadratursignal für Temperaturen oberhalb des Maximums des eigentlichen Signals verschwindet.

Eine Eichung der Meßdaten für die Suszeptibilität in absoluten Einheiten ist möglich, wenn man den Proportionalitätsfaktor zwischen Kerr-Signal und Magnetisierung kennt. Diesen kann man durch Vergleich einer „digital-ac-MOKE“-Messung mit einer SQUID-Magnetometer-Messung gewinnen. Er sollte auch für die „analog-ac-MOKE“-Messung gültig sein, wenn zwischen den beiden MOKE-Messungen der optische Aufbau nicht verändert wurde.

Die magnetische Suszeptibilität ist eine dimensionslose Größe. Trotzdem hängt ihr Zahlenwert von dem verwendeten Einheitensystem ab. Zwischen einer im SI-System angegebenen Suszeptibilität χ_{SI} und dem entsprechenden Wert im cgs-System χ_{cgs} gilt folgende Beziehung:

$$\chi_{SI} = 4\pi \cdot \chi_{cgs}$$

3.3.2 SQUID-Magnetometrie

Grundprinzip

Bei der „superconducting quantum interference device (SQUID)“ - Magnetometrie wird die Probe geradlinig durch eine bestimmte Anordnung von supraleitenden „pick-up“-Spulen bewegt (vgl. Abb. 3.17 links). Dabei induziert der Teil des magnetischen Streuflusses der Probe, welcher durch die pick-up-Spulen tritt und sich außerhalb dieser Spulen schließt, im pick-up-Stromkreis einen stationären Strom, der mit Hilfe eines SQUID-Systems verlustlos gemessen wird (siehe unten). Die SQUID-Magnetometrie ist also ein integrales Meßverfahren, welches den Magnetismus des gesamten in der Probe enthaltenen Materials erfaßt. Zum Beispiel trägt neben einer dünnen ferromagnetischen Schicht auch das Substratmaterial zum Signal bei.

Unter der Annahme, daß das Streufeld der Probe die Gestalt eines reinen Dipolfeldes hat, kann aus dem Verlauf I(x) des induzierten Stroms als Funktion des Probenortes (vgl. Abb. 3.17 rechts) auf die Komponente des Vektors des magnetischen (Dipol-)Moments parallel zur Symmetrieachse der pick-up-Spulen („Meßrichtung“) geschlossen werden. Wenn allerdings in der Probe magnetische Domänen vorliegen, die nicht um Größenordungen kleiner sind als die Ausdehnung der Probe, dann hat man eine komplizierte Gestalt des Streufeldes, welche vom Feld eines Dipols abweicht. In einem solchen Fall ist das Ergebnis einer SQUID-Magnetometer-Messung kaum interpretierbar.

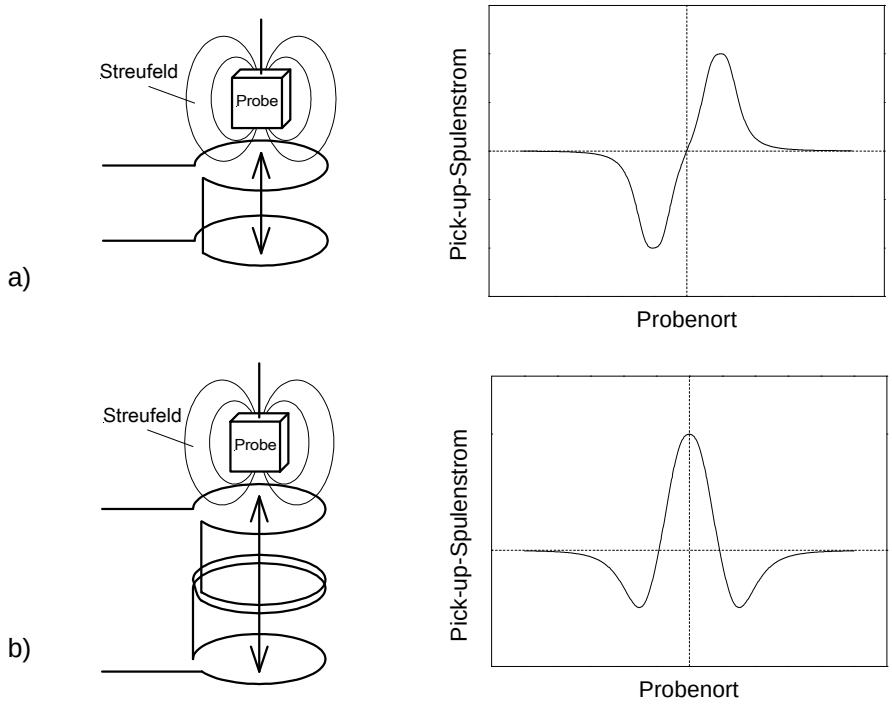

Abb. 3.17 : pick-up-Spulen bei SQUID-Magnetometern: a) Gradiometer erster Ordnung b) Gradiometer zweiter Ordnung

In der Praxis wird die Probe mehrfach mit konstanter Geschwindigkeit durch die pick-up-Spulen hin und her gefahren, und die dabei auftretenden Verläufe I(x) werden gemittelt. Durch die Mittelung erreicht man eine Verminderung des Rauschens und außerdem wird der lineare Anteil einer Drift eliminiert. Anschließend wird eine Funktion numerisch angepaßt, die den für einen magnetischen Punktdipol theoretisch zu erwartenden Verlauf beschreibt. Der Amplitudenparameter dieser Funktion repräsentiert dann das magnetische Moment der Probe (bzw. seine Komponente in Meßrichtung). Eine dauerhafte absolute Eichung in Einheiten von magnetischen (Dipol-)Momenten (z.B. in „emu“ = $Gcm^3 = 1.078 \cdot 10^{20}\ \mu_B$) ist möglich.

Im Unterschied zu anderen Magnetometern, die mit normalleitenden pick-up-Spulen arbeiten und eine induzierte Spannung auswerten, hängt im vorliegenden Fall die Signalstärke nicht von der Probenbewegungsgeschwindigkeit ab. Man wählt sie einerseits relativ langsam, um durch Tiefpaßfilterung das Rauschen minimieren zu können, andererseits aber schnell genug, um Drifteffekte zu begrenzen. Typische Probenbewegungsgeschwindigkeiten liegen im Bereich von 0.5 bis 20 Sekunden für einen Durchlauf durch die pick-up-Spulen.

Konzentrisch um Probe und pick-up-System ist eine supraleitende Feldspule angeordnet. Sie dient zur Erzeugung eines variablen Magnetfeldes von bis zu mehreren Tesla am Ort der Probe, parallel zur Meßrichtung. Damit ist die Bestimmung von Magnetisierungskurven möglich. Da die pick-up-Spulen dem von der Feldspule erzeugten Magnetfeld ausgesetzt sind, müssen einerseits diese pick-up-Spulen so konstruiert sein, daß sie auf Fluktuationen des externen Magnetfelds möglichst wenig empfindlich sind und zweitens muß das externe Feld eine möglichst hohe Stabilität aufweisen. Ersteres wird durch eine möglichst perfekt symmetrische Gradiometer-Anordnung erreicht (vgl. Abb. 3.17 links) und letzteres durch Herstellen eines supraleitenden Kurzschlusses im Feldspulen-Stromkreis („persistant mode“), sowie durch einen besonders starren mechanischen Aufbau der Feldspule, da elastische Verformungen der Feldspule bei Erschütterungen eine Feldfluktuation bewirken können. Zum Teil werden auch supraleitende Abschirmungen zur Stabilisierung des Magnetfeldes eingesetzt.

Die Probentemperatur ist in einem weiten Bereich einstellbar, denn das zur Kühlung der supraleitenden Stromkreise verwendete flüssige Helium wird auch zur Kühlung der Probe herangezogen. Die Probe befindet sich dazu in einem „Probenrohr“, das mit Hilfe eines Isolationsvakuums von der Umgebung thermisch entkoppelt ist. An einem Ende dieses Rohres tritt gasförmiges kaltes Helium ein und wird mit einem elektrischen Heizer auf die gewünschte Probenraum-Temperatur erwärmt.

Eine elektronische Regelung ermöglicht die Stabilisierung der Probentemperatur mit einer Genauigkeit von Bruchteilen eines Kelvin.

Funktionsweise des SQUID-Systems

Entscheidende Komponente in dem zur Messung des pick-up-Spulenstroms dienenden Hochfrequenz(rf)-SQUID-System ist ein „SQUID-Ring“. Dabei handelt es sich um einen Ring aus supraleitendem Material, der eine Schwachstelle („weak link“) besitzt. Auf Grund des einheitlichen quantenmechanischen Zustandes aller Cooper-Paare ist der magnetische Fluß, welcher durch diesen Ring tritt, quantisiert in Einheiten des Flußquants $\Phi_0 = h/2e \approx 2 \cdot 10^{-7}$ Gcm^2. Bei Veränderung eines einwirkenden Magnetfeldes werden im SQUID-Ring „Abschirmströme“ induziert, die eine Veränderung des eingeschlossenen Flusses zunächst verhindern. In der Schwachstelle hat man jedoch eine verhältnismäßig geringe kritische Stromstärke. Wenn diese überschritten wird, geht der Ring kurzzeitig in einen normalleitenden Zustand über und die magnetische Flußdichte durch den Ring gleicht sich dem Wert der Umgebung an. Kurz darauf wird der Ring wieder supraleitend und die Kondensationsenergie der Cooper-Paare wirft erneut einen Abschirmstrom an, der nun aber lediglich so groß ist, daß das nächstmögliche ganzzahlige Vielfache eines Flußquants erreicht wird. Um einen SQUID-Ring zu erhalten, der zur Verwendung in einem SQUID-System geeignet ist, wird die Schwachstelle so hergestellt, daß ihr kritischer Strom einem Fluß zwischen 1/2 und 3/2 Flußquanten entspricht. Dann springt beim kontinuierlichen Verändern eines externen Feldes ein Flußquant nach dem anderen in den Ring hinein oder aus ihm heraus.

In einem sogenannten „Flußtransformator“ wird der Strom des pick-up-Stromkreises (Eingangsstrom) mit einer „Einkoppelspule“, die sich in unmittelbarer Nähe des SQUID-Ringes befindet, in einen magnetischen Fluß verwandelt. Durch eine zweite Spule (Gegenkoppelspule), die ebenfalls eng an den SQUID-Ring gekoppelt ist, wird ein hochfrequenter Wechselstrom geleitet (Frequenz $f_{HF} \approx 30$ MHz), dessen Amplitude so eingestellt ist, daß im SQUID-Ring periodisch ein Flußquant hinein und herausspringt. Jeder Flußsprung erzeugt einen Induktionsspannungsstoß, dessen Höhe davon abhängt, wie stark der von der Einkoppelspule erzeugte Fluß von einem ganzzahligen Vielfachen eines Flußquants abweicht. Die Fourierkomponente U_{HF} der induzierten Spannung bei der Frequenz des hochfrequenten Wechselstroms wird mit Lock-In-Technik gemessen. Sie ändert sich sinusförmig mit dieser Flußabweichung (vgl. Abb. 3.18). Mit Hilfe eines dem hochfrequenten Wechselstrom überlagerten Gleichstroms I_{GK} kann der vom pick-up-Stromkreis eingekoppelte Fluß so kompensiert werden, daß der Differenzfluß Φ_{Diff} einem ganzzahligen Vielfachen eines Flußquants entspricht. Dazu wird eine Regelelektronik verwendet, welche dafür sorgt, daß U_{HF} minimal ist. Um dieses Minimum zu detektieren wird der Gegenkopplungsstrom I_{GK} niederfrequent moduliert (Frequenz $f_{NF} \approx 100$ kHz) und die damit synchrone Änderung von U_{HF} mit einem zweiten Lock-In-Verstärker detektiert. Im Minimum verschwindet die Fourierkomponente von U_{HF} bei der Frequenz f_{NF}, da die Funktion $U_{HF}(I_{GK})$ achsensymmetrisch ist, wodurch die Frequenz verdoppelt wird (vgl. Abb. 3.18). Beim Auftreten einer Fourierkomponente bei der Frequenz f_{NF} wird der Gleichstromanteil von I_{GK} automatisch nachgeregelt. Dieser Gleichstromanteil des Gegenkopplungsstroms ist damit proportional zum Eingangsstrom. Da die Einkoppelspule eine höhere Windungszahl besitzt als die Gegenkoppelspule wird eine Stromverstärkung erreicht. Die Regelung sorgt im übrigen dafür, daß der Gegenkopplungsstrom unverändert bleibt, wenn man in den Gegenkopplungsstromkreis einen ohmschen Widerstand einbringt. Der Spannungsabfall an einem solchen Widerstand ist proportional zum Gegenkopplungsstrom und damit auch zum Strom in den pick-up-Spulen. Er wird mit konventioneller Elektronik weiter verstärkt und bildet das Ausgangssignal des SQUID-Systems.

Zur Messung des vom Eingangsstrom im Flußtransformator bewirkten magnetischen Flusses werden also nicht etwa Flußquanten gezählt, sondern der SQUID wird als hochempfindlicher „Nulldetektor“ im Rahmen eines Kompensationsverfahrens eingesetzt. Die damit erzielbare Genauigkeit ist nicht durch die Flußquantisierung beschränkt, sondern allein durch die Stabilität des mechanischen Aufbaus und das Rauschen der Elektronik. Der Proportionalitätsfaktor zwischen dem Strom in den pick-up-Spulen und dem Ausgangssignal ist festgelegt durch den Widerstand im Gegenkopplungsstromkreis und das Übersetzungsverhältnis des Flußtransformators. Er ist unabhängig von dem genauen Wert des kritischen Stromes des SQUID-Ringes, den Modulationsamplituden und der „offenen Schleifenverstärkung“ des Regelkreises. Diese Parameter müssen lediglich so justiert sein, daß sie innerhalb eines gewissen Toleranzintervalles liegen, so daß eine stabile Regelung gewährleistet ist. Dann genügt eine einmalige Bestimmung des Proportionalitätsfaktors durch eine Eichmessung. Eine ernstzunehmende zeitliche Veränderung dieses Faktors ist nicht zu erwarten.

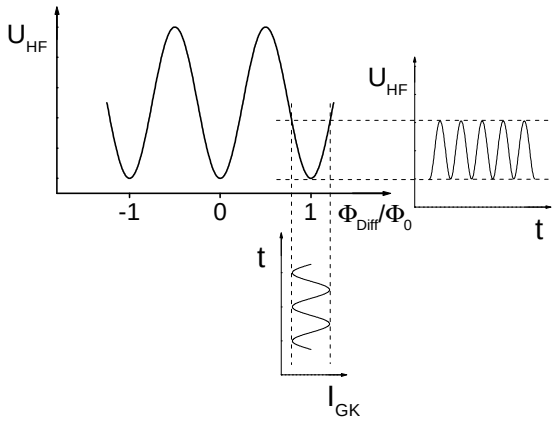

Abb. 3.18 : Modulationsverfahren beim SQUID-System

Die Empfindlichkeit von SQUID-Magnetometern übertrifft bislang alle anderen Magnetometerkonzepte. Es gibt aber auch spezifische Probleme. Wenn z.B. die Änderungsgeschwindigkeit des Eingangsstroms einen bestimmten Wert überschreitet, kann die Regelung den Gegenkopplungsstrom nicht schnell genug nachführen und „rastet“ später bei einem anderen ganzzahligen Vielfachen eines Flußquants im SQUID-Ring ein. Auf diese Weise können Sprünge im Ausgangssignal entstehen. Als Ursache kommen elektromagnetische Einkopplungen von außerhalb in Frage, etwa das Ein- oder Ausschalten großer elektrischer Geräte, aber auch mechanische Erschütterungen bei hohem Magnetfeld in der Feldspule. Durch solche Sprünge kommt es manchmal zu „Ausreißern“ in den Meßwerten für das magnetische Moment der Probe.

Geometrieeffekt

Reale Proben haben meist eine Form, welche von der eines idealen Rotationsellipsoids abweicht. Daher ist das Streufeld auch in Abwesenheit magnetischer Domänen nicht exakt dipolförmig und der vom Magnetometer gelieferte Meßwert $m_{Messung}$ weicht etwas vom tatsächlichen Dipolmoment m_{Probe} der Probe ab. Er ist aber durchaus proportional zu diesem, solange sich die Magnetisierungsverteilung in der Probe nicht ändert:

$$m_{Probe} = C \cdot m_{Messung}$$

Der Proportionalitätsfaktor C wird als „Geometriefaktor“ bezeichnet. Er hängt nicht nur von der konkreten *Form* einer Probe ab, sondern auch von der *Orientierung* der Probe relativ zur Symmetrieachse der pick-up-Spulen. Vor dem quantitativen Vergleich zweier Messungen mit unterschiedlichen Probenorientierungen muß unter Umständen für jede Probenorientierung ein separater Geometriefaktor ermittelt werden, z.B. $C_{\parallel}$ und $C_{\perp}$ für die Meßrichtungen parallel und senkrecht zur Ebene einer dünnen magnetischen Schicht. Um das Verhältnis

$$\gamma := C_{\parallel} / C_{\perp}$$

zu bestimmen, kann man zum Beispiel die Tatsache ausnutzen, daß das magnetische Moment einer ferromagnetischen Probe im Sättigungsbereich im allgemeinen unabhängig von der Probenorientierung ist. Weiterhin geht auch die *Größe* der Probe in den Geometriefaktor ein. Je kleiner die Probe, desto mehr Streufluß schließt sich bereits innerhalb der pick-up-Spulen und desto kleiner ist $m_{Messung}$ im Verhältnis zu m_{Probe}. Schließlich wird die Streufeldverteilung auch durch die Nähe der supraleitenden Feldspule bzw. einer supraleitenden Abschirmung beeinflußt. Damit kommt es zu einer gewissen Feldabhängigkeit des Geometrieeffekts.

Substratsignal

In vielen Fällen ist man am Magnetismus einer dünnen magnetischen Schicht interessiert, welche sich auf einem Substrat befindet. Die SQUID-Magnetometer-Messung liefert in diesem Fall zunächst einmal die Summe aus dem magnetischen Moment der Schicht und dem des Substrats:

$$m_{Probe} = m_{Schicht} + m_{Substrat}$$

Man möchte nun meist den Substratbeitrag eliminieren. Oft setzt man zu diesem Zweck voraus, daß die magnetische Schicht bei starken Magnetfeldern magnetisch gesättigt ist, also $m_{Schicht}$ unabhängig ist vom angelegten Magnetfeld H. Wenn das Substrat rein diamagnetisch ist, dann ist der Substratbeitrag proportional zu H

$$m_{Substrat} = \chi_{dia} \cdot H \quad \text{mit} \quad \chi_{dia} < 0$$

und man erkennt im gemessenen Verlauf des magnetischen Gesamtmoments der Probe als Funktion des externen Feldes einen linearen Bereich mit negativer Steigung bei den höchsten verwendeten Magnetfeldern (vgl. Abb. 3.19).

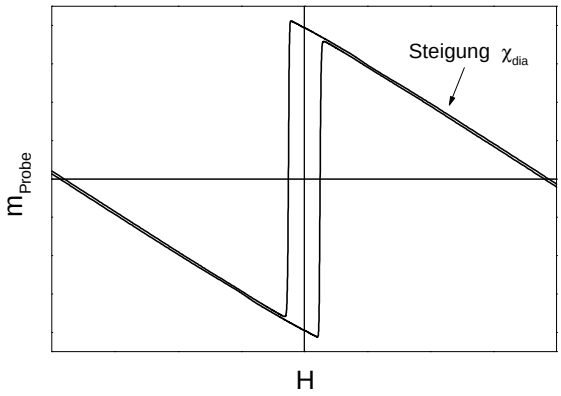

Abb. 3.19 : Beispiel für die Ummagnetisierungskurve einer Probe aus ferromagnetischer Schicht und diamagnetischem Substrat, gemessen mit SQUID-Magnetometrie

Die Steigung in diesem Sättigungsbereich entspricht der diamagnetischen Suszeptibilität χ_{dia} des Substrats. Man kann nun das Substratsignal wegrechnen, indem man von den Meßdaten eine Ursprungsgerade subtrahiert, welche diese Steigung besitzt:

$$m_{Schicht} = m_{Probe} - \chi_{dia} \cdot H$$

Manchmal ist allerdings nicht klar, ob das Substratmaterial wirklich rein diamagnetisch ist und ob das magnetische Moment der Schicht bei den höchsten verwendeten Magnetfeldern wirklich unabhängig vom Feld ist. Besonders in der Nähe der Curietemperatur spielt z.B. der nichtlineare Paraeffekt eine große Rolle, welcher sich bis über die höchsten verfügbaren Laborfelder hinaus erstreckt. Daher ist eine direktere Methode zur Elimination des Substratsignals wünschenswert. Es bietet sich an, ein Stück Substratmaterial ohne magnetische Schicht separat zu vermessen. Für das im Rahmen der vorliegenden Arbeit als Substratmaterial verwendete semiisolierende GaAs zeigte sich dabei, daß es tatsächlich fast perfekt diamagnetisch ist. Für die magnetische Suszeptibilität wurde bei einer Temperatur von T = 300 K ein Wert von $-1.239 \cdot 10^{-6}$ (cgs-Einheiten) bzw. $-1.556 \cdot 10^{-5}$ (SI-Einheiten) gemessen (Literaturwert: $-1.223 \cdot 10^{-6}$ (cgs-Einheiten) [Landolt-Börnstein 82]). Wie bei Diamagnetismus zu erwarten, ist die Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität gering. Bei T = 10 K erhält man $-1.227 \cdot 10^{-6}$ (cgs-Einheiten) bzw. $-1.542 \cdot 10^{-5}$ (SI-Einheiten). Damit kann man nun das Substratsignal beliebiger Proben, gegebenenfalls unter Berücksichtigung des Geometriefaktors, berechnen und subtrahieren, wenn man ihr Volumen kennt.

Bei einer typischen Waferdicke von 500 µm und einer Probenfläche von 1 cm^2 hat das Substrat in einem externen Magnetfeld der Stärke H ein magnetisches Moment von $m_{GaAs} = -7.71 \cdot 10^{-8}$ $Gcm^3/Oe \cdot H$. Im Vergleich dazu beträgt das Sättigungsmoment einer Fe-Schicht von 3 ML Dicke

und 1 cm^2 Fläche $m_{Fe} = 7.50 \cdot 10^{-5}$ Gcm^3, wenn man den Massivmaterialwert für die atomaren magnetischen Momente von 2.2 μ_B/Atom ansetzt. Bei einem Magnetfeld von H = 970 Oe kommt es also zu einer Kompensation von Schicht- und Substratsignal, wenn die Fe-Schicht bei diesem Feld magnetisch gesättigt ist. Anderenfalls tritt die Kompensation schon bei geringeren externen Feldern auf. Bei stärkeren Feldern dominiert das Substratsignal.

Besonders elegant ist es, den Substratbeitrag durch eine geschickte Wahl der Probengeometrie unmittelbar zu kompensieren. Dazu bringt man lange Streifen aus Substratmaterial, die genau die Breite und Dicke der eigentlichen Probe haben, vor und hinter der Probe an. Die Länge der Substratstreifen wird groß gewählt gegenüber der Länge der pick-up-Spulen-Anordnung. Damit erreicht man, daß beim Bewegen der Probe zwar der magnetische Fluß der räumlich eng begrenzten magnetischen Schicht eine Änderung des Stromes in den pick-up-Spulen bewirkt, aber der vom Substratmaterial bewirkte magnetische Fluß in der Nähe der pick-up-Spulen weitgehend homogen bleibt, so daß er keine Stromänderung verursacht. In der Praxis zeigt sich, daß damit der Substratbeitrag um ca. einen Faktor 500 unterdrückt werden kann. Dies ist besonders hilfreich, wenn die Substratmagnetisierung eine komplizierte Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit aufweist, hat aber auch bei rein diamagnetischen Substraten einen wichtigen Vorteil, denn man bekommt dadurch ein schwächeres Gesamtsignal und kann deshalb eine rauschärmere Empfindlichkeitseinstellung der Elektronik benutzen.

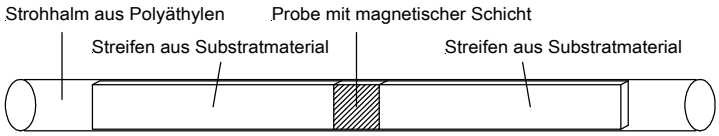

Abb. 3.20 : Probenmontage zur direkten Elimination des Substratsignals

Ein bewährtes Verfahren ist, die Probe mit einer Größe von 6.5 x 6.5 mm^2 herzustellen und zusammen mit zwei langen Streifen Substratmaterial der gleichen Breite von demselben Wafer in einen oval gedrückten „Strohhalm“ von 5 mm Durchmesser aus ungefärbtem Polyäthylen zu schieben (vgl. Abb. 3.20). Die Teile werden dann durch die Elastizität des Kunststoffs gut fixiert und das diamagnetische Signal des Strohhalms wird in der gleichen Weise unterdrückt wie das des Substratmaterials. Bei Verringerung der Temperatur kontrahiert sich der Strohhalm stärker als das GaAs, wodurch eine Kraft auftritt, welche die Einzelteile aufeinander zu zu treiben versucht. Bei einer anschließenden Temperaturerhöhung führt umgekehrt die Wärmeausdehnung des Strohhalms zur Bildung von Spalten zwischen der Probe und den Substratstreifen, was ein Substratsignal mit invertiertem Vorzeichen bewirkt. Man sollte deshalb bei jeder Messung die Temperatur nur monoton fallend variieren.

Das SQUID-Magnetometer in Regensburg

Das 1979 erstmals in Betrieb genommene SQUID-Magnetometer vom Typ VTS-50L der Firma SHE besitzt ein Gradiometer erster Ordnung als pick-up-Spulensystem (vgl. Abb. 3.17 a). Die Probentemperatur kann im Bereich 5 ... 400 K und das externe Magnetfeld in einem Intervall von -50 ... +50 kOe gewählt werden. Um dieses Magnetfeld in der Nähe der pick-up-Spulen gegen Fluktuationen zu stabilisieren, wird nicht nur die Feldspule im „persistant mode“ betrieben, sondern zusätzlich zwischen Feldspule und pick-up-Spulen ein Zylinder aus supraleitendem Material eingesetzt. Bei jeder beabsichtigten Feldänderung muß zunächst dieser Zylinder über die Sprungtemperatur erwärmt und anschließend wieder abgekühlt werden. Die damit verbundene Wärmeausdehnung der betroffenen Teile führt zu einer relativ lange anhaltenden Drift des Meßsignals, deren Abklingen vor jeder Messung abgewartet werden muß. Messungen mit diesem Magnetometer erfordern daher relativ viel Zeit (ca. 30 min bei jeder Magnetfeldänderung). Das supraleitende Schild stabilisiert nicht nur das Magnetfeld der Feldspule, sondern es deformiert auch das Streufeld der Probe. Das Material, aus welchem das supraleitende Schild besteht, verhält wie ein Supraleiter zweiter Art, d.h. es können in gewissem Maße Flußschläuche eindringen und zwar umso mehr, je größer das von der Feldspule erzeugte Magnetfeld ist. Bei niedrigen externen Magnetfeldern, d.h. wenn nur wenig Flußschläuche ins Schild eingedrungen sind, wird das Streufeld der Probe stärker zusammengedrängt als bei hohen Magnetfeldern. Daher schließen sich bei niedrigen Magnetfeldern mehr Feldlinien des Streufeldes bereits in unmittelbarer Nähe der Probe. Diese Feldlinien umschließen die pick-up-Spulen nicht und tragen daher nicht zur Induktion in diesen bei. Die Empfindlichkeit des Magnetometers ist somit bei niedrigen Magnetfeldern geringer als bei hohen Fel-

dern. Dies wird durch Multiplikation der Meßdaten mit einem empirisch bestimmten, magnetfeldabhängigen Korrekturfaktor näherungsweise ausgeglichen. Die genaue Zahl der ins Schild eingedrungenen Flußquanten ist aber nicht nur systematisch vom Magnetfeld abhängig, sondern auch etwas vom Zufall. Dadurch hat man unvorhersehbare Schwankungen der Empfindlichkeit des Magnetometers. Diese Schwankungen wirken sich bei hohen angelegten Magnetfeldern signifikant aus, wenn das diamagnetische Signal des Substrats um mehrere Größenordnungen gegenüber dem Signal einer darauf befindlichen dünnen magnetischen Schicht dominiert und man nach der Messung die Daten einer Substrat-Vergleichsmessung subtrahiert. Leider kann bei diesem Magnetometer das Substratsignal nicht wie in Abb. 3.20 beschrieben direkt kompensiert werden, da das Probenrohr im Bereich der pick-up-Spulen zu kurz ist. Die Unsicherheit der gemessenen magnetischen Momente von Fe-Schichten mit ca. 3 ML Dicke auf quadratischen GaAs-Substraten von 10x10 mm² Fläche und 0.5 mm Dicke ist im Feldbereich |H| < 5 kOe kleiner als $\pm 2 \cdot 10^{-7}$ Gcm³. Dies entspricht ca. ± 0.008 ML Fe, wenn man den Massivmaterialwert von 2.2 μ_B für das magnetische Moment pro Fe-Atom ansetzt. Bei Magnetfeldern |H| > 5 kOe machen die zufälligen Schwankungen der Meßdaten bis zu $\pm 2 \cdot 10^{-6}$ Gcm³, d.h. ± 0.08 ML Fe, aus.

Die SQUID-Magnetometer in Straßburg und München

Am IPCMS in Straßburg, sowie am Institut für Physikalische Chemie der LMU München konnten gelegentlich für kurze Zeit moderne SQUID-Magnetometer des Herstellers „Quantum Design“ genutzt werden. Die beiden Geräte sind im Wesentlichen baugleich und stellen eine Weiterentwicklung des SHE-Magnetometers dar. Sie repräsentieren den technischen Stand von Mitte der neunziger Jahre. Die Probentemperatur ist im Bereich 1.6 ... 400 K frei wählbar. Das externe Magnetfeld kann wie beim SHE-Gerät zwischen -50 kOe und +50 kOe liegen. Wegen der Verwendung eines Gradiometers zweiter Ordnung als pick-up-Spulensystem (vgl. Abb. 3.17 b), welches sowohl auf homogene Magnetfelder als auch auf homogene Feldgradienten unempfindlich ist, konnte auf die Stabilisierung des externen Feldes mit einem supraleitenden Schild völlig verzichtet werden. Die für das Regensburger Magnetometer geschilderte Beeinträchtigung der Meßgenauigkeit wird auf diese Weise vermieden. Außerdem reduziert sich die Dauer einer Messung um ca. den Faktor 5, da bei einer Feldänderung das Aufheizen des Schildes über die Sprungtemperatur und das anschließende Wiederabkühlenlassen entfällt. Die statistische Unsicherheit der Meßdaten von typischen Fe/GaAs-Proben mit ca. 3 ML Fe auf 6.5x6.5 mm^2 Substratfläche ist im gesamten Feldbereich kleiner als $\pm 1 \cdot 10^{-8}$ Gcm^3, d.h. ± 0.001 ML.

Magnetisches Moment und Magnetisierung

Um unabhängig zu werden von der bei den meisten Experimenten relativ willkürlichen Menge an ferromagnetischem Material, könnte man extensive Größen, wie das magnetische Gesamtmoment der Probe, z.B. durch das Volumen dividieren und würde damit einen Wert für die Magnetisierung erhalten. Bei dünnen Schichten ist jedoch meist die Dichte und damit auch das Volumen nicht ***a priori*** bekannt. Besser ist es deshalb, extensive Größen durch die Anzahl magnetischer Atome in der Probe zu dividieren, um somit z.B. ein mittleres magnetisches Moment pro Atom anzugeben. Die Anzahl Atome in einer aufgedampften dünnen Schicht erhält man z.B. direkt aus der mit einer Schwingquarz-Mikrowaage gemessenen Massenbelegung und der Schichtfläche (vgl. Seite 66 f.).

Vergleich von SQUID und MOKE

Mit einem SQUID-Magnetometer kann eine höhere Meßgenauigkeit erzielt werden als mit üblichen MOKE-Systemen. Außerdem kann die Probe im SQUID-Magnetometer bei tieferen Temperaturen und stärkeren Magnetfeldern untersucht werden, da zum Betrieb eines SQUID immer flüssiges Helium vorhanden sein muß und dieses auch zur Kühlung der Probe und zum Betrieb einer supraleitenden Feldspule verwendet werden kann. Der Einsatz von flüssigem Helium verursacht aber andererseits auch die wesentlich höheren Betriebskosten eines SQUID-Magnetometers. Ein entscheidender Vorteil des SQUID-Magnetometers ist seine Absoluteichung. Damit ist es im Gegensatz zu MOKE möglich, magnetische Momente quantitativ zu bestimmen. Mit MOKE läßt sich allerdings ortsaufgelöst messen. Dies ermöglicht die Untersuchung von Keilschicht-Proben. Eine MOKE-Messung mittelt dabei nur über die recht kleine vom Laserstrahl beleuchtete Fläche, während das SQUID-Magnetometer über die gesamte Probe mittelt. Je kleiner die untersuchte Fläche, desto weniger streuen die Eigenschaften einer ferromagnetischen Schicht innerhalb dieser Fläche, wodurch die Aussagekraft mancher Messungen verbessert wird. Durch die geringe Eindringtiefe des Lichts ist MOKE auf hinreichend tief „vergrabene“ magnetische Schichten unempfindlich, was

in manchen Fällen einen Vorteil darstellt. Bei MOKE-Apparaturen, die mit normalleitenden, kernlosen Feldspulen arbeiten, gelingt die Einstellung von gewünschten Magnetfeldern mit wesentlich höherer Auflösung. Damit läßt sich das Magnetfeld am Probenort z.B. wesentlich genauer auf Null einjustieren als bei SQUID-Magnetometern. Außerdem geht die Messung bei MOKE-Apparaturen wesentlich schneller als bei der SQUID-Magnetometrie. Somit ergänzen sich beide Verfahren sehr effektiv.

3.3.3 Konversionselektronen-Mössbauer-Spektroskopie (CEMS)

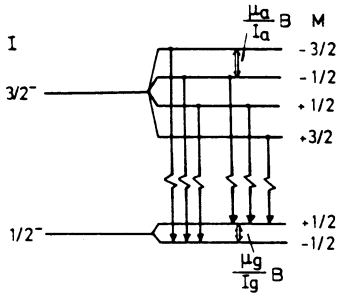

Abb. 3.21 : Energieniveauschema von ^{57}Fe-Kernen in einer ferromagnetischen Probe

Bei der Mössbauer-Spektroskopie wird der Einfluß der lokalen Umgebung von Atomen auf die Energieniveaus ihrer Kerne untersucht. Magnetische Festkörpereigenschaften sind dabei als Hyperfeinstrukturaufspaltung wiederzufinden. Die Breite dieser Aufspaltung wird in Analogie zum Zeeman-Effekt formal durch ein *magnetisches Hyperfeinfeld* H_{eff} ausgedrückt. Dieses ist ein Maß für die Magnetisierung des Materials. Abb. 3.21 zeigt schematisch das Energieniveauschema für den Grundzustand und den ersten angeregten Zustand eines ^{57}Fe-Kerns. Nach den Auswahlregeln sind sechs verschiedene Übergänge möglich. Aus der Energie der Übergänge von ca. 14.4 keV und der Lebensdauer des angeregten Zustands von $1.4 \cdot 10^{-7}$ s ergibt sich eine relative spektrale Breite der Übergänge von lediglich $3.3 \cdot 10^{-13}$. Um derartige Übergänge resonant anzuregen braucht man γ-Quanten, deren Energie mit sehr hoher Genauigkeit der Energie des Übergangs entspricht.

Solche γ-Quanten können mit Hilfe des radioaktiven Isotops ^{57}Co erzeugt werden. Durch Elektroneneinfang wandelt sich ^{57}Co in angeregtes ^{57}Fe um, welches anschließend unter Emission von γ-Strahlung zunächst aus dem Zustand mit Kernspin 5/2 in den Zustand mit Kernspin 3/2 und dann weiter in den Grundzustand relaxiert (vgl. Abb. 3.22). Dabei wird der Rückstoßimpuls der γ-Quanten auf den Fe-Kern übertragen. Bei freien Kernen ist mit dieser Impulsübertragung auch eine signifikante Energieübertragung verbunden und die Energie des γ-Quants wird so stark reduziert, daß es in anderen ^{57}Fe-Atomen keine Resonanzanregung mehr bewirken kann. Wenn die Fe-Kerne jedoch in einen Festkörper eingebunden sind, kann sich der Rückstoßimpuls auf den gesamten Festkörper verteilen. Wegen der großen Masse des Festkörpers bleibt dabei die Energieübertragung vernachlässigbar. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit, die durch den Debye-Waller-Faktor ausgedrückt wird, kommt es auch nicht zu einer Phononenanregung und die γ-Quanten werden ohne Energieverlust emittiert. Diese Tatsache wurde 1957 von R. Mössbauer entdeckt und wird als *Mössbauer-Effekt* bezeichnet.

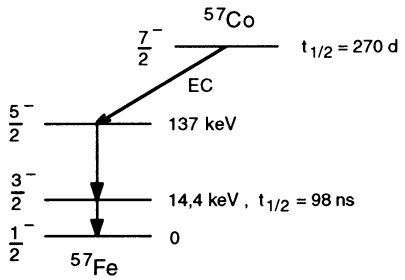

Abb. 3.22 : Energieniveauschema einer ^{57}Co Mössbauer-Quelle

Bei der Herstellung einer *Mössbauer-Quelle* wird das „Mutterisotop“ ^{57}Co mit einem Überschuß an unmagnetischem Metall („Matrix“) legiert. Damit ist sowohl das Co als auch das durch den Zerfall entstehende Fe nicht ferromagnetisch und es gibt keine Hyperfeinstrukturaufspaltung. Eine solche Quelle emittiert bei 14.4 keV nur eine einzige Linie. Vorteilhaft ist außerdem die relativ lange Halbwertszeit von 270 Tagen des ^{57}Co-Isotops, so daß eine solche Quelle über längere Zeit verwendet werden kann.

Um mit Hilfe dieser γ-Strahlung Spektroskopie zu betreiben, d.h. um nacheinander verschiedene hyperfeinstrukturaufgespaltene Kernübergänge in einer Probe anzuregen und deren Energiedifferenz zu messen, muß die Quantenenergie der Strahlung innerhalb eines gewissen Intervalls variiert werden. Dazu wird der *Doppler-Effekt* ausgenutzt, wobei Bewegungsgeschwindigkeiten der Quelle relativ zur Probe in der Größenordnung von einigen mm/s ausreichen. Wenn die dopplerverschobene Energie der γ-Quanten mit der Energie eines Kernübergangs in der Probe übereinstimmt kommt es zu einer erhöhten Absorptionswahrscheinlichkeit, was z.B. als verringerte Transmission beobachtet werden könnte.

Um jedoch bei der Untersuchung dünner Fe-Schichten ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis zu erreichen als bei einer Transmissionsmessung, nutzt man in der Praxis die Tatsache aus, daß ^{57}Fe-Kerne nach einer resonanten γ-Absorption in 89 % aller Fälle durch Emission von *Konversionselektronen* wieder in den Grundzustand übergehen. Diese Konversionselektronen kann man detektieren, wenn man die Probe im Inneren eines Gasentladungs-Zählrohrs montiert.

Die Relativgeschwindigkeit zwischen Quelle und Probe wird periodisch variiert und der gesamte Geschwindigkeitbereich in kleine Intervalle eingeteilt. In einem Vielkanalanalysator steht für jedes Geschwindigkeitsintervall ein elektronischer Zähler zur Verfügung. Bei jedem Nachweis eines Konversionselektrons wird der zur jeweils aktuellen Geschwindigkeit gehörende Zähler um Eins erhöht. Damit ergibt sich ein Häufigkeitshistogramm, welches die Wahrscheinlichkeit der Resonanzabsorption als Funktion der Energie der γ-Quanten repräsentiert (*Mössbauer-Spektrum*). Die statistische Aussagekraft dieses Spektrums steigt mit zunehmender Meßzeit. Oft sind Meßzeiten von mehreren Tagen oder sogar mehreren Wochen erforderlich.

Die natürliche Linienbreite der von einer ^{57}Co-Quelle erzeugten Strahlung entspricht der Niveauaufspaltung in einem Hyperfeinfeld von 1.2 Tesla. Durch numerische Anpassungsrechnungen theoretischer Kurven an gemessene Mössbauer-Spektren können Hyperfeinfelder mit einer Unsicherheit von ca. 0.1 Tesla bestimmt werden. Diese Unsicherheit erscheint auf den ersten Blick recht groß, wird aber relativiert durch die Tatsache, daß Hyperfeinfelder wegen der *Fermi-Kontakt-Wechselwirkung* ein Vielfaches der im Material herrschenden Flußdichte betragen (z. B. H_{eff} = 33 Tesla für α-Fe bei 300 K).

Ein wichtiger Vorteil der Mössbauer-Spektroskopie gegenüber anderen magnetischen Meßmethoden ist die Tatsache, daß man auch beim Vorliegen einer Domänenaufspaltung ein Hyperfeinfeld mißt, welches der Spontanmagnetisierung entspricht. Daher kann man z.B. entscheiden, ob das Verschwinden der Remanenz bei Meßverfahren wie MOKE oder SQUID-Magnetometrie durch das Auftreten magnetischer Domänen oder durch einen vollständigen Verlust der magnetischen Ordnung verursacht ist.

Leider ist es nicht möglich, das im natürlichen Fe mit einem Anteil von 91.6 % dominierende ^{56}Fe-Isotop für die Mössbauer-Spektroskopie zu verwenden, da ^{56}Fe-Kerne keine geeigneten Zustände bzw. Übergänge besitzen. Da natürliches Fe nur zu 2.2 % aus dem Isotop ^{57}Fe besteht, muß man Proben für Mössbauer-Experimente oft mit dem sehr teueren angereicherten ^{57}Fe herstellen (Preis > 50 DM/mg).

4 Durchführung und Deutung der Experimente

In diesem Kapitel werden die Experimente beschrieben, welche durchgeführt wurden, um das magnetische Phasenübergangsverhalten, sowie das Einsetzen des Ferromagnetismus bei dünnen Fe-Schichten auf GaAs(001) aufzuklären. Es wird zunächst auf die Präparation entsprechender Proben eingegangen, in deren Verlauf eine sorgfältige strukturelle Charakterisierung erfolgte. Nachfolgend werden die Ergebnisse zum magnetischen Verhalten präsentiert und vor dem Hintergrund der atomaren und morphologischen Struktur gedeutet.

4.1 Probenpräparation und strukturelle Charakterisierung

Der erste Schritt der Probenpräparation besteht in der Bereitstellung wohldefinierter GaAs(001)-Oberflächen. Das entsprechende Vorgehen ist im ersten Teil dieses Abschnittes dargestellt. Durch eine detaillierte Interpretation der Daten von Strukturuntersuchungsmethoden konnte dieses Vorgehen schrittweise optimiert werden, wodurch es gelang, GaAs(001)-Oberflächen von sehr hoher Perfektion zu erzielen. Im nächsten Schritt wurde das Wachstum von Fe auf solchen GaAs(001)-Oberflächen untersucht. Dabei wurde die Entwicklung sowohl der atomaren Struktur (mit RHEED) als auch der morphologischen Struktur (mit STM) als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung bestimmt. Die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften solcher Fe-Schichten erfordert zum Teil eine spezielle Vorbereitung entsprechender Proben, welche im letzten Teil dieses Abschnittes erläutert ist.

4.1.1 Präparation von GaAs(001)-Oberflächen

Ein Charakteristikum von GaAs(001)-Oberflächen, wie auch der Oberflächen vieler anderer Materialien, ist eine von der Kristallstruktur im Inneren des Massivmaterials abweichende Anordnung der Atome der obersten Atomlagen (Oberflächenrekonstruktion). Einige hierüber bereits bekannte Fakten werden im folgenden vorgestellt. Anschließend wird das genaue Ziel der Oberflächenpräparation erläutert. Die Beschreibung der Durchführung dieser Präparation sowie die Interpretation von dabei gewonnenen Strukturdaten nimmt dann den größten Teil dieses Abschnittes ein.

Kristallstruktur von GaAs-Massivmaterial und GaAs(001)-Oberflächen

Viele wichtige Aspekte der Kristallstruktur von massivem GaAs und insbesondere von (001)-orientierten GaAs-Oberflächen wurden bereits von M. Brockmann in seiner Dissertation beschrieben [Brockmann 00]. Daher soll hier nur eine knappe Zusammenfassung gegeben werden. Galliumarsenid kristallisiert in Zinkblende-Struktur, d.h. man hat ein kubisch-flächenzentriertes (fcc) Gitter, dessen Basis mit zwei Atomen besetzt ist, nämlich mit einem Ga- und einem As-Atom, die um ein Viertel der Raumdiagonalen der kubischen Elementarzelle gegeneinander verschoben sind. Die Verbindungslinie der beiden Atome in der Elementarzelle stellt eine ausgezeichnete Richtung dar, es liegt also eine uniaxiale strukturelle Anisotropie vor.

Jedes Atom ist über vier sp^3-hybridisierte Valenzen tetraederförmig an seine nächsten Nachbarn der jeweils anderen Spezies gebunden. Könnte man einen defektfreien massiven GaAs-Kristall genau zwischen zwei (001)-Netzebenen spalten, so würde an der Oberfläche von einem der beiden Spaltstücke die oberste Atomlage aus Ga-Atomen bestehen und beim anderen Spaltstück aus As-Atomen. Dabei hat jedes dieser obersten Atome zwei nicht-abgesättigte Bindungen („dangling bonds“), die unter 45° aus der Oberfläche herausragen. Die Projektion der dangling bonds auf die (001)-Ebene ist bei jeder Atomsorte einheitlich orientiert, nämlich bei Ga-Atomen konventionsgemäß parallel zur [110]-Richtung und bei As-Atomen parallel zur [-110]-Richtung, worin sich wiederum die uniaxiale strukturelle Anisotropie des GaAs-Gitters widerspiegelt. Diese Situation ist jedoch energetisch ungünstig, weshalb benachbarte dangling bonds versuchen, sich gegenseitig abzusättigen. Dadurch rücken jeweils zwei Oberflächenatome desselben chemischen Elements um Bruchteile eines Massivmaterial-Atomabstands aufeinander zu, was man als *Dimerbildung* bezeichnet.

Aber auch dies stellt noch nicht den energetisch günstigsten Zustand einer GaAs(001)-Oberfläche dar. Wegen der unterschiedlichen Energieniveaus der Elektronen in dangling bonds von Ga- bzw. As-Atomen kommt es nämlich zu einem gewissen Ladungstransfer aus den dangling bonds des elektropositiven As zu den dangling bonds des elektronegativen Ga, was mit einem Anwachsen der

elektrostatischen Energie verbunden ist [Xue 99]. Erst wenn ein gewisser Teil der Dimere fehlt, herrscht im Mittel Ladungsneutralität und die elektrostatische Energie ist minimal.

Die mittlere Zahl fehlender Dimere kann man ausdrücken durch das Verhältnis der Stoffmengenanteile von Ga und As in den obersten Atomlagen. Dieses Mengenverhältnis kann durch verschiedene Maßnahmen beeinflußt werden, z.B. durch Anlagerung einer der beiden Substanzen aus der Dampfphase oder durch präferentielle Desorption einer Atomsorte bei hinreichend hohen Temperaturen. Das Mengenverhältnis stellt deshalb letztlich einen freien Parameter dar. Für ganz bestimmte Stoffmengenverhältnisse hat die freie Oberflächenenergie relative Minima und es ergeben sich mehr oder weniger regelmäßige Überstrukturen, die man als „Oberflächenrekonstruktionen" bezeichnet. Die Periodizitäten dieser Überstrukturen betragen ein Vielfaches des Nächste-Nachbar-Abstands des Massivmaterials und können in verschiedenen Richtungen der Oberfläche verschieden sein. Da die freie Oberflächenenergie bei GaAs(001) als Funktion des Ga/As-Stoffmengenverhältnisses recht viele relative Minima aufweist, gibt es eine große Vielfalt von möglichen Rekonstruktionen. Wichtige Beispiele sind, in der Reihenfolge abnehmenden As-Gehalts, die sogenannten

c(4x4)
(2x4) bzw. c(2x8)
(1x6) bzw. (2x6) bzw. (3x6) bzw. (6x6)
(4x2) bzw. c(8x2)

Rekonstruktionen, sowie die „genuine (4x6) Rekonstruktion" [Xue 95] [Xue 99] [Chizhov 98]. Für diese Rekonstruktionen finden sich Skizzen der Atomanordnung bei Brockmann [Brockmann 00]. Allerdings sind diese Strukturmodelle zum Teil noch heute Gegenstand der Diskussion. Das Thema Struktur von GaAs(001)-Oberflächen kann daher weder von theoretischer noch von experimenteller Seite her als abgeschlossen gelten.

Ziel der Oberflächenpräparation

Die reale Oberfläche eines GaAs-Kristalls wird zunächst eine mehr oder weniger willkürliche Beschaffenheit aufweisen. Man versucht deshalb, durch eine geeignete Oberflächenpräparation eine bestimmte gewünschte Oberflächenstruktur reproduzierbar herzustellen. Zur Verwendung als Substrat für magnetische Schichten sind im allgemeinen möglichst einfache Oberflächenstrukturen erwünscht, um den Einfluß des Substrats auf die magnetischen Eigenschaften der Schicht auf möglichst wenige charakteristische Parameter des Substrats zurückführen zu können.

Erforderlich ist zunächst die Entfernung von Fremdstoffen, wie H_2O, C_nH_m, CO_x und die sogenannte „native" Oxidschicht. Darüber hinaus möchte man die Oberflächenrauhigkeit minimieren, d.h. man möchte sehr große Bereiche erhalten, innerhalb derer alle Oberflächenatome zu ein und derselben Netzebene gehören. Da eine glatte Oberfläche im allgemeinen eine geringere freie Energie besitzt als eine rauhe Oberfläche, kann man eine Glättung erwarten, wenn man die zur selbständigen Umordnung der Atome notwendige Aktivierungsenergie zuführt. Außerdem möchte man bestimmte Oberflächenrekonstruktionen in „Reinkultur" erhalten. Dazu ist eine präzise Einstellung des mittleren Stoffmengenverhältnisses zwischen As und Ga in den obersten Atomlagen notwendig. Bei einer Abweichung dieses mittleren Stoffmengenverhältnisses von dem für eine bestimmte Rekonstruktion erforderlichen diskreten Wert bewirken Oberflächendiffusionsprozesse einen Materialtransport über mesoskopische Distanzen, so daß sich in benachbarten Gebieten unterschiedliche diskrete Stoffmengenverhältnisse einstellen, welche mit unterschiedlichen Rekonstruktionen verbunden sind. Die Diffusionslänge bestimmt dabei die Ausdehnung der gleichförmig rekonstruierten Gebiete von typischerweise einigen 10 nm bis einigen 100 nm.

Um diese Ziele zu erreichen wurde bei den im folgenden beschriebenen Experimenten eine Wärmebehandlung (*Tempern*) im Ultrahochvakuum und ein Beschuß der Oberfläche mit Argon-Ionen (*Ionenätzen*) durchgeführt. Der Erfolg dieser Maßnahmen wurde durch *in-situ* Strukturuntersuchungsmethoden, wie RHEED und STM, kontrolliert.

Das verwendete GaAs-Substratmaterial

Für die durchzuführenden Experimente bildete ein kommerzieller einkristalliner GaAs-Wafer vom Durchmesser 3'' der Firma Freiberger Compound Materials GmbH (Ingot-Nr. 26719) die Grundlage. Dieser wurde mit dem „Liquid Encapsulated Czochralski" (LEC) - Verfahren produziert. Der Wafer ist undotiert („semi-isolierend") und auf einer Seite bis zur industriellen Qualitätskategorie

„epi-ready“ poliert. Nach Herstellerspezifikation weist die Oberflächennormale relativ zur (001)-Richtung eine unbeabsichtigte Fehlorientierung von maximal 0.5° auf. Zur Unterscheidung von absichtlich fehlgeschnittenen Einkristalloberflächen, die als „vizinal“ bezeichnet werden, spricht man in diesem Fall von einem „singulären“ Wafer. Man müßte diesen Wafer allerdings trotzdem als „vizinal“ bezeichnen, wenn sich herausstellt, daß auch der geringe unbeabsichtigte Fehlschnitt im Hinblick auf bestimmte Eigenschaften nicht vernachlässigbar ist. Die Waferrückseite weist Ätzstrukturen auf, die beim Hersteller während des chemisch-mechanischen Polierens der Vorderseite entstanden sind. Diese Ätzstrukturen ermöglichen eine eindeutige Zuordnung der [110]-Kristallachse: Erstens erscheinen die Strukturen im Lichtmikroskop länglich in einer Richtung, welche auf der polierten Vorderseite eine [110]-Richtung ist. Zweitens reflektieren die Ätzstrukturen schräg einfallendes Licht bevorzugt senkrecht zu dieser Richtung, was mit bloßem Auge als Glanz zu erkennen ist.

Der Wafer mußte in quadratische Stücke von 11x11 mm² zerteilt werden, was bei den zu verwendenden experimentellen Apparaturen eine günstige Probengröße darstellt. Dabei war die Tatsache nützlich, daß sich GaAs bevorzugt in Ebenen spalten läßt, die zu den ⟨110⟩-Kristallachsen senkrecht sind. Um eine Sollbruchstelle zu erzeugen wird der Wafer, bzw. ein Teil davon, zunächst mit einem kommerziellen mechanischen Präzisionsgerät angeritzt, das dankenswerterweise am Lehrstuhl Weiss zur Verfügung gestellt wurde. Mit Hilfe einer Mikrometerschraube kann ein Diamant unter einem Lichtmikroskop in einem bestimmten Abstand von den Rändern der Waferstücke positioniert werden. Dann wird auf der polierten Seite eine Ritzung von nur ca. 0.5 mm Länge über eine Kante hinweg durchgeführt, und zwar genau parallel zu einer ⟨110⟩-Richtung. Diese Richtung erkennt man zunächst am „Orientierungsflat“ des runden Wafers und später an den geradlinigen Kanten der Bruchstücke. Nach dem Ritzen legt man das Stück mit der polierten Seite nach unten in eine Kunststoffschale, die einen kugelsegmentförmigen Boden besitzt („wafer tray“ des Herstellers Fluoroware). Das Material liegt dann nur punktuell an den Rändern bzw. Ecken auf. Man übt nun mit einer Kunststoffpinzette genau hinter der Ritzung eine Kraft aus, bis das Stück bricht. Wegen des stark anisotropen Zusammenhalts der Atome im GaAs-Einkristall verläuft der Bruch von selbst genau parallel zu einer (110)-Netzebene. Durch mehrfache Wiederholung dieser Schritte kann man schließlich quadratische Stücke mit den gewünschten Abmessungen erhalten.

Auf eine Lagerung des Wafers bzw. der Bruchstücke in einem Exsikkator, eine Behandlung mit Lösungsmitteln oder andere naßchemische Maßnahmen wurde verzichtet, da man durch die folgende *in-situ* Präparation trotzdem zuverlässig GaAs-Oberflächen von hoher Qualität erzielt.

Tempern

Zu Beginn der Probenpräparation wird ein Substratstück mit flüssigem GaIn-Eutektikum auf einer Probenträgerplatte befestigt, wie auf Seite 20 beschrieben. Durch ungefähr einstündiges Heizen mit einer Halogenlampe auf ca. 200 °C in der Schleusenkammer bei laufender Turbomolekularpumpe werden leichtflüchtige Adsorbate, wie z.B. Wasser, entfernt. Dann erfolgt der Transfer in die Hauptkammer der MBE-Anlage. Eine RHEED-Untersuchung zeigt in diesem Stadium ein völlig diffuses Beugungsbild (Abb. 4.1 a), was auf eine völlig ungeordnete Oberfläche hindeutet. Wie allgemein bekannt, hat man eine „native“ Oxidschicht. Die Auger-Spektroskopie-Daten von Brockmann [Brockmann 00] weisen außerdem auf kohlenstoffhaltige Adsorbate hin. Nun wird die Probenheizung in Betrieb genommen und zwar zunächst mit einer „moderaten“ Heizleistung, so daß die Probentemperatur mit ca. 20 °C/min ansteigt. Beim Überschreiten einer Temperatur von 250 °C kommt es zu einem Anstieg des Totaldrucks in der Hauptkammer bis auf ca. $2 \cdot 10^{-8}$ hPa. Dabei erkennt man im Restgas-Massenspektrum eine Zunahme der zu den Massen 28 und 44 gehörigen Partialdrücke, was man als Desorption von Kohlenstoff und Sauerstoff in Form von CO und CO_2 interpretieren kann. Möglicherweise kommt es auch zu einer Desorption von O_2. Sauerstoff wird jedoch von den Sorptionspumpen sehr effektiv gebunden und tritt daher im Massenspektrum kaum in Erscheinung. Man läßt die Temperatur bis auf ca. 500 °C ansteigen und wartet ab, bis der Totaldruck wieder in den 10^{-10} hPa Bereich gesunken ist. Dies dauert ca. eine Stunde. Dann wird unter permanenter RHEED-Überwachung die Temperatur weiter erhöht. Bei ca. 560 °C wandelt sich das diffuse RHEED-Bild innerhalb von wenigen Sekunden in ein Muster von „RHEED-Spots“ um (Abb. 4.1 b). Dies kann nach früheren Untersuchungen mit Auger-Spektroskopie als vollständige Desorption der nativen Oxidschicht gedeutet werden. Dabei verbleibt jedoch etwas Kohlenstoff an der Oberfläche [Brockmann 00]. Die Beugungsreflexe bilden ein Kreuzgitter und verschieben sich beim *beam rocking* (vgl. Seite 28) nicht. Es muß sich also um Beugung an dreidimensionalen kristallinen Objekten handeln (vgl. Abb. 3.7), weshalb man auch von *Durchstrahlungsreflexen* oder

von einem *3D-Muster* spricht. Tatsächlich zeigt ein STM-Bild, das nach Abkühlen auf Zimmertemperatur aufgenommen wurde (Abb. 4.2), eine beträchtliche Oberflächenrauhigkeit (Amplitude ca. 10 nm) mit kurzwelliger lateraler Periodizität (ebenfalls ca. 10 nm). Es erscheint daher plausibel, daß fast alle Elektronen des RHEED-Systems dreidimensionale Strukturen durchstrahlen.

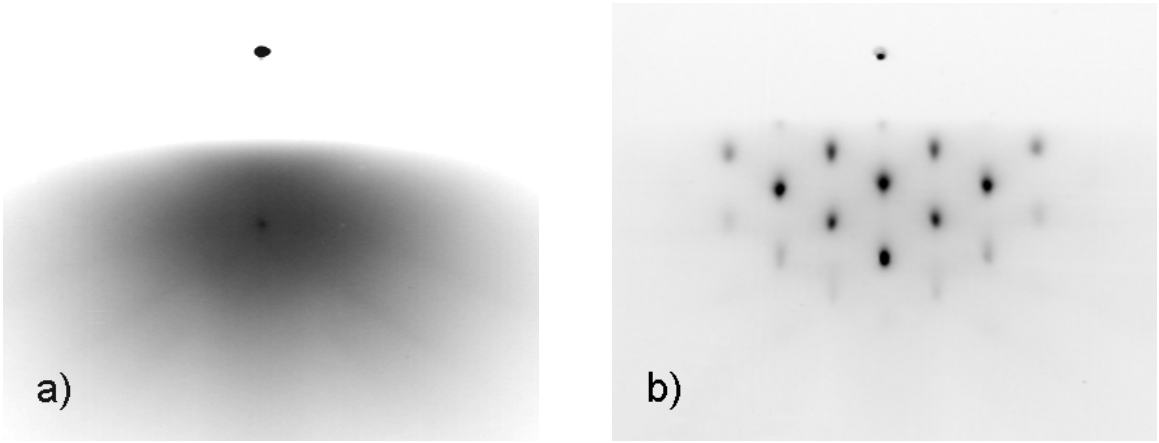

Abb. 4.1 : RHEED-Bilder a) vor und b) nach dem Tempern eines GaAs(001)-Wafers. Elektroneneinfall parallel zur [110]-Richtung. Man beachte, daß es sich um „Negativ-Bilder" handelt: maximale Intensität entspricht stärkster Schwärzung. Der oberste schwarze Punkt entsteht, da ein gewisser Teil der einfallenden Elektronen die Probe knapp verfehlt und sich somit ungebeugt bis zum Leuchtschirm ausbreitet.

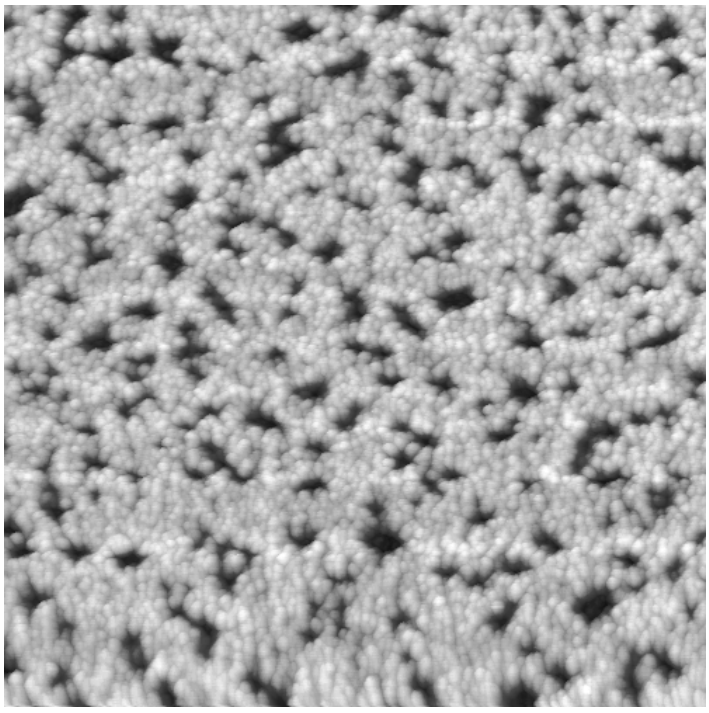

Abb. 4.2 : STM-Bild nach dem Tempern eines GaAs(001)-Wafers. Bildfläche: 1000 x 1000 nm^2 ; Höhenbereich (von schwarz bis weiß): 11.5 nm

Manchmal treten die RHEED-Spots nicht bei der üblichen Heizleistung auf oder werden zunächst nur auf einem Teil der Oberfläche sichtbar. Dies war bisher in allen Fällen auf einen schlechten Wärmekontakt zwischen Probenträgerplatte und Substratrückseite zurückzuführen. Bei abgedunkelter Umgebung kann man den Wärmekontakt mit bloßem Auge gut beurteilen, indem man das bei Temperaturen oberhalb 500 °C erkennbare Glühen von Probenhalter und Probenoberfläche

beobachtet. Manchmal ist der Wärmekontakt so schlecht, daß zwar der Probenhalter rot glüht, die Substratoberfläche jedoch völlig dunkel bleibt oder man erkennt eine inhomogene Helligkeit der Substratoberfläche. In solchen Fällen muß die Probe ausgeschleust und neu befestigt werden. Bei guter Befestigung leuchtet die Probe auf ihrer ganzen Oberfläche mit der gleichen Helligkeit wie der Probenhalter.

Die Temperatur sollte nicht wesentlich über den Wert erhöht werden, bei welchem die Desorption der Oxidschicht erfolgt und das Tempern sollte nach dem Desorbieren der Oxidschicht auch nicht über längere Zeit fortgesetzt werden. Wegen der im Vergleich zu Ga höheren Flüchtigkeit von As kommt es nämlich zu einer fortschreitenden Anreicherung von Ga an der Oberfläche, die durch eine Temperaturerhöhung stark beschleunigt wird. Beim Überschreiten einer Temperatur von ca. 650 °C entsteht innerhalb von wenigen Minuten ein matter Belag. Es handelt sich dabei um mikroskopisch kleine Tröpfchen von flüssigem Gallium. Man erkennt dies zum einen daran, daß die Oberfläche zu glänzen beginnt, wenn man sie reibt, da beim Reiben die einzelnen Ga-Tröpfchen miteinander verfließen. Aus demselben Grund verringert sich der elektrische Widerstand zwischen zwei auf die Oberfläche aufgesetzten Metallspitzen durch das Reiben um mehrere Größenordnungen. Gut ist es also, während des Temperns darauf zu achten, ob die Probenoberfläche einfallendes Licht diffus streut. Wenn dies der Fall ist, wurde die Probe „übertempert“.

Ionenätzen

Eine Glättung der GaAs-Oberfläche über das in Abb. 4.2 dokumentierte Maß hinaus und eine vollständige Entfernung von kohlenstoffhaltigen Verunreinigungen ist alleine durch Tempern nicht zu erreichen. Einem Rezept von M. Brockmann folgend wird deshalb zusätzlich ein Argon-Ionen-Ätzen durchgeführt. Bei den ersten Versuchen wurde für 15 min bei einer Ionenenergie von 500 eV, einer Ionenstromdichte von 1 $\mu A/cm^2$ und einer Probentemperatur von 550 °C geätzt, wobei die Ionen unter 45° auf die Probenoberfläche gerichtet wurden. Nach Beendigung des Ionenbeschusses wurde die Temperatur noch 10 Minuten lang unverändert aufrechterhalten. Dieses „Nachtempern“ wurde empfohlen mit dem Argument, daß eine durch den Ionenbeschuß eventuell bewirkte Aufrauhung Gelegenheit bekommen soll, auszuheilen.

Nach dieser Prozedur bekommt man im RHEED bei Elektroneneinfall in einer [110]-Richtung ein Bild wie in Abb. 4.3 a. Ein Großteil der gebeugten Intensität erstreckt sich auf Spots, welche auf einem Laue-Kreis liegen. Dies weist darauf hin, daß der größte Teil der Oberfläche aus Terrassen besteht, deren laterale Ausdehnung groß ist gegenüber der Eindringtiefe und der Kohärenzlänge der Elektronen (vgl. Abb. 3.7). Dieser Befund bestätigt sich im STM (vgl. Abb. 4.4). Man erkennt atomar glatte Terrassen von bis zu 100 nm Größe. Dieser zweite Schritt der Oberflächenpräparation hat also eine beträchtliche Glättung bewirkt.

Im RHEED-Bild von Abb. 4.3 a sind neben dem Laue-Kreis weitere Reflexe zu erkennen, die analog zu Abb. 4.1 b auf einem Kreuzgitter liegen. Beim „beam rocking“ verändert sich wie erwartet der Radius des Laue-Kreises, während diese zusätzlichen Reflexe ortsfest bleiben. Diese Spots müssen daher von durchstrahlbaren dreidimensionalen Strukturen stammen. Im STM-Bild (Abb. 4.4) sieht man „Löcher“ von bis zu 6 nm Tiefe. Eine Durchstrahlung der Lochränder kommt als Ursache für die 3D-Reflexe in Frage.

Mit Hilfe der 3D-Reflexe lassen sich am Lauekreis die „Hauptreflexe“ identifizieren, d.h. die Reflexe, welche auch dann vorhanden wären, wenn an der Oberfläche keine Überstruktur vorliegen würde. Sie befinden sich genau senkrecht unterhalb der 3D-Reflexe. Zwischen benachbarten Hauptreflexen erkennt man *drei* zusätzliche Reflexe („Zwischenreflexe“), was auf eine Überstruktur mit der vierfachen Periode des Massivmaterials in der [-110]-Richtung, d.h. senkrecht zum Elektronenstrahl, hindeutet. Interessanterweise dominiert die Intensität der Hauptreflexe nicht. Die Spotintensitäten hängen vielmehr in komplizierter Weise vom polaren Einfallswinkel der Elektronen ab (siehe dazu den Abschnitt über „beam rocking“ auf Seite 62 f.). Nur für einen ganz bestimmten Einfallswinkel haben alle Spots wie in Abb. 4.3 a eine einheitliche Intensität.

Bei Elektroneneinfall in [-110]-Richtung (Abb. 4.3 b) zeigen RHEED-Bilder ebenfalls Laue-Kreise, aber mit schwachen Andeutungen von *fünf* Überstrukturreflexen zwischen den Hauptreflexen (in Abb. 4.3 b kaum erkennbar), womit auf eine Rekonstruktion mit sechsfacher Massivmaterialperiode in [110]-Richtung zu schließen ist. Die parallel zum Elektronenstrahl vorhandene Überstruktur führt in diesem Fall zum Auftreten von „Zwischenlauekreisen“ neben den „Hauptlauekreisen“, wobei Haupt- und Zwischenlauekreise wiederum nicht durch ihre Intensität unterschieden werden können. Die Intensitätsverhältnisse der Reflexe ändern sich auch in diesem Fall in komplizierter Weise mit

dem polaren Einfallswinkel, weshalb man RHEED-Bilder verschiedener Proben nur dann miteinander vergleichen kann, wenn sichergestellt ist, daß der Polarwinkel mit hinreichender Genauigkeit übereinstimmt.

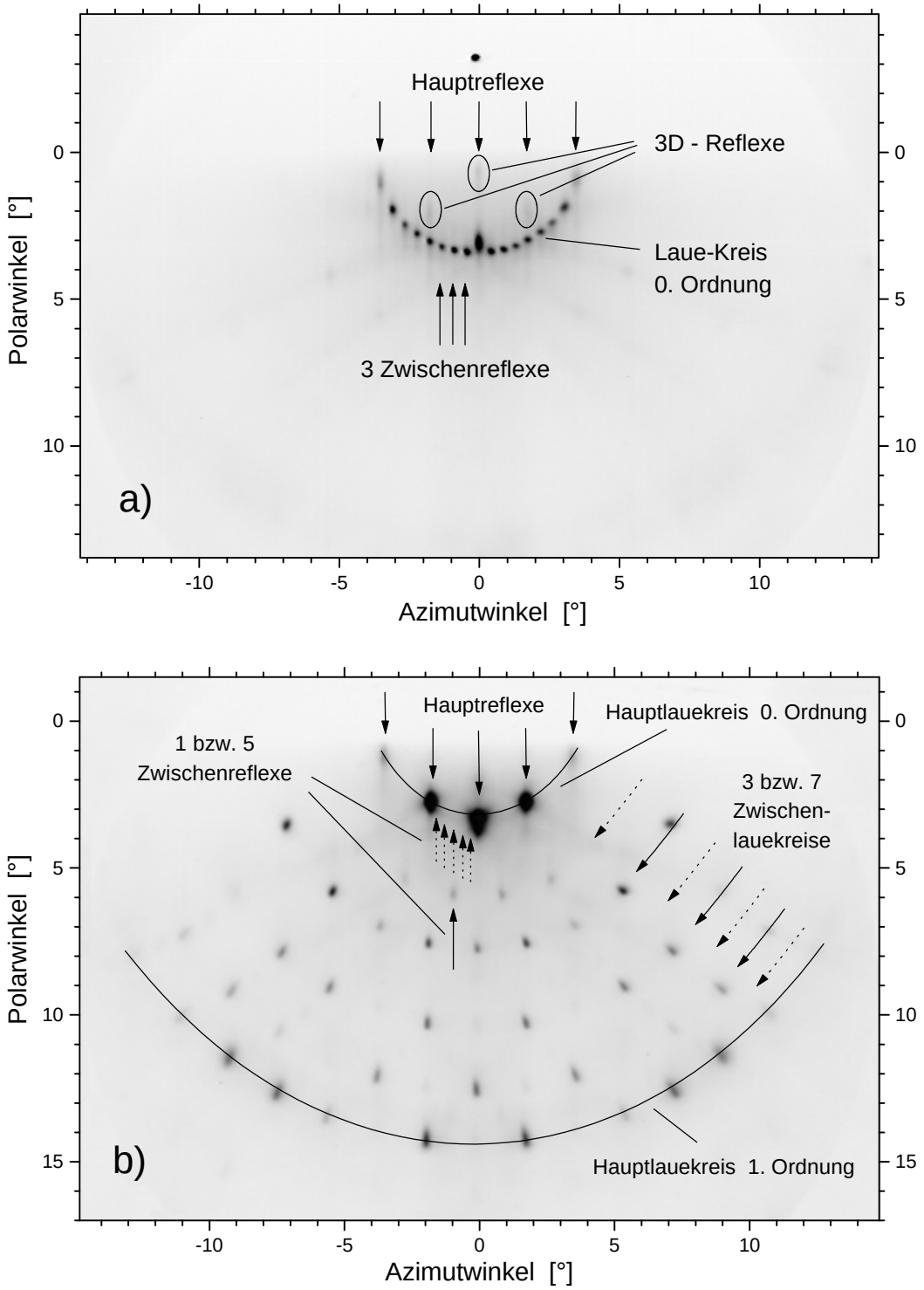

Abb. 4.3 : RHEED-Bilder einer getemperten und ionengeätzten GaAs(001)-Oberfläche. a) Elektronenstrahl parallel zur [110]-Richtung b) Elektronenstrahl parallel zur [-110]-Richtung

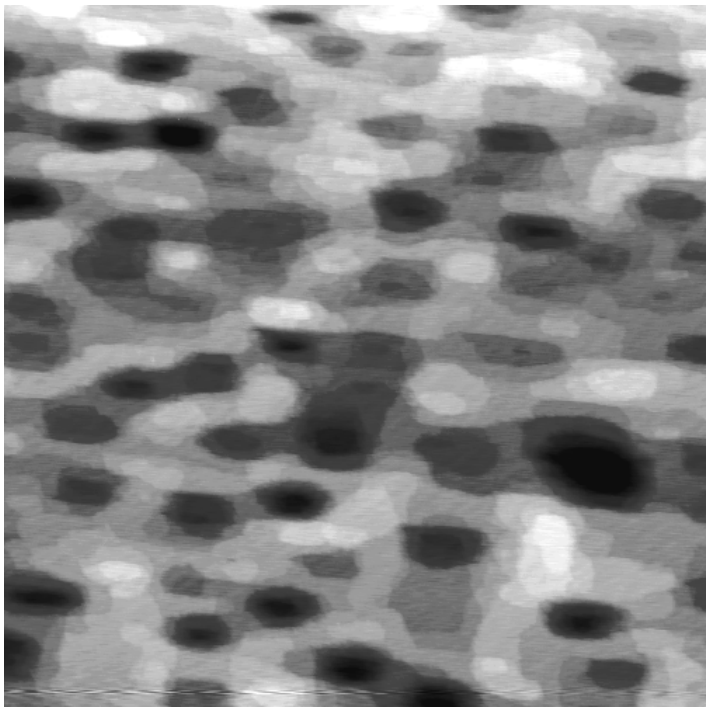

Abb. 4.4 : STM-Bild einer getemperten und ionengeätzten GaAs(001)-Oberfläche. Bildfläche: 1000 x 1000 nm^2 ; Höhenbereich: 6.4 nm

Hochaufgelöste STM-Bilder [Moosbühler 01 a] zeigen Bereiche mit ausgeprägten Streifen in [-110]-Richtung, deren Abstand von 2.4 nm dem sechsfachen Ga-Ga-Nächste-Nachbar-Abstand des massiven GaAs entspricht. Diese Bereiche weisen offenbar eine Rekonstruktion auf, von welcher in der Literatur mehrere Varianten bekannt sind, welche sich bezüglich der Periodizität in [-110]-Richtung unterscheiden, aber praktisch dasselbe Ga/As-Stoffmengenverhältnis besitzen. Es finden sich Bezeichnungen wie (1x6), (2x6), (3x6) oder (6x6) [Biegelsen 90] [Xue 99] [McLean 99]. Im Folgenden wird für diese Art von Rekonstruktion die Bezeichnung (6x6) verwendet, da dieser Ausdruck alle typischen Periodizitäten umfaßt.

Gleichzeitig existieren auf der Probenoberfläche andere Bereiche mit kontrastärmer abgebildeten Streifen, welche parallel zur [110]-Richtung verlaufen und mit 1.6 nm den vierfachen Ga-Ga-Nächste-Nachbar-Abstand besitzen. Atomar aufgelösten STM-Messungen von R. Moosbühler zufolge hat man in diesen Bereichen eine Struktur, welche zum Teil an die in der Literatur berichtete „genuine (4x6)-Rekonstruktion“ als auch an die (4x2)- bzw. c(8x2)-Rekonstruktion erinnert [Xue 99].

Offenbar kommt es durch die Koexistenz von (x2)- bzw. (x6)- und (4x)- bzw. (8x)-rekonstruierten Bereichen dazu, daß Elektronenbeugungsbilder sowohl eine Zweifach- bzw. Sechsfach-Überstruktur (1 bzw. 5 Zwischenreflexe in Abb. 4.3 b) als auch senkrecht dazu eine Vierfach- bzw. Achtfach-Überstruktur (3 bzw. 7 Zwischenlauekreise in Abb. 4.3 b) zeigen.

Präparation einer (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche

Nun war beabsichtigt, eine möglichst einheitlich (4x2)-rekonstruierte GaAs(001)-Oberfläche zu erzielen und auch die Oberflächenrauhigkeit weiter zu reduzieren. In Zusammenarbeit mit R. Moosbühler wurde dazu das Präparationsverfahren schrittweise optimiert. Das folgende Vorgehen liefert derzeit die besten Ergebnisse: Nach der Desorption der nativen Oxidschicht durch Tempern auf ca. 560 °C unter RHEED-Überwachung wird das Argon-Ionen-Ätzen gestartet und die Temperatur auf 620 °C erhöht. Die Ionenenergie wird mit 1 keV höher gewählt als bei früheren Experimenten. Die Ionenstromdichte beträgt nach wie vor ca. 1 µA/cm² und die Einfallsrichtung der Ionen ist ebenfalls unverändert um 45° zur Oberflächennormalen geneigt, und zwar so, daß die Projektion der Einfallsrichtung auf die Oberfläche parallel zur [110]-Kristallrichtung orientiert ist. Nach Ablauf einer Zeit von 30 min wird die Probenheizung abgeschaltet, worauf die Temperatur der Probe mit einer Rate von ca. 0.5 K/sec zu sinken beginnt. Gleichzeitig wird die Ionenenergie auf 0.5 keV verringert. Beim Unterschreiten von 550 °C wird das Ionenätzen beendet und die Probe kühlt bis auf Zimmertemperatur ab.

Auf ein Nachtempern wird verzichtet. Experimente von R. Moosbühler zeigen, daß es beim Nachtempern nicht zu einer weiteren Glättung der Oberfläche kommt [Moosbühler 01a]. Auch zur Optimierung der Einheitlichkeit einer (4x2)-Rekonstruktion ist ein Nachtempern nicht hilfreich. Es kann sogar schädlich sein, denn es entstehen Ga-Tröpfchen noch bevor sich alle (6x6)-rekonstruierten Bereiche in (4x2)-rekonstruierte Bereiche umgewandelt haben [Moosbühler 01a]. Dies ist wegen der bereits weiter oben im Abschnitt „Tempern“ diskutierten präferentiellen Desorption von As unmittelbar verständlich. Während des Ionenätzens wird dagegen der entstehende Überschuß an Ga kontinuierlich abgetragen, so daß höhere Probentemperaturen verwendet werden können, wodurch sich die Glättung der Oberfläche beschleunigt und auch die Gleichgewichts-Rauhigkeit, auf welche die Oberfläche bei lange andauerndem Ionenätzen zustrebt, geringer ausfällt als bei niedrigeren Temperaturen.

Abb. 4.5 a zeigt ein RHEED-Bild einer nach dem beschriebenen optimierten Verfahren präparierten GaAs(001)-Oberfläche bei Elektroneneinfall im [110]-Azimut. Man erkennt einen sehr klar ausgeprägten Lauekreis. Im Unterschied zu Abb. 4.3 a sind keine 3D-Spots zu erkennen. Auch ein Kikuchi-Muster oder ein diffuser Untergrund ist nicht zu beobachten. STM-Bilder bestätigen, daß atomar glatte Terrassen von mehreren hundert Nanometern Ausdehnung vorliegen [Moosbühler 01 a]. „Löcher“, wie in Abb. 4.4 zu sehen, sind offenbar nicht vorhanden.

Da man annehmen muß, daß es beim Ionenätzen zu einem statistisch gleichverteilten Abtrag von Atomen an völlig zufälligen Orten kommt, würde man eigentlich eine Aufrauhung erwarten, wobei die Oberflächenrauhigkeit proportional zur Quadratwurzel aus der Anzahl abgetragener Atomlagen ansteigen sollte. Daß es im Gegenteil zu einer Glättung kommt liegt wohl daran, daß die auftreffenden Ionen nicht nur einen Materialabtrag bewirken, sondern ihre kinetische Energie meist auf viele Atome verteilen, wobei der Energieübertrag oft nicht ausreicht, um den Atomen das Verlassen des Kristalls zu erlauben. Dadurch wird den Ga- und As-Atomen aber über die rein thermische Anregung hinaus Aktivierungsenergie für Oberflächendiffusionsprozesse zugeführt, so daß sie auf energetisch günstigere Gitterplätze gelangen können.

Die Dauer des Ionenätzprozesses kann vielleicht deutlich verringert werden, ohne erhebliche Verschlechterung des Ergebnisses. Dies wurde jedoch nicht systematisch überprüft. Umgekehrt wird aber ein lange dauerndes Ionenätzen bei hoher Temperatur (z.B. 620 °C) eher nützen als schaden. Daher können z.B. auch GaAs-Waferstücke, die schon lange der Luft ausgesetzt waren und eine dicke Oxidschicht gebildet hatten, ebenso wie geringfügig „übertemperte“ Oberflächen, durch hinreichend langes Ionenätzen gut präpariert werden.

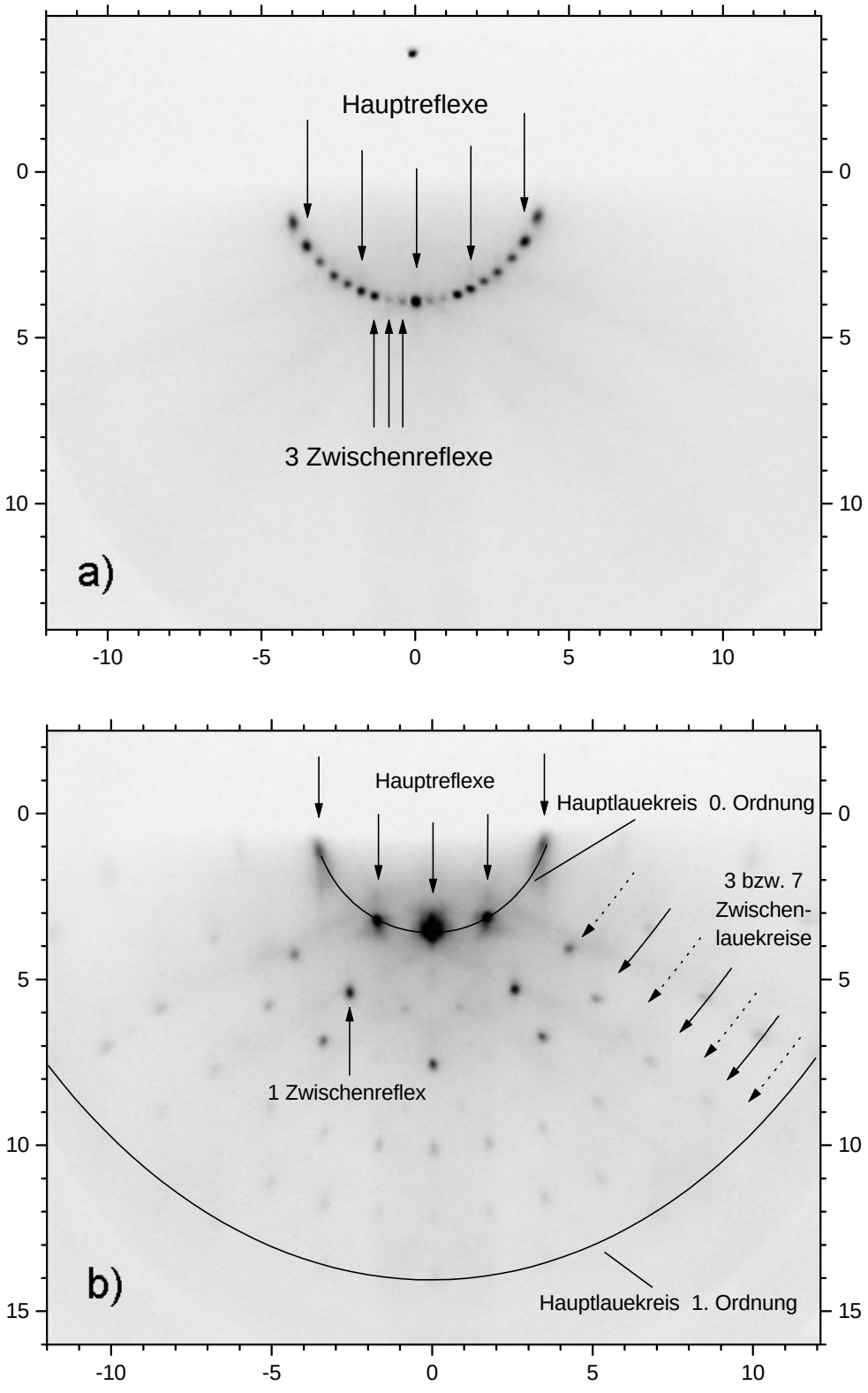

Abb. 4.5 : RHEED-Bilder einer nach dem optimierten Verfahren vorbehandelten GaAs(001)-Oberfläche. a) Elektronenstrahl parallel zur [110]-Richtung b) Elektronenstrahl parallel zur [-110]-Richtung

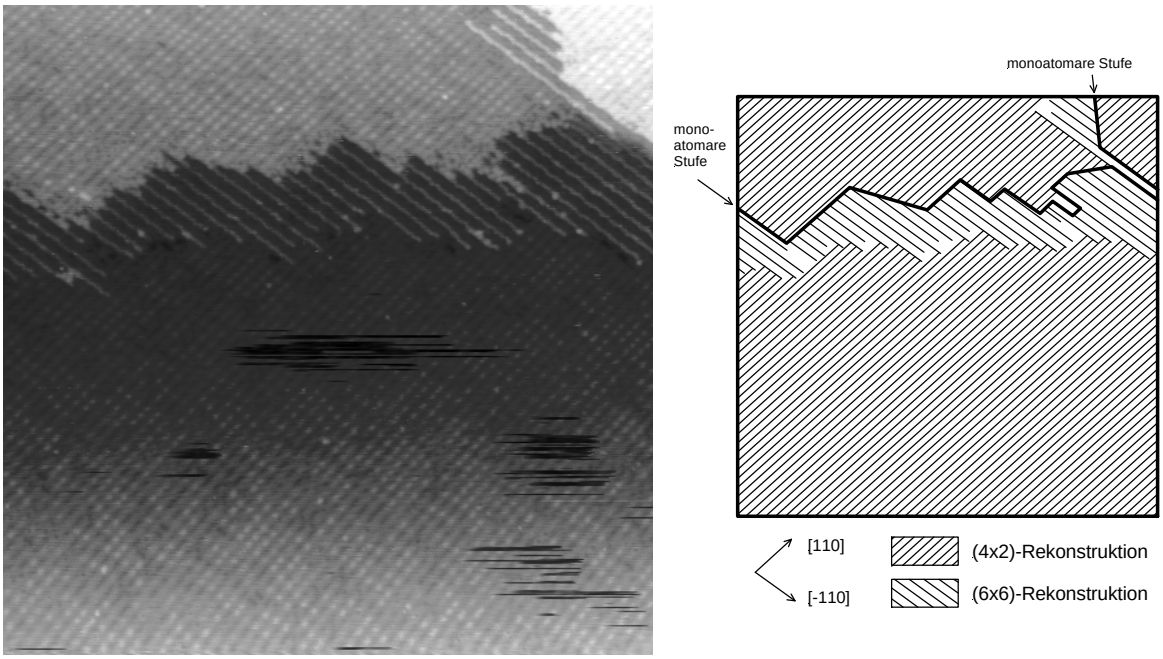

Abb. 4.6 : Links: STM-Bild einer nach dem optimierten Verfahren vorbehandelten GaAs(001)-Oberfläche. Die horizontalen schwarzen Streifen kommen durch Instabilitäten der Tunnelspitze zustande. Die diagonalen Streifen repräsentieren die Oberflächenrekonstruktion. Bildfläche: 100 x 100 nm^2. Höhenbereich: 0.7 nm. Rechts: Skizze der wichtigsten im STM-Bild erkennbaren Strukturen. Der größte Teil der Fläche ist (4x2)-rekonstruiert. Innerhalb des Bildausschnittes befinden sich zwei monoatomare Stufen. In einem ca. 40 nm breiten Streifen entlang der monoatomaren Stufen liegt eine (6x6)-Rekonstruktion vor.

In Abb. 4.6 und weiteren STM-Bildern von R. Moosbühler [Moosbühler 01 a] erkennt man, daß nach dieser Prozedur ca. 95 % der Probenoberfläche die für eine (4x2)-Rekonstruktion typischen Streifen parallel zur [110]-Richtung aufweist, während ca. 5 % der Fläche Streifen in [-110]-Richtung zeigt, welche auf eine (6x6)-Rekonstruktion hindeuten. Die (6x6)-Rekonstruktion ist offenbar in der Nähe von Stufenkanten energetisch bevorzugt. Da durch das Ionenätzen bei hoher Temperatur die Oberfläche erheblich geglättet wurde, ist der mittlere Abstand zwischen Stufenkanten größer als bei Proben, die nicht nach dem optimierten Verfahren vorbehandelt wurden. Somit kann ein größerer Prozentsatz der Fläche eine (4x2)-Rekonstruktion ausbilden.

Die genaue Atomanordnung in den verschieden rekonstruierten Bereichen ist aus den momentan verfügbaren Daten nicht eindeutig zu erschließen. Sie könnte in der Zukunft durch die Auswertung atomar aufgelöster STM-Bilder aufgeklärt werden. Vermutlich liegt in den Bereichen, welche hier der Einfachkeit halber als (4x2)-rekonstruiert bezeichnet werden, eher eine c(8x2)-Rekonstruktion vor. Auf eine (8x)-Periodizität weist jedenfalls die Tatsache hin, daß in Abb. 4.5 b nicht nur drei dominierende Zwischenlauekreise auftreten, sondern sich insgesamt sieben Zwischenlauekreise andeuten. Die (x2)-Periodizität bestätigt sich, da zwischen den Hauptreflexen nur ein einziger Überstrukturreflex zu erkennen ist.

Die beschriebene GaAs(001)-Oberfläche ist offenbar recht unempfindlich gegenüber dem in der Vakuumanlage vorhandenen Restgas. So wurde z.B. nach mehrwöchiger Lagerung bei einem Restgasdruck von ca. $1 \cdot 10^{-10}$ hPa mit Elektronenbeugung und Rastertunnelmikrokopie keine Veränderung der Oberflächenstruktur festgestellt.

RHEED „beam rocking“ an einer (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche

Bei einer nach dem optimierten Verfahren hergestellten (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche ändern sich bei RHEED mit Elektroneneinfall im [110]-Azimut die Verhältnisse der Helligkeiten verschiedener Reflexe auf dem Lauekreis mit dem polaren Einfallswinkel der Elektronen. Um dies systematisch zu dokumentieren, wurde der Polarwinkel schrittweise variiert und jeweils ein RHEED-Bild aufgenommen. Es wäre nun allerdings wenig sinnvoll, alle Einzelbilder einer solchen „Rocking-

Serie“ hier zu reproduzieren und auch eine Video-Sequenz wäre für den Leser nicht ohne weiteres zugänglich. Daher wurde angestrebt, ein Überlagerungsbild zu erstellen, welches die entscheidenden Informationen aller Einzelbilder in sich verkörpert. Dafür ist die Tatsache besonders günstig, daß jedes Einzelbild nur dort Strukturen aufweist, wo alle anderen Bilder keine Strukturen besitzen. Somit kann zur Überlagerung der Bilder ein Maximalintensität-Algorithmus benutzt werden, ohne dabei entscheidende Informationen zu verlieren. Abb. 4.7 zeigt ein Beispiel. Jeder Bildpunkt des Überlagerungsbildes stammt von demjenigen Einzelbild, welches an dieser Stelle die größte Schwärzung aufweist. Man beachte, daß dieser Algorithmus zu wesentlich besseren Resultaten führt, als etwa eine Mittelwertbildung. Da bei der Rocking-Serie von Abb. 4.7 der Polarwinkel in recht groben Schritten variiert wurde, sieht man die Lauekreise der Einzelbilder. Die Schrittweite der Polarwinkel-Variation ist jedoch ein willkürlicher Parameter und man muß sich klarmachen, daß die Abstände zwischen den Lauekreisen in Abb. 4.7 nicht durch eine intrinsische Eigenschaft der Probe zustande kommen. Ein von solchen Willkürlichkeiten unabhängiges Überlagerungsbild würde man erhalten, wenn man die Entwicklung der Spotintensitäten bei einer *kontinuierlichen* Veränderung des Polarwinkels registrieren würde, z.B. auf einer Fotoplatte.

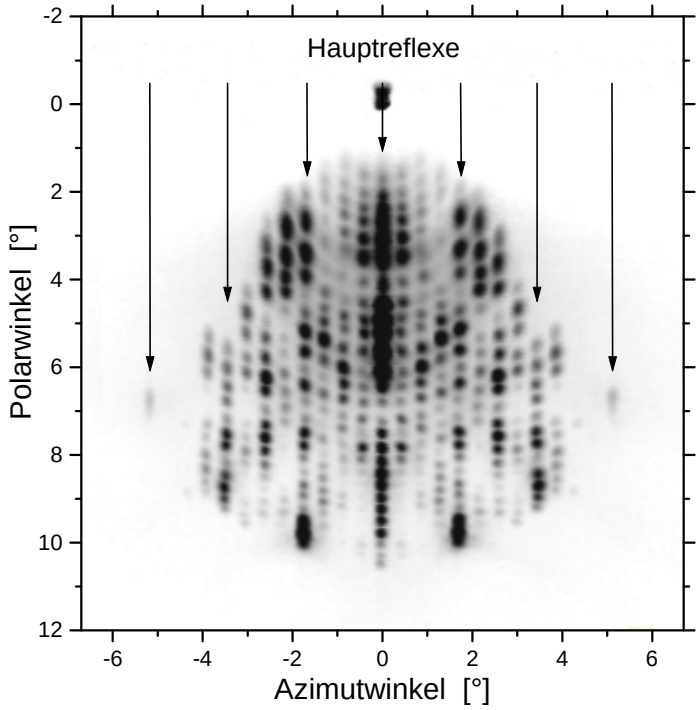

Abb. 4.7 : Überlagerungsbild von 28 Einzelbildern einer RHEED-Rockingserie einer nach dem „optimierten Verfahren“ präparierten (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche. Elektroneneinfall im [110]-Azimut.

Um dem Grenzfall einer kontinuierlichen Variation des Polarwinkels nahe zu kommen, wurde bei der Rocking-Serie, aus welcher sich Abb. 4.8 zusammensetzt, der Polarwinkel in so kleinen Schritten verändert, daß die Spots der Einzelbilder bei der Überlagerung zu vertikalen Streifen verfließen, wodurch die einzelnen Laue-Kreise nicht mehr zu erkennen sind. Die Intensität entlang der Streifen repräsentiert nun gewissermaßen den Verlauf des Streufaktors entlang der zur Oberfläche senkrechten Stäbe des reziproken Gitters. Offenbar steckt in diesem komplizierten Verlauf viel Information über die dreidimensionale Anordnung der Atome in den obersten Atomlagen des GaAs-Substrats. Eine Interpretation auf der Basis von Modellen der Atomanordnung wurde allerdings im Rahmen dieser Arbeit nicht versucht. Solche Modelle könnten aus atomar aufgelösten STM-Bildern [Moosbühler 01 a] abgeleitet und dann mit Hilfe von Beugungstheorien bestätigt oder widerlegt werden. Hier bietet sich für die Zukunft ein interessantes Betätigungsfeld.

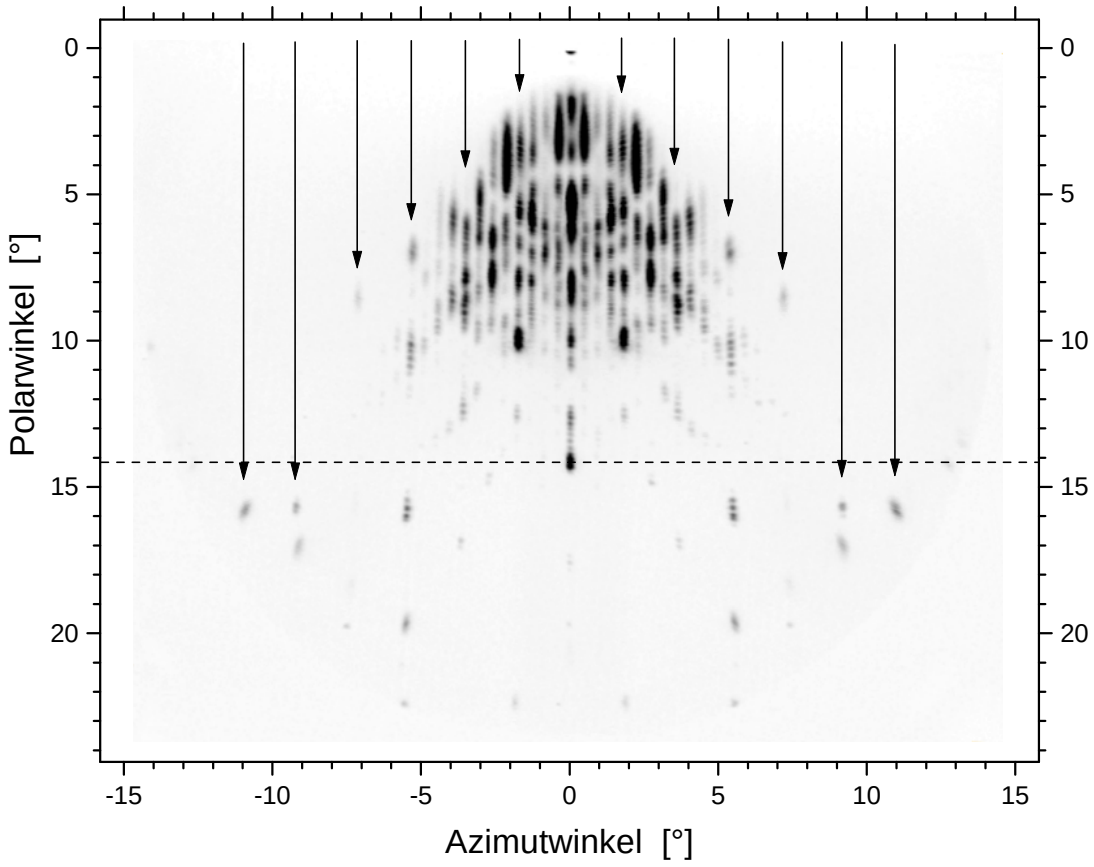

Abb. 4.8 : Überlagerungsbild von 109 Einzelbildern einer RHEED-Rockingserie an einer nach dem „optimierten Verfahren“ präparierten (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche. Elektroneneinfall im [110]-Azimut. Die Pfeile markieren die kristallographischen Hauptreflexe. Im Bereich unterhalb der horizontalen gestrichelten Linie liegen Reflexe des Lauekreises 1. Ordnung, welche gemeinsam mit Reflexen des Lauekreises 0. Ordnung oberhalb dieser Linie auftreten.

Abschließend bleibt zu erwähnen, daß die Präparation solcher Oberflächen sehr gut reproduzierbar ist, wie die Überlagerungsbilder der Rockingserien von drei weiteren Proben gezeigt haben, welche sich qualitativ nicht von Abb. 4.7 bzw. Abb. 4.8 unterscheiden.

Präparation einer (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche

Wenn man eine nach dem „optimierten Verfahren“ präparierte (4x2)-rekonstruierte GaAs(001)-Oberfläche für 3 Minuten bei einer Temperatur von 450 °C mit Argon-Ionen von 0.5 keV Energie und einer Stromdichte von 1 µA/cm^2 bestrahlt, erhält man eine Oberfläche, welche RHEED-Bilder wie in Abb. 4.9 und STM-Bilder wie in Abb. 4.10 liefert. Es liegt nun offenbar auf der gesamten Probenoberfläche eine einheitliche Überstruktur vor, welche zu der weiter oben als „(6x6)“ bezeichneten Klasse von Oberflächenrekonstruktionen gehört [McLean 99]. Die RHEED-Bilder zeigen, daß offenbar die (3x6)-Variante dieser Rekonstruktion dominiert, denn bei Elektroneneinfall in [110]-Richtung treten *zwei* „Zwischenstreaks“ und in [-110]-Richtung *fünf* „Zwischenspots“ auf.

Im STM-Bild von Abb. 4.10 erkennt man eine höhere Dichte von monoatomaren Stufen als auf der ursprünglichen Oberfläche (Abb. 4.6). Dies deutet auf eine durch das Ionenätzen bei relativ niedriger Temperatur (450 °C) verursachte Aufrauhung hin. Vielleicht kann die beabsichtigte Umwandlung der Oberflächenrekonstruktion bereits durch eine geringere Ionendosis bzw. bei einer höheren Temperatur erreicht werden. In diesem Fall sollte die Aufrauhung geringer sein.

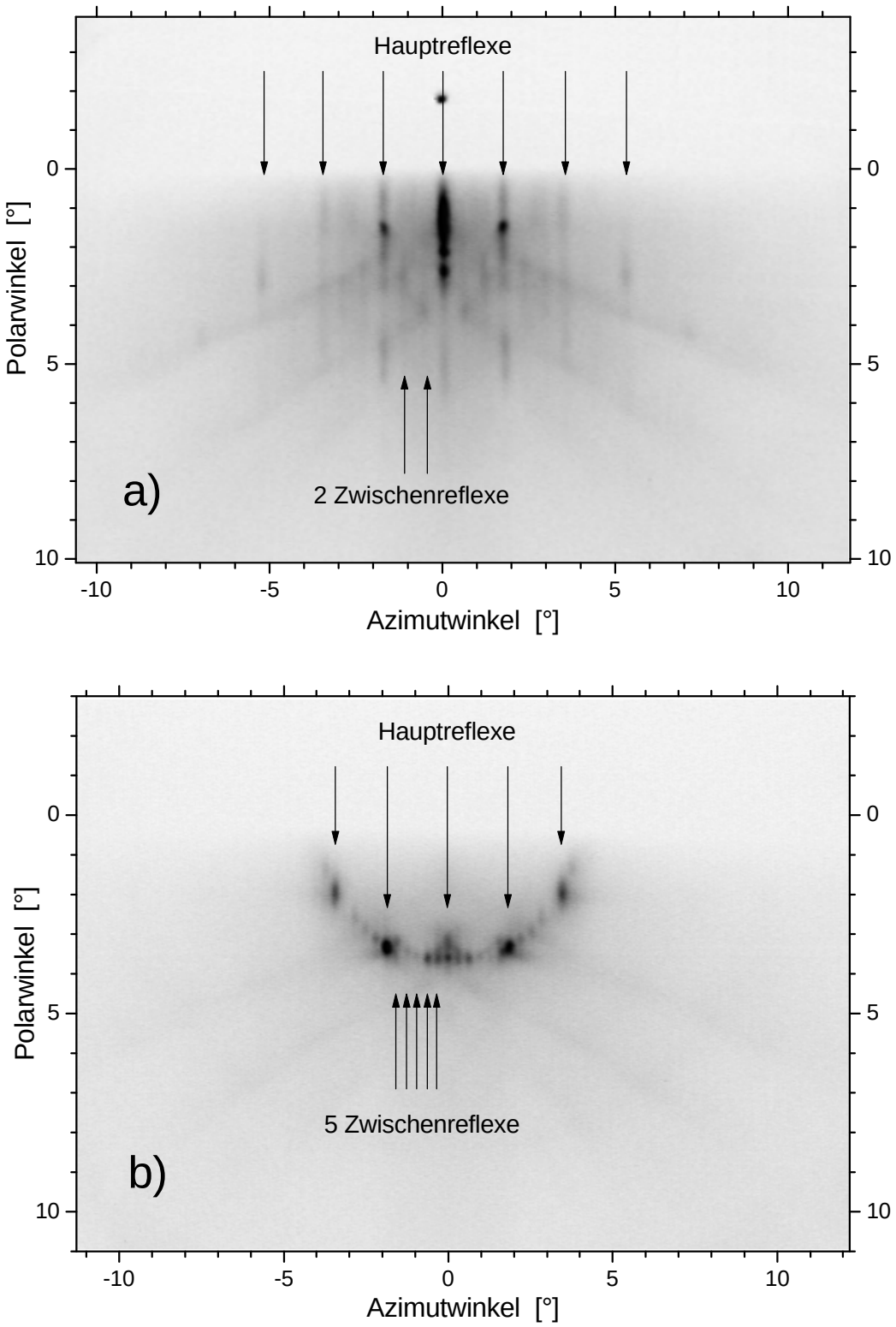

Abb. 4.9 : RHEED-Bilder einer (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche: a) Elektronenstrahl parallel zur [110]-Richtung b) Elektronenstrahl parallel zur [-110]-Richtung

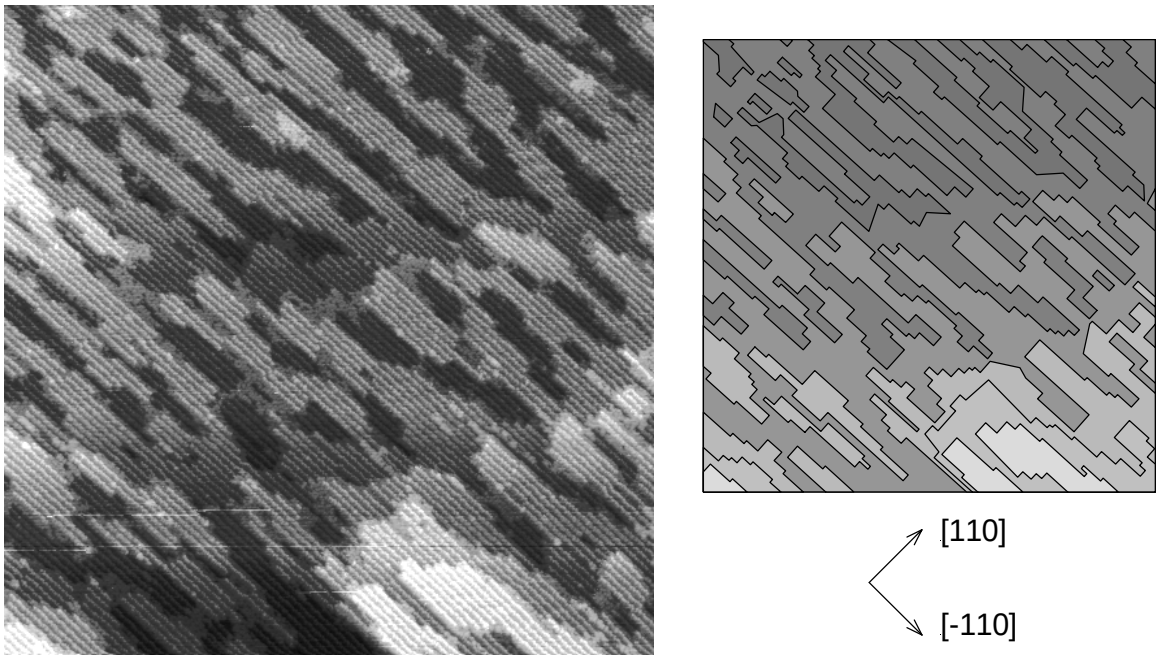

Abb. 4.10 : Links: STM-Bild einer einheitlich (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche, welche nach dem im Text beschriebenen Verfahren präpariert wurde. Bildfläche: 200 x 200 nm^2. Höhenbereich: 1.2 nm. Rechts: Skizze der im STM-Bild erkennbaren monoatomaren Stufen. Die dazwischen liegenden atomar glatten Bereiche gehören zu insgesamt 6 verschiedenen Atomlagen. Diese Atomlagen sind durch unterschiedliche Graustufen verdeutlicht.

4.1.2 Wachstum von Fe auf GaAs(001)-Oberflächen

Nun wird das Wachstum von Fe auf den soeben beschriebenen GaAs(001)-Oberflächen betrachtet. Dabei kommt es zunächst darauf an, die pro Flächeneinheit aufgebrachte Substanzmenge zu kennen, welche auch als „*nominelle Schichtdicke*“ ausgedrückt werden kann. Im weiteren Verlauf werden dann RHEED- und STM-Resultate zur Struktur der Fe-Schichten vorgestellt.

Schichtdickenbestimmung

Bei der Fe-Deposition erfolgt die Schichtdickenbestimmung mit Hilfe der auf Seite 23 ff. beschriebenen Schwingquarz-Mikrowaagen. Diese müssen jedoch zunächst geeicht werden. Um eine vorläufige Eichung zu erhalten, wurde die Masse eines GaAs(001)-Substrates vor und nach einer Fe-Bedampfung mit einer mechanischen Analysenwaage bestimmt und zu der beim Aufdampfen beobachteten Frequenzänderung des Referenzschwingquarzes in Relation gesetzt. Nach Umrechnung der Masse auf eine nominelle Schichtdicke mit Hilfe der Schichtfläche, der Massivmaterial-Gitterkonstanten und der Atommasse ergab sich ein Eichfaktor von 0.0438 ML/Hz.

Um diese Eichung zu bestätigen bzw. zu präzisieren, wurde später eine Fe(001)-Oberfläche präpariert, auf welcher beim Fe-Wachstum RHEED-Oszillationen auftreten sollten (vgl. Seite 28). Dazu wurden zunächst auf einem „optimal vorbehandelten“ (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Substrat (vgl. Seite 60 f.) ca. 70 ML Fe bei Zimmertemperatur aufgedampft. Anschließend wurde ein Argon-Ionenätzen dieser Fe-Oberfläche durchgeführt (0.5 keV, 1µA/cm²) und zwar zunächst für 10 min bei Zimmertemperatur, um das beim Schichtwachstum segregierte Ga und As zu entfernen, sowie für weitere 10 min bei 250 °C. Dann wurden 10 ML Fe bei 250 °C aufgedampft, wobei im RHEED eine beträchtliche Glättung der Oberfläche zu erkennen war, da sich die ursprünglich 3D-artigen Reflexe zu Positionen auf einem Laue-Kreis verschoben haben. Eine noch weitergehende Glättung wurde schließlich durch 15-minütiges Argon-Ionenätzen bei 280 °C erzielt. Dabei ist vermutlich derselbe Mechanismus maßgeblich, welcher auch beim Ionenätzen von GaAs(001)-Oberflächen zu einer Glättung führt (vgl. Seite 60). Im RHEED sind nun drei schmale längliche Reflexe zu erkennen, die auf einem Laue-Kreis liegen (vgl. Abb. 4.11).

Während des nun durchgeführten Aufdampfens von Fe bei 200 °C wurden Intensitätsoszillationen des RHEED-(0,0)-Reflexes beobachtet, welche in Abb. 4.11 gegen die Änderung der Schwingquarzfrequenz aufgetragen sind. Der Mittelwert aus den Abständen benachbarter Maxima und Minima auf der Frequenzskala liefert unmittelbar den gesuchten Eichfaktor von 23.02 Hz/ML bzw. 0.0434 ML/Hz. Dieser Wert ist um 0.9 % kleiner als der durch Wägung ermittelte Eichfaktor. Dies könnte bedeuten, daß die Dichte des auf GaAs(001) aufgewachsenen Fe um 0.9 % größer ist als die Dichte des Massivmaterials. Tatsächlich ist die Massivmaterial-Gitterkonstante von Fe um 1.4 % größer als die halbe Gitterkonstante von massivem GaAs, so daß dieser Befund mit einer durch pseudomorphes Wachstum bewirkten kompressiven Verspannung des Fe gedeutet werden könnte. Die Fehlergrenzen der benutzten Meßmethoden liegen jedoch ebenfalls im Bereich von 1 %, so daß dieser Schluß nicht zwingend ist. Durch die gute Übereinstimmung der beiden mit völlig unabhängigen Schichtdicken-Bestimmungsmethoden ermittelten Eichfaktoren ist jedenfalls eine zuverlässige Kalibrierung der Schwingquarz-Mikrowaagen sichergestellt.

Durch diese Eichung wird die massenabhängige Änderung der Schwingquarzfrequenz unmittelbar als eine Änderung der „nominellen Schichtdicke“ am Ort des Substrats in der Einheit Monolagen (ML) ausgedrückt. N Monolagen Fe(001) entsprechen dabei einer mittleren Zahl von N mal $1.217 \cdot 10^{15}$ Atomen pro Quadratzentimeter, unabhängig davon, ob die Fe-Schicht tatsächlich atomlagenweise gewachsen ist oder nicht. N braucht deshalb auch keine ganze Zahl zu sein.

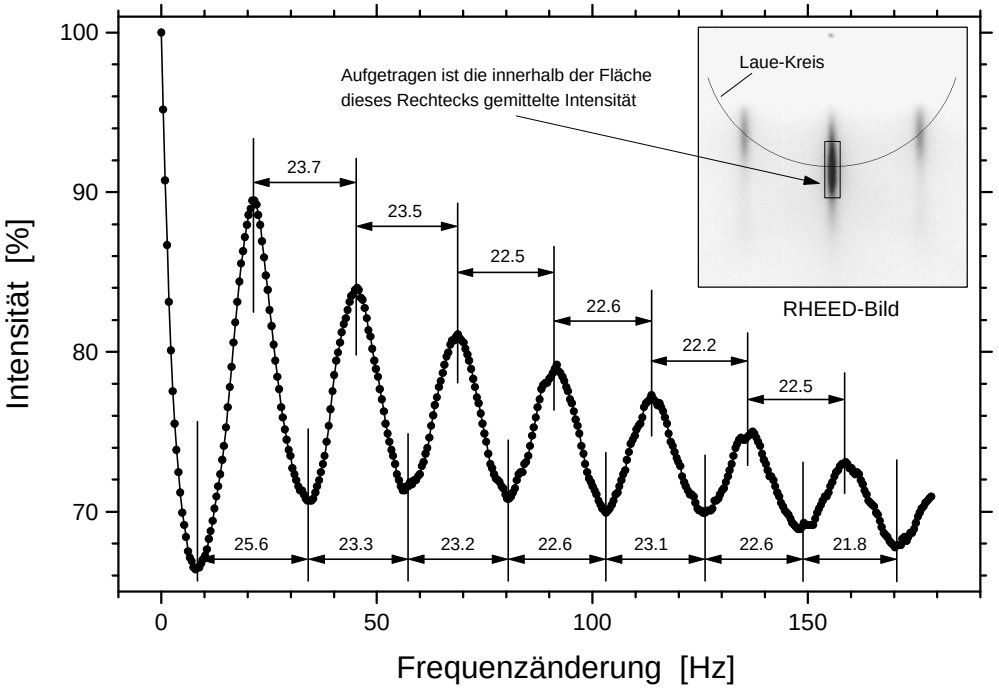

Abb. 4.11 : RHEED-Oszillationen bei der Homoepitaxie von Fe auf Fe(001)

Alternative Schichtdickenbestimmungsverfahren, die im Prinzip für dünne Schichten eingesetzt werden könnten, sind z.B. die Röntgenfluoreszenzanalyse und die Röntgenkleinwinkelbeugung. Deren Heranziehung lohnt sich jedoch nur, wenn dabei eine höhere Meßgenauigkeit zu erwarten ist, als allein mit den Schwingquarz-Mikrowaagen. Um mit interferometrischen Meßverfahren, wie der Röntgenbeugung, gute Ergebnisse zu bekommen, muß die Grenzflächenrauhigkeit gering sein gegenüber der Schichtdicke und dies ist bei Schichten im Monolagenbereich kaum der Fall. Auf den Einsatz der Röntgenfluoreszenzanalyse wurde verzichtet, da nach den Erfahrungen mit der verfügbaren Apparatur davon keine höhere Zuverlässigkeit der Meßergebnisse zu erwarten war als direkt mit den Schwingquarzwaagen. Es zeigte sich allerdings im Verlauf der Arbeit, daß man aus *magnetischen* Messungen, nämlich der Bestimmung der Curietemperatur, indirekt auf die Schichtdicke schließen kann. Dadurch können die Werte der Schichtdicken innerhalb der für die Schwingquarzdaten plausiblen Fehlergrenzen nachträglich präzisiert werden.

Wachstum von Fe auf einer (4x2) rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche

Nun soll das Wachstum von Fe bei Zimmertemperatur auf einer „optimal“ präparierten (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche betrachtet werden und zwar für nominelle Fe-Bedeckungen d_{Fe} zwischen 0 und 3 ML.

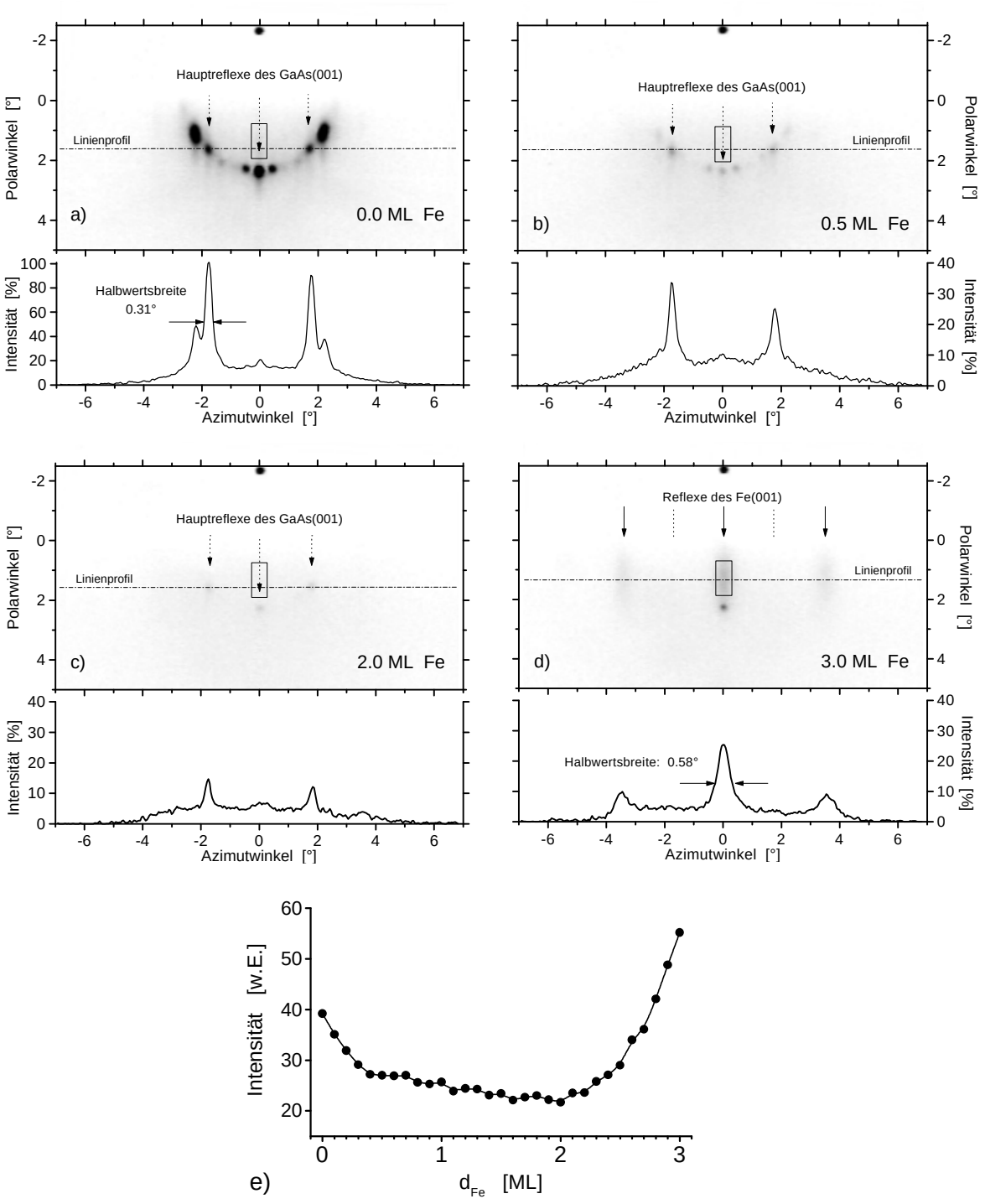

Abb. 4.12 : a) - d) RHEED-Bilder mit Linienprofil von Fe auf einer ursprünglich (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche, für nominelle Fe-Schichtdicken von 0 ML, 0.5 ML, 2.0 ML, 3.0 ML. Einfallsrichtung des Elektronenstrahls: [110]. Die Bilder wurden bei unveränderter Elektronenstrahlintensität aufgenommen und sind mit einheitlicher Helligkeits- und Kontrasteinstellung abgedruckt. e) Entwicklung der Intensität innerhalb des durch ein Rechteck markierten Bereiches der RHEED-Bilder als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe}.

Die Entwicklung des RHEED-Beugungsbildes mit der Fe-Schichtdicke ist in Abb. 4.12 wiedergegeben. Vor der Fe-Bedampfung hat man scharfe Spots, welche auf einem Lauekreis liegen (Abb. 4.12 a). Da sich der polare Einfallswinkel des Elektronenstrahls von dem in Abb. 4.5 a unterscheidet, haben nicht alle Spots die gleiche Intensität. Beim Wachstum von nur einem halben Monolagenäquivalent Fe kommt es zu einer drastischen Verminderung der Intensitäten auf diesem Lauekreis und es treten keine zusätzlichen Spots auf (Abb. 4.12 b). Es wird offenbar ein immer größerer Teil der einfallenden Elektronen diffus gestreut. Dieser Trend setzt sich fort bis zu einer nominellen Schichtdicke von d_{Fe} = 2.0 ML (Abb. 4.12 c). Bei d_{Fe} = 2.0 ML erkennt man noch schwache (Haupt-)Reflexe des GaAs auf dem Laue-Kreis. Ein kleiner Prozentsatz der GaAs-Oberfläche scheint also noch nicht mit Fe bedeckt zu sein. Die Überstrukturreflexe sind vollständig verschwunden, was darauf hindeutet, daß die Oberflächenrekonstruktion zerstört ist. Bei d_{Fe} = 3.0 ML ist schließlich der Laue-Kreis vollständig verschwunden und es sind neue Reflexe zu erkennen (Abb. 4.12 d). Da ihr Abstand dem doppelten Hauptreflex-Abstand der unbedeckten GaAs(001)-Oberfläche entspricht und massives bcc-Fe ziemlich genau die halbe Gitterkonstante von GaAs aufweist, kann man annehmen, daß diese Reflexe von bcc-kristallinem (001)-orientierten epitaktischen Fe verursacht werden. Sie liegen nicht auf einem Lauekreis, sondern auf einem Kreuzgitter, wobei allerdings nur drei Reflexe genug Intensität haben, um in Abb. 4.12 d erkennbar zu sein. Es handelt sich also um Durchstrahlungsreflexe. Außerdem sind diese Fe-Reflexe verbreitert gegenüber den Reflexen der GaAs-Oberfläche, was darauf hindeutet, daß die Struktur im Ortsraum Störungen der Periodizität aufweist auf einer Längenskala, welche klein ist gegenüber der Kohärenzlänge der Elektronen von ungefähr 10 nm. Diese Befunde deuten auf Inselwachstum hin.

Um die Entwicklung des Beugungsbildes als Funktion der Fe-Schichtdicke quantitativ graphisch darzustellen, wurde im Bereich des mittleren Fe-Reflexes ein kleiner rechteckiger Ausschnitt festgelegt und die über die eingeschlossene Fläche gemittelte Intensität in Abb. 4.12 e gegen die Schichtdicke aufgetragen. Die bei d_{Fe} = 0 detektierte Intensität wird verursacht durch „Ausläufer" der Reflexe des GaAs, welche sich bis in den rechteckigen Ausschnitt erstrecken. Im Bereich zwischen 0.0 und 0.5 ML Fe erkennt man eine starke Abnahme dieser Intensität. Zwischen d_{Fe} = 0.5 ML und d_{Fe} = 2.0 ML nimmt die Intensität weiter ab, jedoch mit geringerer Steigung. Sie erreicht schließlich bei 2.0 ML Fe ein Minimum. Dann beginnt die Intensität beim weiteren Fe-Wachstum stark anzusteigen. Dieser Trend setzt sich bis über d_{Fe} = 3.0 ML hinaus fort.

Der Fehlpaß des Massivmaterial-Kristallgitters von Fe relativ zu dem von GaAs beträgt zwar nur $(a_{Fe} - \frac{1}{2}a_{GaAs}) / \frac{1}{2}a_{GaAs}$ = 1.38 %, jedoch ist der Fehlpaß gegenüber einer *rekonstruierten* GaAs(001)-Oberfläche wesentlich größer. Diese Tatsache könnte im vorliegenden Fall dazu führen, daß das Fe zunächst keine bcc-Kristallstruktur ausbildet, sondern erst bei zunehmender Substanzmenge in eine solche übergeht. Dies würde die Abwesenheit von RHEED-Reflexen im Bereich d_{Fe} < 2.0 ML erklären.

Monchesky et al. berichten davon, daß beim anfänglichen Fe-Wachstum bei Zimmertemperatur auf (4x6)-rekonstruiertem GaAs(001) das RHEED-Bild nicht verschwindet [Monchesky 99]. Außerdem beobachten sie RHEED-Oszillationen. Dies steht im Widerspruch zu den eigenen Ergebnissen. Eine befriedigende Deutung für diese Diskrepanz kann bis jetzt nicht angegeben werden.

Abb. 4.13 zeigt exemplarisch ein STM-Bild bei d_{Fe} = 1.0 ML. Es sind Inseln zu erkennen, welche entlang der Rekonstruktionsstreifen der GaAs(001)-Oberfläche parallel zur [110]-Richtung angeordnet sind. Zwar ermöglicht ein solches Topographiebild nicht die Unterscheidung chemischer Elemente, jedoch kann man davon ausgehen, daß es sich bei den Inseln um Fe handelt. Die meisten Inseln haben einen Durchmesser, welcher kleiner ist als der Abstand der Rekonstruktionsstreifen von 1.6 nm. Die Streuung der Inselgrößen und Inselabstände ist relativ gering. Einzelne Inseln sind bereits mit benachbarten Inseln „verschmolzen" und haben daher einen größeren Durchmesser. Der mittlere Inselabstand ist erheblich kleiner als die „natürliche" laterale Periodizität von ca. 5 nm der Oberflächenrauhigkeit geschlossener Fe-Schichten, wie sie z.B. bei der Homoepitaxie von Fe auf Fe-Whisker-Oberflächen bei Zimmertemperatur in Erscheinung tritt [Stroscio 93]. Dies zeigt, daß das Wachstum von Fe durch den Einfluß des GaAs-Substrats drastisch verändert wird. Die bevorzugte Anlagerung des Fe entlang der Rekonstruktionsstreifen der GaAs-Oberfläche entspricht in gewissem Sinne der Anlagerung von Fe an Stufenkanten, wie sie z.B. auf vizinal fehlgeschnittenen metallischen Substratoberflächen beobachtet wird. Die genaue Untersuchung des Fe-Wachstums mit dem *in-situ* Rastertunnelmikroskop ist ein Thema der derzeit laufenden Promotion von R. Moosbühler. Dabei soll insbesondere der Ort der Nukleation von Fe- Inseln relativ zu den Strukturen der rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche und das schrittweise Zusammenwachsen der Inseln bei zunehmender nomineller Fe-Schichtdicke ermittelt werden.

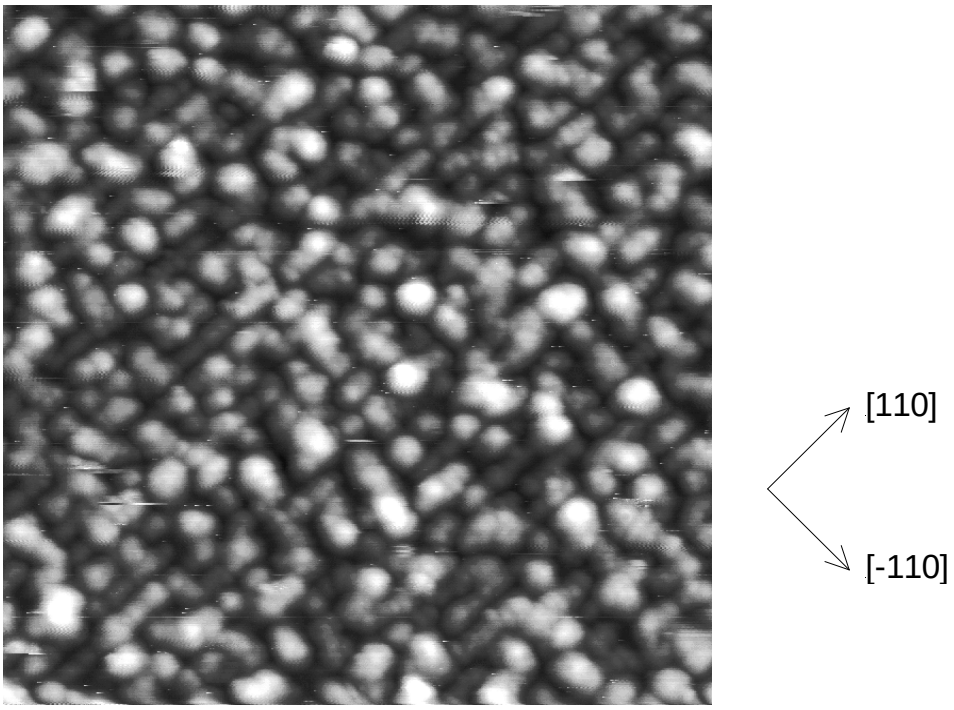

Abb. 4.13 : STM-Bild von 1.0 ML Fe auf einer ursprünglich (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche. Bildfläche: 50 x 50 nm^2; Höhenbereich: 0.8 nm; entnommen aus [Moosbühler 01 b]

Wachstum von Fe auf einer (6x6) rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche

Trotz des großen Unterschiedes zwischen den Strukturen der (6x6)- und der (4x2)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche sind die Unterschiede im Fe-Wachstum bei Zimmertemperatur auf solchen Oberflächen eher marginal [Moosbühler 01 b]. Möglicherweise wird grundsätzlich alles Ga und As, das sich über der obersten geschlossenen As-Lage befindet, an die Oberfläche des Fe verdrängt, so daß sich unabhängig von der ursprünglichen Rekonstruktion der GaAs-Oberfläche eine einheitliche Fe-As-Grenzfläche bildet [Kneedler 97]. Dies wird derzeit von R. Moosbühler im Detail untersucht.

4.1.3 Präparation von Proben für magnetische Messungen

Die zu verwendenden magnetischen Meßverfahren stellen gewisse Anforderungen an die Proben, welche im Folgenden erläutert werden. Unter anderem geht es dabei um die geometrischen Abmessungen, sowie um das Aufbringen einer Korrosionsschutzschicht.

Herstellung der Fe-Lagen

Zur Untersuchung magnetischer Eigenschaften als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung mit dem magneto-optischen Kerr-Effekt wurden stufenkeilförmige Fe-Lagen hergestellt, wie auf Seite 25 erläutert. Dazu fanden quadratische GaAs-Substrate mit 11 mm Seitenlänge Verwendung. Die Kante der Blende wurde parallel zur [-110]-Richtung angelegt, so daß sich schmale Streifen konstanter Fe-Bedeckung ergeben, welche in [-110]-Richtung ausgedehnt sind. Dies ist wichtig, um sicherzustellen, daß bei temperaturabhängigen Messungen die Wärmeausdehnung des Probenhalters (vgl. Seite 33) nicht zu einer Verschiebung des Laserstrahls in einen Bereich anderer Fe-Bedeckung führt. Die Breite der Streifen wurde zu 0.7 mm gewählt, d.h. 0.2 mm breiter als der Durchmesser des Laserstrahls. Damit ergeben sich 15 verschiedene Fe-Bedeckungen auf einer Probe. Die Fe-Bedeckung wurde in Schritten von 0.1 ML variiert. Für Messungen mit dem SQUID-Magnetometer wurden weitere Proben hergestellt, wobei auf die Verwendung einer Blende verzichtet wurde, so daß auf der gesamten Probenfläche eine einheitliche nominelle Schichtdicke vorliegen sollte. Die Depositionsrate betrug in allen Fällen ungefähr 0.3 ML/min und der Restgasdruck lag während der Fe-Deposition bei ca. $2 \cdot 10^{-10}$ hPa.

Aufwachsen einer Au-Abdeckschicht

Da die magnetischen Messungen *ex-situ* durchgeführt werden mußten, war es notwendig, die Fe-Schicht vor den Einflüssen der Atmosphärenluft zu schützen. Zu diesem Zweck wurde eine Au-Schicht auf das Fe aufgebracht. Die Oberflächenenergie von Au ist viel kleiner als die von Fe. Daher ist eine Benetzung des Fe durch Au stark begünstigt. Bei Experimenten zum Wachstum von Fe auf Au(001)-Substraten wurde gefunden, daß dies sogar dazu führt, daß eine Monolage Au aus dem Substrat an die Oberfläche der wachsenden Fe-Schicht segregiert [Bierner 96]. Daher kann man erwarten, daß bereits eine sehr dünne auf Fe aufgedampfte Au-Lage das Fe lückenlos bedeckt und somit vor Korrosion schützt. Die Schichtdicke wurde wiederum mit den Schwingquarz-Mikrowaagen bestimmt. Mit Hilfe der Massivmaterial-Gitterkonstanten, sowie den Atommassen von Fe und Au, kann man aus dem für Fe ermittelten Eichfaktor von 0.0434 ML/Hz einen Eichfaktor von 0.0118 ML/Hz für Au herleiten. In früheren Experimenten hatten sich bei Fe-Schichten, die mit 15 ML Au abgedeckt waren, die magnetischen Eigenschaften auch bei monatelanger Lagerung an Atmosphärenluft nicht erkennbar verändert. Man konnte deshalb davon ausgehen, daß die im Rahmen der vorliegenden Arbeit hergestellten Proben, welche mit 20 ML Au abgedeckt wurden, zuverlässig geschützt sind. Tatsächlich veränderten sich die magnetischen Eigenschaften während der für die magnetischen Messungen benötigten zwei bis drei Wochen nicht wesentlich, obwohl auf eine Lagerung in einem Exsikkator unter Argon-Atmosphäre, wie in manchen Fällen üblich, verzichtet wurde.

Ein Einfluß der Au-Abdeckschicht auf das magnetische Verhalten kann nicht ausgeschlossen werden. Dieser Aspekt sollte zukünftig einmal durch magnetische in-situ Charakterisierung vor und nach der Deposition dieser Schicht untersucht werden. In der Tat wurde in bestimmten Fällen bereits ein Einfluß von nichtmagnetischen Abdeckschichten auf das magnetische Verhalten ferromagnetischer Schichten gefunden [Würsch 97] [May 98] [Elmers 94a] [Heim 95] [Buckley 95].

Weitere Maßnahmen

Nach dem Ausschleusen aus der MBE-Anlage wird die Probe von der Trägerplatte abgenommen und überschüssiges flüssiges GaIn-Eutektikum wird von der Substratrückseite mit Papier sorgfältig abgewischt. Die GaIn-Legierung darf dabei nicht auf die Schichtseite geraten, da sie sich dort innerhalb weniger Tage über die gesamte Oberfläche ausbreiten und die Fe-Schicht zerstören würde. Paramagnetische Signale bei SQUID-Magnetometer-Messungen durch abgelöstes Probenhaltermaterial (Tantal ist paramagnetisch) oder durch Verunreinigungen im GaIn-Eutektikum (Gallium und Indium für sich genommen sind rein diamagnetisch) können ausgeschlossen werden, da in einem Fall exemplarisch nach ersten magnetischen Messungen alle erkennbaren Fremdmaterial-Reste mit Hilfe eines Quarzglasplättchens (Quarzglas ist rein diamagnetisch) von der Substratrückseite abgeschabt wurden und danach keinerlei Veränderung der magnetischen Eigenschaften zu beobachten war.

Zur Identifizierung der Probe wird auf der Substratrückseite mit einem diamantierten Werkzeug eine Nummer eingeritzt. Sie dient auch zur eindeutigen Kennzeichnung der Kristallorientierung, da die Ätzstrukturen auf der Probenrückseite nun mit GaIn-Legierung bedeckt sind und nicht mehr zuverlässig ausgewertet werden können.

Bei Proben, die in einem der Quantum-Design SQUID-Magnetometer untersucht werden sollten, wurden die Randbereiche mit einem Präzisions-Ritzgerät (Hersteller: Fa. K. Süss) so abgespalten, daß ein exakt quadratisches Stück von 6.5 mm x 6.5 mm übrigbleibt, und zwar mit einem Fehler von weniger als $\pm$0.01 mm. Dadurch werden auch die Schattenbereiche der Halteklammern (vgl. Seite 20) eliminiert. Somit ist die Fläche der Fe-Schicht sehr genau bekannt. Mit Hilfe dieser Fläche und der nominellen Schichtdicke kann man die Anzahl der Fe-Atome in der Schicht berechnen. Dies ist wichtig, um auf das mittlere magnetische Moment pro Atom schließen zu können. Durch die exakt quadratische Gestalt wird außerdem sichergestellt, daß die Entmagnetisierungsfaktoren bezüglich jeder Richtung innerhalb der Schichtebene gleich sind. Deshalb hat man keinen Formanisotropiebeitrag in der Schichtebene (auch keinen vierzähligen !).

4.2 Magnetische Charakterisierung

Nun werden die Ergebnisse zum magnetischen Verhalten dünner Fe-Schichten auf GaAs(001) beschrieben und interpretiert. Dabei liegt der Schwerpunkt zunächst auf einer Untersuchung des *magnetischen Phasenübergangs* bei Schichtdicken, welche ausreichend groß sind, damit unterhalb einer bestimmten Temperatur ferromagnetisches Verhalten vorliegt. Der zweite Teil konzentriert sich auf das *Einsetzen des Ferromagnetismus*, d.h. auf die Frage, ab welcher nominellen Fe-Bedeckung ein ferromagnetischer Grundzustand auftritt. Schließlich wird im dritten Teil das magnetische Verhalten von Fe-Lagen betrachtet, welche so dünn sind, daß sich bei keiner Temperatur eine ferromagnetische Ordnung ausbildet.

4.2.1 Der magnetische Phasenübergang

In diesem Abschnitt wird schwerpunktmäßig die Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung und der differentiellen magnetischen Nullfeld-Suszeptibilität bei konstanter nomineller Schichtdicke betrachtet. Dabei zeigt sich ein Verhalten, welches für einen magnetischen Phasenübergang charakteristisch ist. Mehrere alternative Deutungen der Meßergebnisse werden diskutiert und ausgeschlossen. Im weiteren Verlauf wird die Schärfe des magnetischen Phasenübergangs untersucht, da diese in engem Zusammenhang stehen sollte mit der strukturellen Homogenität der Fe-Schichten. Außerdem wird die Universalitätsklasse bestimmt, welcher das magnetische System zuzuordnen ist. Eine umfangreiche Untersuchung der magnetischen Anisotropie als Funktion der Temperatur bildet schließlich die Grundlage für eine Interpretation der Universalitätsklasse.

Die spontane Magnetisierung als Funktion der Temperatur

Zunächst wurde eine Probe mit 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6) untersucht. Es wurden MOKE-Messungen durchgeführt, wie auf Seite 31 ff. beschrieben, und zwar mit dem externen Magnetfeld innerhalb der Schichtebene in [110]-Richtung, der leichten Richtung der magnetischen Anisotropie, und parallel zur Einfallsebene des Laserstrahls (longitudinaler Kerr-Effekt).

Die mit dem „dc-MOKE“-Meßverfahren (vgl. Seite 39) bestimmten Magnetisierungskurven in Magnetfeldern von einigen Oersted sind rechteckig bei allen Temperaturen, bei welchen ein erkennbares Signal auftritt (vgl. Abb. 4.14 a). Deshalb kann man davon ausgehen, daß der remanente Zustand ein Eindomänenzustand ist. Die remanente Kerr-Rotation sollte also proportional zur spontanen Magnetisierung sein. Dies ist ein erfreulicher Umstand, wenn man bedenkt, daß z.B. bei ferromagnetischen Schichten auf *polykristallinen* Metalloberflächen [Lugert 92] bzw. ferromagnetischen Schichten mit magnetisch leichter Achse *senkrecht* zur Schichtebene [Kohlhepp 92] von einer starken Abweichung zwischen der remanenten Magnetisierung und der Spontanmagnetisierung berichtet wurde. In diesen Fällen konnte erst durch Anlegen eines moderaten Magnetfeldes eine Magnetisierung hervorgerufen werden, welche der Spontanmagnetisierung nahe kommt. Ein solches Magnetfeld beeinflußt aber sicher das Phasenübergangsverhalten.

Im vorliegenden Fall ist es also möglich, den Verlauf der Spontanmagnetisierung M_S als Funktion der Temperatur T zu bestimmen, indem man die remanente Kerr-Rotation θ_K gegen die Temperatur aufzeichnet (Abb. 4.14 a). Der dazu verwendete „digital-ac-MOKE“-Meßmodus ist auf Seite 40 ff. ausführlich erläutert. Zur periodischen Ummagnetisierung der Probe wurden Magnetfeldimpulse von ±50 Oe eingesetzt. Statische Restmagnetfelder parallel zur [110]-Richtung waren mit Hilfe eines Konstantstroms durch die Feldspulen auf Werte von weniger als 0.01 Oe kompensiert.

Die Spontanmagnetisierung verschwindet offenbar sehr abrupt bei einer Temperatur von $T_C \approx 254.8$ K. Dies wird im folgenden als magnetischer Phasenübergang interpretiert und die Übergangstemperatur T_C wird mit der Curietemperatur identifiziert.

Die magnetische Suszeptibilität als Funktion der Temperatur

Zur Bestimmung der differentiellen magnetischen Nullfeld-Suszeptibilität χ als Funktion der Temperatur T wurde das auf Seite 42 ff. beschriebene „analog-ac-MOKE“-Verfahren angewendet. Der optische Aufbau wurde gegenüber der vorher beschriebenen „digital-ac-MOKE“-Messung beibehalten, so daß wiederum die [110]-Richtung, also die leichteste Richtung der magnetischen Anisotropie, parallel zur Meßrichtung liegt. Drehprozesse gegen magnetische Anisotropien werden dadurch vermieden. Domänenwandverschiebungen können jedoch im Temperaturbereich $T < T_C$

prinzipiell zum Meßsignal beitragen. Allerdings finden diese bei Fe auf GaAs(001) nur in einem sehr kleinen Feldintervall bei der Koerzitivfeldstärke H_C statt, wie die rechteckigen Hysteresekurven von Abb. 4.14 a zeigen. Sie spielen also nur dann eine Rolle, wenn die Amplitude H_{ac} des bei der „analog-ac-MOKE“-Messung verwendeten Wechselfeldes größer ist als H_C. Da die Koerzitivfeldstärke für $T \rightarrow T_C$ gegen Null strebt, kommt es in einem gewissen Temperaturintervall unterhalb T_C tatsächlich dazu, daß $H_C < H_{ac}$ ist und die Magnetisierung in der Probe im Takt des Wechselfeldes periodisch die Richtung umkehrt. Dadurch erhält man Suszeptibilitäts-Meßwerte, welche größer sind als der eigentlich interessierende, ausschließlich auf dem Paraeffekt beruhende Wert. Das Temperaturintervall, in welchem dies passiert, ist umso kleiner, je weniger H_{ac} von Null verschieden ist. Durch eine Extrapolation der Meßdaten auf $H_{ac} \rightarrow 0$ sollten diese Störeffekte ganz eliminiert werden. Wie im Anhang auf Seite 109 gezeigt wird, ist eine solche Extraplation aber gar nicht notwendig, wenn man die Wechselfeldamplitude zu $H_{ac} = 0.04$ Oe wählt, wie es bei der im Folgenden diskutierten Messung geschah.

Abb. 4.14 b zeigt, daß die differentielle magnetische Nullfeld-Suszeptibilität als Funktion der Temperatur ein scharfes Maximum aufweist. Dies ist konsistent mit der für einen idealen Ferromagneten zu erwartenden Divergenz dieser magnetischen Suszeptibilität bei der kritischen Temperatur T_C des magnetischen Phasenübergangs. Das Maximum liegt im Rahmen der Unsicherheit der Temperaturmessung von $\pm$ 0.2 K bei derselben Temperatur T_C, bei welcher die Spontanmagnetisierung verschwindet.

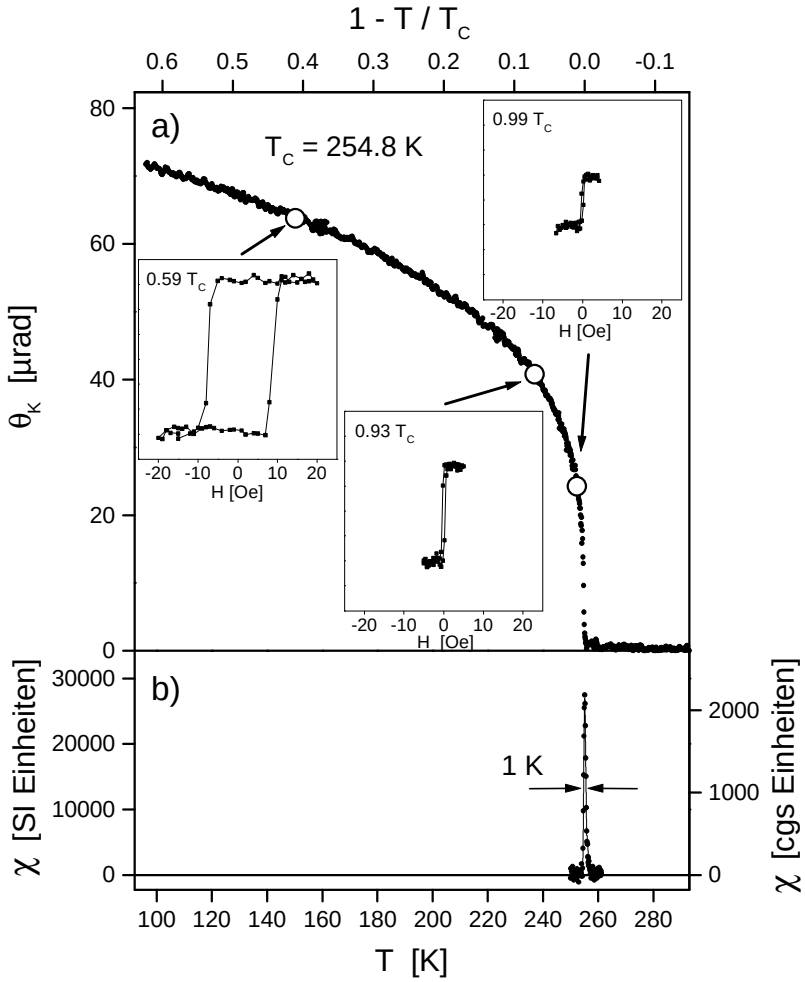

Abb. 4.14 : a) remanente Kerr-Rotation q_K und b) magnetische Suszeptibilität c als Funktion der Temperatur T für 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6). Einsätze: Hysteresekurven bei mehreren verschiedenen Temperaturen. Alle Messungen erfolgten in der leichten Richtung der magnetischen Anisotropie, d.h. H || [110].

Durch Vergleich der digital-ac-MOKE-Messung mit einer SQUID-Magnetometer-Messung konnte die Proportionalitätskonstante zwischen der Kerr-Rotation und der Magnetisierung ermittelt werden. Da der optische Aufbau des MOKE-Systems zwischen der digital-ac-MOKE- und der analog-ac-MOKE-Messung nicht verändert wurde, sollte diese Proportionalitätskonstante auch für die analog-ac-MOKE-Messung gültig sein. Dies ermöglicht schließlich, die magnetische Suszeptibilität in absoluten Einheiten anzugeben. Der χ(T)-Peak erreicht einen Maximalwert von ungefähr 30000 SI-Einheiten. Dies liegt deutlich über den für Eisen auf Wolfram-Einkristallen berichteten Werten: Elmers et al. fanden für die pseudomorphe Monolage Fe auf W(110) ein Suszeptibilitäts-Maximum von 1000 SI-Einheiten [Elmers 96b]. Für die Doppellage Fe auf W(001) schätzen sie χ_{max} > 10000 SI-Einheiten [Elmers 96a]. Bezüglich der Deutung der gemessenen maximalen Suszeptibilität sei auf Seite 81 verwiesen.

Die Meßdaten von Abb. 4.14 sind in Abb. 4.18 mit gedehnter Temperaturskala dargestellt. Das auf Einheiten einer Suszeptibilität umgerechnete Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers der analog-ac-MOKE-Anordnung ist zusammen mit dem zugehörigen Quadratursignal (Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers bei um 90° gedrehter Phase des Referenzsignals) gegen die Temperatur aufgetragen. Das Quadratursignal verschwindet bei allen Temperaturen $T \geq T_C$ im Untergrundrauschen. Wie auf Seite 44 erläutert bestätigt dies, daß die Phase des Referenzsignals gut eingestellt war.

Ausschluß eines Artefakts des „digital-ac-MOKE“-Meßverfahrens

Wenn ein statisches Magnetfeld vorliegt, kommt es beim digital-ac-MOKE-Meßverfahren zu einem plötzlichen Verschwinden des Meßsignals für die remanente Kerr-Rotation, sobald das Koerzitivfeld einer ferromagnetischen Probe kleiner wird als dieses statische Feld (vgl. Seite 41 f.). Daher ist eine sorgfältige Kompensation statischer Magnetfelder sehr wichtig. Während der digital-ac-MOKE-Messungen konnte der Verlauf der Lock-In-Ausgangsspannung als Funktion der Zeit kontinuierlich auf einem Oszilloskop beobachtet werden. Eine Abweichung von einem symmetrischen Verlauf (vgl. Abb. 3.14 d und 3.15 d) ist dabei gut zu erkennen. Der zur Kompensation statischer Magnetfelder dienende Gleichstromanteil durch die Feldspulen wurde so eingestellt, daß der Kurvenverlauf bei allen Temperaturen symmetrisch ist. Daher scheidet ein derartiger Artefakt aus.

Ausschluß einer Reorientierung der magnetischen Anisotropie bei T = T_C

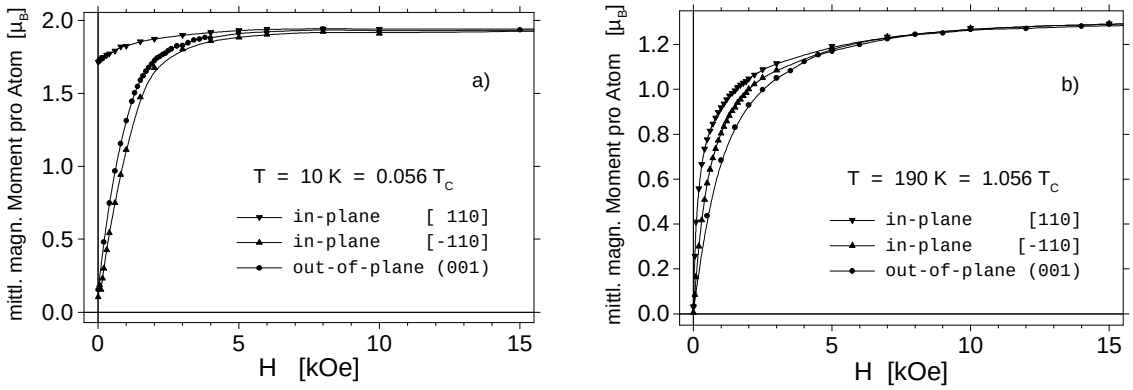

Abb. 4.15 : Magnetisierungskurven, gemessen mit SQUID-Magnetometrie, für drei verschiedene, zueinander senkrechte Orientierungen einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6). Die Probe zeigt ein Verhalten wie in Abb. 4.14, jedoch mit T_C » 180 K. a) Messung bei T << T_C b) Messung bei T > T_C

Die mittels SQUID-Magnetometrie erhaltenen Meßdaten von Abb. 4.15 zeigen, daß sowohl für Temperaturen unterhalb als auch oberhalb von T_C die Magnetisierungsarbeit senkrecht zur Schichtebene größer ist als parallel zur [110]-Richtung in der Schichtebene. Demnach kann ausgeschlossen werden, daß das Verschwinden des longitudinalen MOKE-Signals bei T_C auf einem Wechsel der magnetisch leichtesten Richtung von parallel zur Schichtebene nach senkrecht zur Schichtebene beruht. Außerdem zeigen diese Ergebnisse, daß beim Überschreiten der Temperatur T_C auch keine Reorientierung der leichten Richtung innerhalb der Schichtebene von der [110]- in

die [-110]-Richtung auftritt, so daß auch ein solcher Mechanismus nicht zur Deutung des Verschwindens der in [110]-Richtung gemessenen remanenten Kerr-Rotation in Frage kommt.

Ausschluß von Superparamagnetismus

Von Untersuchungen mit Rastertunnelmikroskopie ist bekannt, daß Fe beim Wachstum auf GaAs(001) zunächst Inseln bildet (vgl. Seite 70). Es ist aber bis jetzt nicht völlig klar, ob diese Inseln für nominelle Schichtdicken von $d_{Fe} \geq 3.1$ ML zu einem makroskopisch ausgedehnten Netzwerk zusammengewachsen sind oder nicht. Da die starke Antwort der Magnetisierung auf relativ schwache externe Magnetfelder bei Temperaturen $T > T_C$, die in Abb. 4.15 b zum Ausdruck kommt, an Superparamagnetismus erinnert, könnte man vermuten, daß ein superparamagnetisches System von magnetisch unabhängigen Fe-Inseln vorliegt. Wenn dies der Fall wäre, dann müßte die Übergangstemperatur, welche bislang mit T_C bezeichnet wurde, nicht als kritische Temperatur eines magnetischen Phasenübergangs sondern als Blockierungstemperatur der superparamagnetischen Relaxation interpretiert werden. Superparamagnetismus kann jedoch auf Grund der folgenden Überlegungen ausgeschlossen werden.

Zunächst kann man die Temperatur T_B, bei welcher die Blockierung der superparamagnetischen Relaxation signifikant wird, abschätzen aus der magnetischen Anisotropieenergie pro Flächeneinheit, K_S, der mittleren Fläche pro Teilchen, A, und der charakteristischen Zeit τ_m der Messung (vgl. Seite 15 f.):

$$\tau_m \approx 10^{-9}\,\text{sec} \cdot \exp\left(\frac{K_S \cdot A}{k_B \cdot T_B}\right)$$

Nimmt man den Wert für die uniaxiale magnetische Anisotropie in der Schichtebene, welcher für 3.1 ML Fe auf GaAs(001) bei $T = T_C = 180$ K bestimmt wurde, $K_S = K_u^{eff} \cdot d_{Fe} = 1.38 \cdot 10^{-2}$ erg/cm² (vgl. Abb. 4.24 auf Seite 87), die Teilchenfläche $A = (1.6\text{ nm})^2$, die aus dem anfänglichen Inselabstand folgt (vgl. Seite 69), die Boltzmann-Konstante $k_B = 1.38 \cdot 10^{-16}$ erg/K, sowie $\tau_m \approx 10^{-2}$ sec für das analog-ac-MOKE Meßverfahren (Frequenz des Wechselfeldes $f_{ac} \approx 10^2\ \text{sec}^{-1}$), so ergibt sich eine Blockierungstemperatur von $T_B \approx 0.16$ K. Dieser Wert liegt weit unterhalb des tatsächlich beobachteten T_C.

Man könnte nun argumentieren, daß die ursprünglich recht kleinen Inseln mit zunehmender nomineller Schichtdicke zu immer größeren Aggregaten verschmelzen. Dies hätte einen Anstieg der Blockierungstemperatur zur Folge. Eine Blockierungstemperatur bei „analog-ac-MOKE“ von z.B. $T_B = 180$ K wäre mit einer Inselfläche von $A \approx (54\text{ nm})^2$ zu erklären.

Nun ist aber die charakteristische Zeit τ_m beim „digital-ac-MOKE“-Verfahren (Frequenz der Ummagnetisierungsimpulse $f \approx 1\ \text{sec}^{-1}$) um ungefähr einen Faktor 100 größer als beim „analog-ac-MOKE“-Verfahren. Daher sollte eine Blockierungstemperatur, welche aus $\theta_K(T)$ folgt, nach obiger Formel wesentlich niedriger sein, als diejenige, welche aus $\chi(T)$ resultiert. Würde sich z.B. aus der $\chi(T)$-Messung ein $T_B = 180$ K ergeben, so sollte die Blockierungstemperatur bei der $\theta_K(T)$-Messung nur 141 K betragen. In Wirklichkeit wird aber mit beiden Meßmethoden im Rahmen einer Unsicherheit von lediglich $\pm$ 0.2 K die gleiche Übergangstemperatur gefunden. Im Rahmen der Meßgenauigkeit sind also keine Relaxationseffekte erkennbar. Die tatsächliche Blockierungstemperatur übertrifft das beobachtete T_C offenbar um Größenordnungen.

Somit scheidet die superparamagnetische Relaxation als Ursache für das Verschwinden der Spontanmagnetisierung beim Überschreiten von T_C aus. Eine starke Antwort auf schwache Magnetfelder wird tatsächlich nicht nur für superparamagnetisch relaxierte Systeme erwartet. Auch einfach-zusammenhängende, unendlich ausgedehnte, zweidimensionale Ferromagnete besitzen diese Eigenschaft bei Temperaturen oberhalb der Curietemperatur. Im Rahmen der kritischen Fluktuationen des Ordnungsparameters bilden sich magnetisch geordnete Bereiche, welche viele Atome umfassen („Spin-Blöcke“). Diese Spin-Blöcke verhalten sich wie einzelne „Superspins“. Wegen ihres großen magnetischen Moments werden thermische Fluktuationen bereits durch schwache Magnetfelder unterdrückt. Im Unterschied zu Superparamagneten sind in diesem Fall die Spin-Blöcke nicht räumlich fixiert und auch ihre Größe ist nicht durch die Morphologie festgelegt. Sie sollte sich mit zunehmender Temperatur verringern. In dreidimensionalen Systemen haben die Spin-Blöcke bei einer bestimmten reduzierten Temperatur $t := T/T_C$ eine wesentlich geringere Größe als bei zweidimensionalen Systemen, weshalb erstere auf Magnetfelder wesentlich schwächer antworten [Pokrovsky 79] [Bruno 92] [Kerkmann 92] [Allenspach 94].

Ausschluß einer plötzlich einsetzenden Domänenaufspaltung

Für Ni-Schichten auf Cu(001)-Substraten wurde von einer plötzlichen Bildung magnetischer Domänen berichtet, was bei einer bestimmten Temperatur zum abrupten Verschwinden der Remanenz führt [Poulopoulos 97]. Ein derartiges Phänomen ist jedoch bei Fe/GaAs(001) eigentlich nicht zu erwarten, da es nur auftreten sollte, wenn eine magnetische Anisotropie mit leichter Achse senkrecht zur Schichtebene vorliegt.

Um definitiv zu klären, ob das Verschwinden der Remanenz für Temperaturen $T > T_C$ auf einer Domänenaufspaltung bei erhaltener ferromagnetischer Ordnung beruht, wurde die Mössbauer-Spektroskopie herangezogen (vgl. Seite 51 ff.). Zu diesem Zweck wurde eine spezielle Probe von 3.3 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) mit angereichertem ^{57}Fe hergestellt. MOKE-Messungen ergaben für diese Probe ein Verhalten analog zu Abb. 4.14, jedoch mit $T_C \approx 230$ K.

Abb. 4.16 a zeigt ein Konversionselektronen-Mössbauer-Spektrum bei Zimmertemperatur ($T \approx 300$ K). Es ist keine Sextettaufspaltung zu erkennen. Die Breite des beobachteten Peaks kann durch Nahordnungsphänomene in einem paramagnetischen Zustand erklärt werden. Dies bestätigt, daß bei dieser Temperatur keine ferromagnetische Ordnung vorhanden ist.

Zum Vergleich ist in Abb. 4.16 b ein Mössbauer-Spektrum gezeigt, das von M. Ernst für eine insgesamt 10 ML dicke Fe-Lage auf GaAs(001) ebenfalls bei Zimmertemperatur erhalten wurde, wobei das Signal primär von einer an der Grenzfläche zum GaAs(001)-Substrat eingebrachten „Sondenschicht“ von 2 ML ^{57}Fe stammt [Ernst 99]. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung entspricht in diesem Fall dem für Massivmaterial erwarteten Wert.

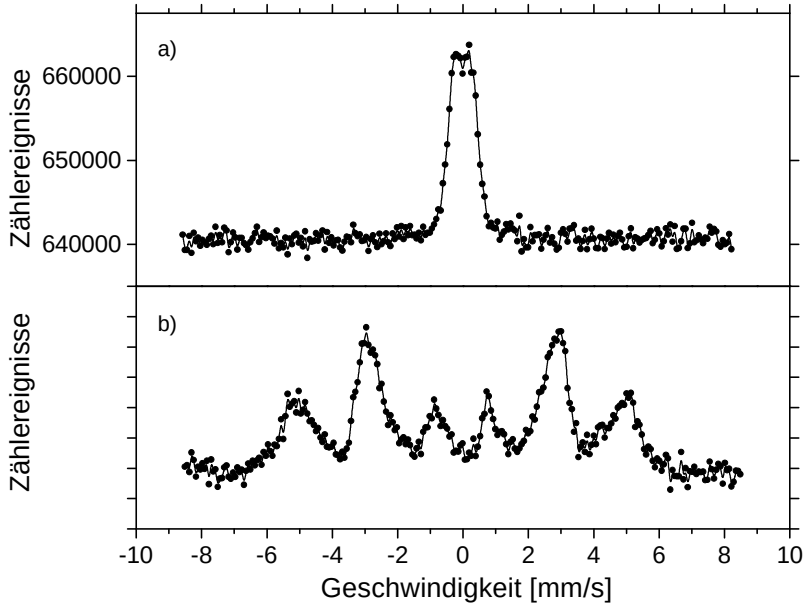

Abb. 4.16 : Mössbauer-Spektroskopie (CEMS): a) eigene Messung: 3.3 ML ^{57}Fe auf GaAs(001)-(4x2) b) zum Vergleich: 2.0 ML ^{57}Fe + 8 ML $^{nat.}$Fe auf GaAs(001), entnommen aus [Ernst 99]. Alle Messungen erfolgten bei Zimmertemperatur (d.h. T » 300 K).

Die Mössbauer-Daten unterstützen also die Interpretation, daß bei der oben definierten Temperatur T_C ein echter magnetischer Phasenübergang zwischen einem ferromagnetischen und einem paramagnetischen Zustand stattfindet. Zwar wurde die Mössbauer-Messung nur bei einer einzigen Temperatur von 300 K, d.h. ca. 70 K oberhalb von T_C durchgeführt, jedoch sollte dies trotzdem aussagekräftig sein, wenn man bedenkt, daß z.B. für eine Fe-Schicht der gleichen nominellen Dicke auf Ag(001) eine Curietemperatur von > 450 K zu erwarten ist [Qiu 94]. Offenbar ist also die Curietemperatur für eine bestimmte Menge Fe auf GaAs(001) wesentlich geringer als für dieselbe Menge Fe auf Metall-Einkristallen. Die Ursache für dieses Phänomen wird im Folgenden noch zu diskutieren sein (vgl. Kapitel 4.2.2 auf Seite 88 ff.).

Die „Schärfe“ des magnetischen Phasenübergangs

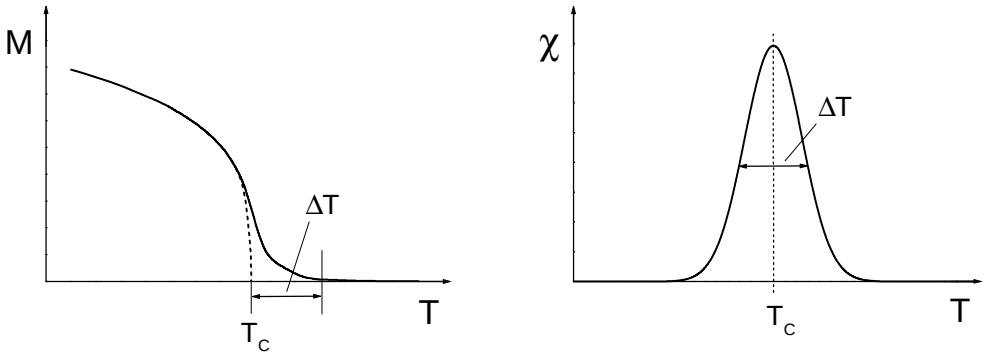

Abb. 4.17 : Schematische Skizze der in der Praxis auftretenden “Verbreiterung” des magnetischen Phasenübergangs

Während ein Phasenübergang theoretisch mit einer Diskontinuität bzw. Singularität bestimmter physikalischer Größen verbunden ist, beobachtet man im Experiment grundsätzlich einen glatten Verlauf aller Größen. Zum Beispiel hat der Übergangsbereich eines magnetischen Phasenübergangs in der Praxis eine endliche Breite auf der Temperaturskala. Es tritt im Verlauf der Spontanmagnetisierung als Funktion der Temperatur, $M_S(T)$, ein „Schwanz“ auf und der Peak im temperaturabhängigen Verlauf der Suszeptibilität, $\chi(T)$, hat eine von Null verschiedene Halbwertsbreite. Dies ist in Abb. 4.17 schematisch dargestellt. Als Kriterium für die „Schärfe“ des Phasenübergangs wird üblicherweise die Länge des Schwanzes von $M_S(T)$ bzw. die Halbwertsbreite des $\chi(T)$-Peaks auf die Curietemperatur bezogen, also die Größe $\Delta T/T_C$ betrachtet. Dabei ist allerdings zu beachten, daß die „Länge des Schwanzes“ in den meisten Publikationen nicht streng definiert ist. Meist wird das obere Ende des Schwanzes bei der Temperatur angesetzt, bei welcher das Meßsignal im Rauschen verschwindet. Daher kann hier dem Vergleich mit der Literatur keine präzisere Definition zugrunde gelegt werden.

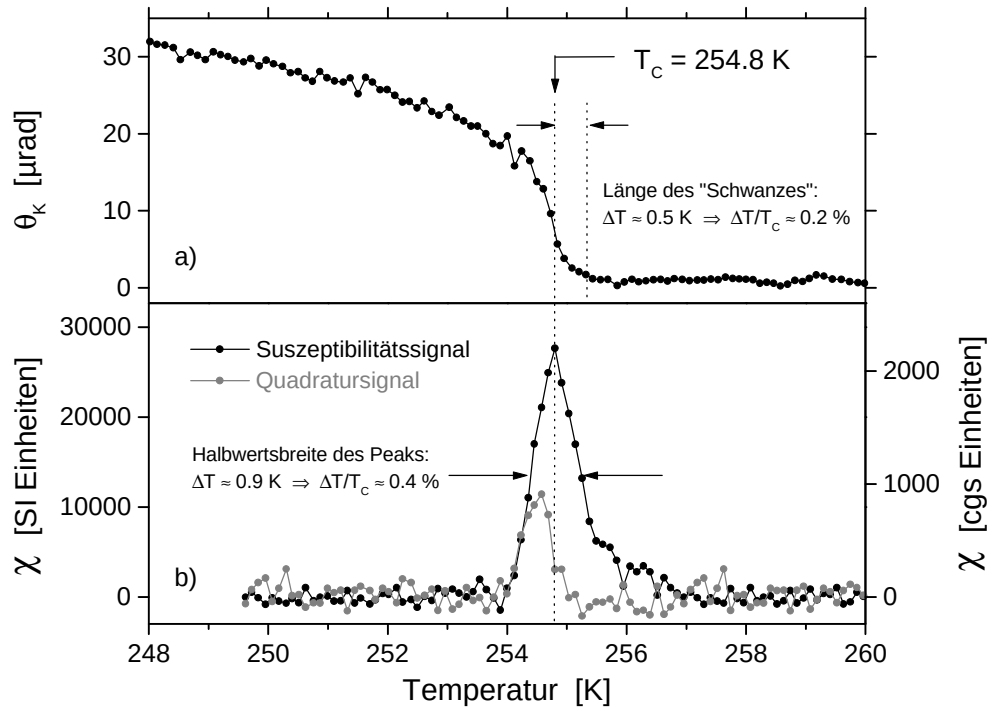

Abb. 4.18 : Vergrößerte Darstellung der Daten von Abb. 4.14 : a) remanente Kerr-Rotation, gemessen mit „digital-ac-MOKE“ b) Suszeptibilitätssignal und Quadratursignal einer „analog-ac-MOKE“-Messung an einer Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6) (statisches Magnetfeld: < 0.01 Oe; Wechselfeldamplitude: 0.04 Oe; Frequenz des Wechselfeldes: 140 Hz)

In Abb. 4.18 ist der Verlauf der remanenten Kerr-Rotation θ_K, also der Spontanmagnetisierung M_S, sowie der magnetischen Nullfeldsuszeptibilität χ einer Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6) mit einer gegenüber Abb. 4.14 gedehnten Temperaturskala dargestellt, so daß der Bereich des magnetischen Phasenübergangs höher aufgelöst erscheint. Es ist in $\theta_K(T)$ ein „Schwanz" erkennbar, dessen Ausdehnung lediglich $\Delta T/T_C \approx 0.2$ % beträgt und der Peak der Suszeptibilität hat eine Halbwertsbreite von nur $\Delta T/T_C \approx 0.4$ %. Die nachfolgende Tabelle zeigt, daß im vorliegenden Fall die Breite des Phasenübergangs geringer ist als bei allen dem Autor bekannten Literaturdaten für epitaktische Eisenschichten.

Schichtsystem	relative Länge des „Schwanzes" von $M_S(T)$	Halbwertsbreite von $\chi(T)$	Referenz
2.5 ML Fe / Ag(001)	3-5 %		[Qiu 94]
2.0 ML Fe / Ag(111)	3 %		[Qiu 91]
1.0 ... 2.5 ML Fe / Au(001)	< 3 %		[Dürr 89]
1.6 ML Fe / W(001)	0.5 %	3 %	[Elmers 96a]
0.8 ML Fe / W(110)	0.3 %	0.5 %	[Elmers 96b]
3.4 ML Fe / GaAs(001)	**0.2 %**	**0.4 %**	**diese Arbeit**

Der Phasenübergang erscheint sogar schärfer als bei der Doppellage Fe auf W(001) [Elmers 96a] bzw. der Monolage Fe auf W(110) [Elmers 96b], die bisher als die besten experimentellen Beispiele für zweidimensionale Ferromagnete betrachtet wurden.

Als Ursache für die Verbreiterung eines magnetischen Phasenübergangs kommt zunächst grundsätzlich die Präsenz eines Magnetfeldes in Frage. Bei den hier durchgeführten MOKE-Messungen für Fe/GaAs(001) scheidet diese Ursache jedoch aus, da statische Magnetfelder auf vernachlässigbar kleine Werte kompensiert wurden, wie bereits erläutert. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, daß die Verbreiterung des Phasenübergangs bei den in der Literatur berichteten Messungen zumindest zu einem gewissen Teil auf einem nicht-vernachlässigbaren Magnetfeld beruht. Leider wird in den zitierten Literaturstellen dazu keine Aussage gemacht.

Ein „Schwanz" in $M_S(T)$ wurde in der Literatur häufig auf „finite-size-Effekte" zurückgeführt [Dürr 89] [Ballentine 90] [Qiu 91] [Qiu 94] [Elmers 96a]. Das Auftreten eines Schwanzes in $M_S(T)$ auf Grund der endlichen Ausdehnung ferromagnetischer Systeme wurde zwar bereits auf der Basis numerischer Simulationen untersucht [Landau 76], jedoch wird meist die folgende vereinfachte Betrachtung herangezogen. Man nimmt an, daß die Magnetisierung dann verschwindet, wenn die Korrelationslänge ξ der ferromagnetischen Ordnung im Temperaturbereich $T > T_C$ die laterale Ausdehnung x der Inseln unterschreitet [Barber 83]. Für die mittlere Magnetisierung eines Ensembles von Inseln gilt dies natürlich nur, wenn die Blockierungstemperatur der superparamagnetischen Relaxation wesentlich größer ist als T_C. Dies ist bei den hier untersuchten Proben der Fall, wie auf Seite 75 beschrieben. In der Nähe der kritischen Temperatur T_C kann die Korrelationslänge eines Ferromagneten mit folgendem Potenzgesetz beschrieben werden (vgl. Seite 11):

$$\xi(T) = \xi_0 \cdot (T/T_C - 1)^{-\nu}$$

Für den kritischen Exponenten wird meist der für das 2D-Ising-Modell gültige Wert $\nu=1$ eingesetzt. Außerdem wird ξ_0 näherungsweise mit der Gitterkonstanten a identifiziert. Damit ergibt sich für die Ausdehnung $\Delta T = T-T_C$ des Schwanzes von $M_S(T)$ folgende Formel:

$$\Delta T/T_C = a/x$$

Im vorliegenden Fall einer Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6) ist dieser Schwanz außerordentlich kurz: $\Delta T/T_C \approx 0.002$ (vgl. Abb. 4.18 a). Mit a = 0.28 nm folgt eine Inselgröße von x > 140 nm. Wie auf Seite 69 gezeigt, wächst Fe auf GaAs(001) zunächst in Form von Inseln, die einen Mitte-zu-Mitte-Abstand von 1.6 nm aufweisen. Aus dem soeben gewonnenen Resultat kann nun gefolgert werden, daß diese Inseln bei einer nominellen Schichtdicke von 3.4 ML bereits zu Aggregaten von mindestens 140 nm Ausdehnung koalesziert sein müssen. Es kann sogar sein, daß das Fe bereits zu einem Netzwerk von makroskopischer Ausdehnung oder sogar zu einer einfach-zusammenhängenden Schicht zusammengewachsen ist, denn wie im Folgenden erläutert gibt es

auch für zusammenhängende Schichten Mechanismen, welche die beobachtete geringfügige Verbreiterung des magnetischen Phasenübergangs erklären können.

Gelegentlich wird in der Literatur argumentiert, daß auch bei einfach-zusammenhängenden einkristallinen ferromagnetischen Schichten (dies setzt eine nominelle Schichtdicke von > 1 ML voraus) atomare Stufen an den Grenzflächen die Ausbreitung der magnetischen Ordnung behindern, also die Kohärenzlänge begrenzen und damit finite-size-Effekte hervorrufen könnten. Daraus wurde gefolgert, daß der Phasenübergang umso schärfer erscheinen sollte, je größer die atomar glatten Bereiche sind. Völlig unbeachtet blieb in diesen Fällen jedoch, daß *Schichtdickenfluktuationen*, welche mit der Existenz von atomaren Stufen an den Grenzflächen einer magnetischen Schicht verbunden sind, einen erheblichen Einfluß auf die Schärfe des Phasenübergangs haben werden, und zwar in völlig anderer Weise als finite-size-Effekte. Dies soll durch die folgende heuristische Überlegung verdeutlicht werden. Angesichts dieser Betrachtungen erscheint die Interpretation früher publizierter Meßdaten im Rahmen von finite-size-Effekten generell als zweifelhaft.

Bei einkristallinen Schichten kann lokal die Schichtdicke immer nur ein ganzzahliges Vielfaches einer Monolage betragen. Bei nicht-ganzzahligen nominellen Bedeckungen muß es daher auf jeden Fall Schichtdickenfluktuationen geben. Wegen nicht-perfektem Lagenwachstum werden Schichtdikkenfluktuationen aber im allgemeinen auch bei ganzzahligen nominellen Bedeckungen vorhanden sein. Also gibt es praktisch immer Bereiche, die eine gewisse Anzahl Monolagen dicker sind als andere Bereiche. Jeder dieser Bereiche wird zu dem über die makroskopische Ausdehnung der Probe gemittelten $M_S(T)$ beitragen, und zwar mit einem mehr oder weniger abrupten Abfall des Signals bei einer primär von seiner Schichtdicke abhängigen „lokalen Curietemperatur“. Dieser Abfall ist zwar wegen der endlichen Ausdehnung des Bereiches kein echter Phasenübergang im strengen Sinne, der Verlauf der lokalen Spontanmagnetisierung als Funktion der Temperatur wird sich aber unter Umständen nur wenig von einem echten Phasenübergang unterscheiden.

Wenn die Bereiche konstanter Dicke extrem groß sind, sollte die Austauschenergie zwischen solchen Bereichen vernachlässigbar sein gegenüber der Austauschenergie innnerhalb der Bereiche, denn die Fläche der Bereiche steigt quadratisch mit dem Durchmesser, während der Umfang nur linear mit dem Durchmesser zunimmt. Die einzelnen Bereiche sollten sich also in diesem Fall wie unabhängige ferromagnetische Schichten verschiedener Dicke verhalten. Bei magnetischen Messungen, die über makroskopische Probenflächen mitteln, welche viele solcher Bereiche umfassen, sollte man scharfe Phasenübergangsphänomene erhalten, und zwar bei so vielen verschiedenen Temperaturen wie es diskrete Schichtdicken in der Probe gibt. In Abb. 4.19 a ist dies qualitativ skizziert unter der Annahme, daß insgesamt drei verschiedene lokale Schichtdicken in der Probe vorkommen. Abgesehen von einer Publikation aus allerjüngster Zeit [Andrieu 01] sind dem Autor keine weiteren Berichte über eine derartige Situation bekannt. Auch für Fe auf GaAs(001) ist dies nicht der Fall. Der Grund könnte sein, daß so extrem große einheitlich dicke Bereiche bei den jeweils vorliegenden Schichtwachstumsbedingungen normalerweise nicht entstehen.

Bei geringerer Ausdehnung der atomar glatten Terrassen an den Grenzflächen der ferromagnetischen Schicht werden die einzelnen lokalen Curietemperaturen wegen der nun nicht mehr vernachlässigbaren Austauschkopplung zwischen den verschieden dicken Bereichen nicht mehr so weit auseinanderliegen. Die Curietemperatur eines dünneren Bereiches wird durch die Kopplung an umgebende dickere Bereiche angehoben gegenüber dem für eine unendlich ausgedehnte Schicht dieser Dicke zu erwartenden Wert. Ebenso wird die Curietemperatur eines dickeren Bereiches geringer ausfallen als bei einer unendlich ausgedehnten Schicht, wenn an den Rändern nur Kopplungen zu dünneren Bereichen vorliegen. Durch die endliche Ausdehnung der homogen dicken Bereiche sollte es außerdem in Analogie zum oben diskutierten finite-size-Effekt zu einer gewissen „Verschmierung“ des Phasenübergangsverhaltens der einzelnen Bereiche kommen. Man könnte für $M_S(T)$ bzw. $\chi(T)$ einen Verlauf erwarten wie in Abb. 4.19 b skizziert.

Das Ausmaß der Veränderungen der lokalen Curietemperaturen hängt zweifellos von der lateralen Ausdehnung der Bereiche ab. Da bei vielen Proben diese laterale Ausdehnung stark streut, also sehr viele verschiedene laterale Ausdehnungen in der Probe vorkommen, wird man meist eine quasikontinuierliche Verteilung der lokalen Curietemperaturen erhalten. In diesem Fall sind die Beiträge der einzelnen Bereiche zu den Resultaten integraler Messungen nicht unterscheidbar, sondern es ergibt sich ein „Schwanz“ in $M_S(T)$ bzw. ein mehr oder weniger breiter Suszeptibilitäts-Peak (vgl. Abb. 4.19 c). Ein solcher Mechanismus wurde bereits von Elmers et al. vorgeschlagen zur Deutung der Breite des Phasenübergangs von Fe auf W(110) [Elmers 96b].

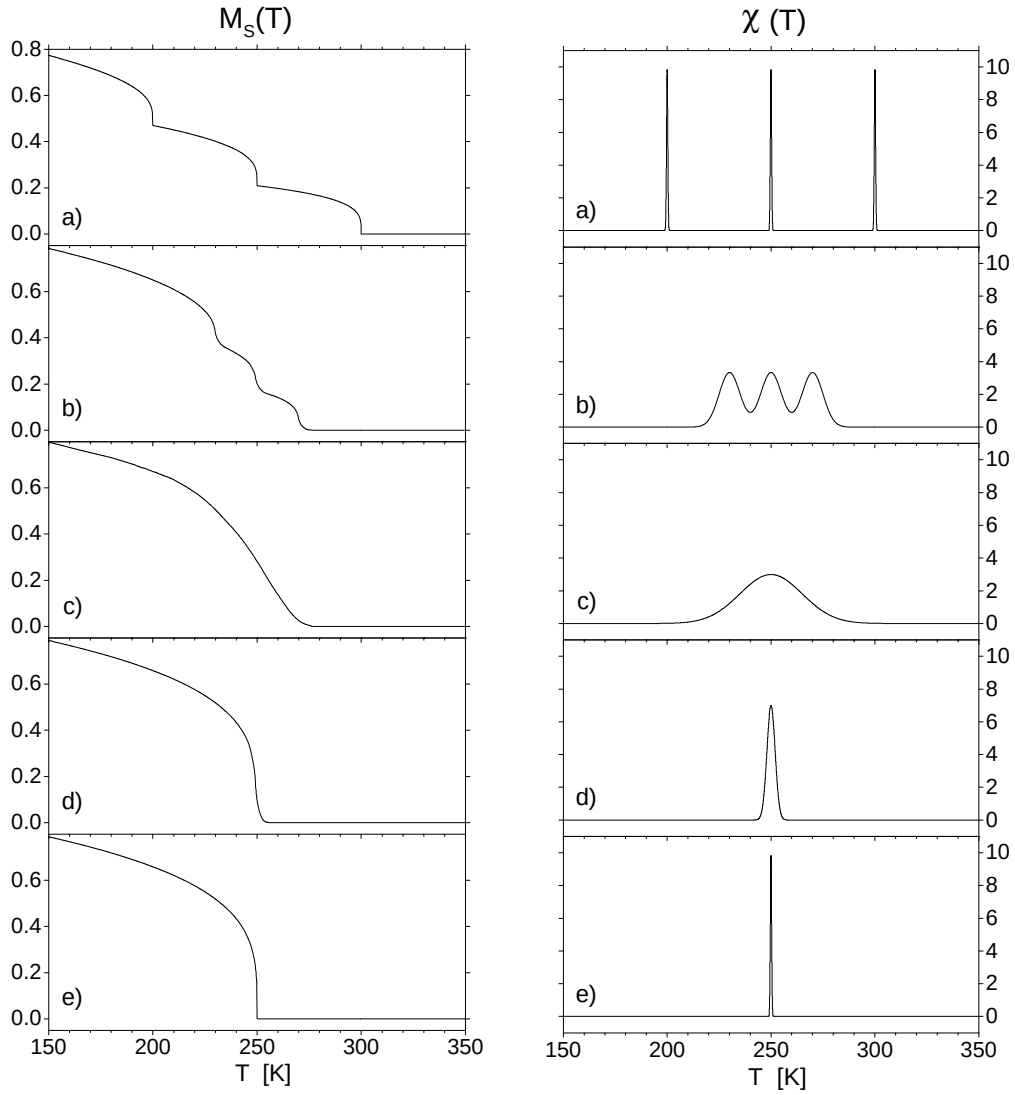

Abb. 4.19 : Illustration zu den heuristischen Überlegungen

Bei weiterer Verringerung der lateralen Ausdehnung der einzelnen homogen dicken Bereiche und unveränderter Häufigkeitsverteilung der einzelnen diskreten Schichtdicken werden sich die lokalen Curietemperaturen weiter annähern, d.h. die Breite der T_C-Verteilung wird abnehmen (vgl. Abb. 4.19 d). Ein sehr scharfer Phasenübergang sollte auftreten, wenn Schichtdickenfluktuationen und andere Inhomogenitäten auf eine extrem kurze Längenskala beschränkt sind, so daß sich die räumlichen Fluktuationen der Austauschenergie wegmitteln (vgl. Abb. 4.19 e). Die charakteristische Längenskala könnte dabei z.B. durch die *Austauschlänge* $l_{ex} = (A/K_S)^{1/2}$ gegeben sein, wobei A die Austauschkonstante und K_S die Anisotropieenergie pro Flächeneinheit repräsentiert. Für 3.1 ML Fe auf GaAs(001) (vgl. Seite 75) ergibt sich mit $A \approx k_B T_C \approx 8.61 \cdot 10^{-2}$ meV/K · 180 K und $K_S \approx 2.3 \cdot 10^{-2}$ meV/Atom · 12.17 Atome/(ML·nm^2) · 3.1 ML eine Austauschlänge von $l_{ex} \approx 13$ nm.

STM-Bilder zeigen, daß bei Fe auf GaAs(001) für $d_{Fe} \approx 3$ ML die Oberflächenrauhigkeit und somit auch die Schichtdickenfluktuationen eine laterale Periodizität von ca. 3 nm aufweisen [Moosbühler 01b]. Dies ist deutlich weniger als die soeben abgeschätzte Austauschlänge und würde daher die außerordentliche Schärfe des Abfalls von $M_S(T)$ bzw. des $\chi(T)$-Peaks bei $T = T_C$ erklären. Leider gibt es bis jetzt aber keine quantitativen theoretischen Untersuchungen, welche die hier vorgestellten qualitativen Überlegungen aufgreifen.

Da für Fe auf metallischen Einkristallsubstraten die atomar glatten Bereiche meist wesentlich größer sind als bei Fe auf GaAs, ist es denkbar, daß das Verhältnis zwischen der mittleren Ausdehnung der Bereiche konstanter Dicke und der Austauschlänge ebenfalls größer ist als bei Fe/GaAs. Dies sollte dann zu einem stärker verbreiterten Phasenübergang führen. Auf diese Weise könnten vielleicht die in der Tabelle auf Seite 78 zusammengefaßten Ergebnisse zur Schärfe des Phasen-

übergangs von Fe auf Metall-Einkristallen erklärt werden. Da die Substrattemperatur beim Wachstum von Fe auf Metall-Einkristallen einen erheblichen Einfluß auf die Terrassengröße hat, könnte im Prinzip die Ausdehnung der atomar glatten Terrassen gezielt variiert werden. Somit könnte man experimentell untersuchen, ob der Phasenübergang tatsächlich bei zunehmender Terrassengröße unschärfer wird. Ein derartiges Experiment steht aber noch aus.

Die Halbwertsbreite des Suszeptibilitäts-Peaks bei $T=T_C$ wird im wesentlichen durch die selben Effekte festgelegt, welche den Schwanz in $M_S(T)$ verursachen und auch die Höhe des Suszeptibilitäts-Maximums ist von diesen Effekten abhängig: je größer der Schwanz in $M_S(T)$ bzw. je breiter der $\chi(T)$-Peak, desto niedriger sollte der Maximalwert der Suszeptibilität sein. Es gibt jedoch noch weitere Einflüsse, welche zu einer Erniedrigung des Suszeptibilitäts-Maximums führen. Ein z.B. wegen Grenzflächenrauhigkeit nicht-vernachlässigbarer Entmagnetisierungsfaktor N bezüglich der Meßrichtung hat zur Folge, daß die gemessene Suszeptibilität $\chi_{ext} := \partial M/\partial H_{ext}$ gegenüber der tatsächlichen inneren Suszeptibilität des Materials $\chi_{int} := \partial M/\partial H_{int}$ vermindert ist, denn es gilt $H_{int} = H_{ext} - N \cdot M$ (im cgs-Einheitensystem). Konkret ergibt sich daraus $\chi_{ext} = (\chi_{int}^{-1} + N)^{-1}$. Da χ_{int} für $T \rightarrow T_C$ divergieren sollte, sollte dieser Ausdruck für $T \rightarrow T_C$ einen endlichen Maximalwert von $\chi_{ext,max} = N^{-1}$ erreichen. Man könnte daher daran denken, aus der Peakhöhe auf den Entmagnetisierungsfaktor und damit indirekt auf die Morphologie der Schichten zu schließen. Bei besonders glatten Schichten sollte der Entmagnetisierungsfaktor bei Messung parallel zur Schichtebene nur wenig von Null verschieden sein und es sollte sich eine besondes große Suszeptibilität ergeben. Allerdings muß beachtet werden, daß auch die Existenz von Spin-Blöcken zu einer Vergrößerung der Suszeptibilität führt. Spin-Blöcke bilden sich in zweidimensionalen Ferromagneten auch bei Temperaturen deutlich oberhalb T_C im Rahmen der kritischen Fluktuationen des Ordnungsparameters [Pokrovsky 79]. Es können aber auch Spin-Blöcke morphologisch vorgeformt sein. Letzteres gilt als wahrscheinlichste Ursache für die enorm großen Suszeptibilitäten von $3.8 \cdot 10^6$ (SI-Einheiten) [Back 94], die für Co/Cu(001) und Fe/W(110) gefunden wurden [Elmers 96b].

Die Inhomogenität der Curietemperatur über der Schichtfläche

Neben unregelmäßigen Schichtdickenfluktuationen, wie sie im vorhergehenden Abschnitt diskutiert wurden, wird während der Schichtherstellung durch einen nie völlig vermeidbaren Depositionsrategradienten eine systematische Variation der Schichtdicke über der Schichtfläche, d.h. ein Schichtdickengradient, entstehen. Auch dieser Aspekt wurde in der Literatur bisher kaum beachtet. Ein Schichtdickengradient hat eine systematische Variation der Curietemperatur über der Schichtfläche zur Folge und sollte deshalb, je nach Meßmethode mehr oder weniger stark, zu einem Schwanz in $M_S(T)$ beitragen bzw. eine Verbreiterung des $\chi(T)$-Peaks bewirken. Dies war ein wichtiger Grund, weshalb für die hier vorgestellten Experimente Stufenkeilschichten an Stelle von kontinuierlichen Keilen verwendet wurden. Trotzdem wird auch in diesen Proben auf den einzelnen Stufenebenen ein gewisser unbeabsichtigter Schichtdickengradient vorliegen.

Um diesen zu quantifizieren wurde eine Probe verwendet, die analog zu den Stufenkeilschichten präpariert wurde, jedoch ohne eine Blende vor dem Substrat zu bewegen. Messungen der Curietemperatur mit dem analog-ac-MOKE-Verfahren an verschiedenen Orten auf dieser Probe ergaben einen weitgehend homogenen T_C-Gradienten von ungefähr 1.5 K/mm. Betrachtet man die Abhängigkeit der Curietemperatur von der nominellen Schichtdicke, wie sie auf Seite 89 beschrieben ist (vgl. Abb. 4.26), so kann man diesen T_C-Gradienten auf einen Gradienten der nominellen Schichtdicke von 0.006 ML/mm zurückführen. Die Variation von T_C innerhalb der vom Laser des MOKE-Systems beleuchteten Schichtfläche (0.5 mm im Durchmesser) beträgt also ungefähr 0.7 K. Dies ist sogar etwas mehr als die in Abb. 4.18 a erkennbare Ausdehnung des Schwanzes von $M_S(T)$. Der beobachtete Schwanz in $M_S(T)$ kann offenbar ausschließlich mit dem Gradienten der nominellen Schichtdicke erklärt werden. Die im vorherigen Abschnitt diskutierten unregelmäßigen Schichtdickenschwankungen tragen also im vorliegenden Fall so gut wie überhaupt nicht zur Verbreiterung des Phasenübergangs bei. Daher kann man erwarten, daß der Verlauf von $M_S(T)$ und $\chi(T)$ bei $T=T_C$ noch schärfer ausfallen wird, wenn es gelingt, den unbeabsichtigten Schichtdickengradienten weiter zu reduzieren bzw. den Laserstrahl des MOKE-Systems noch schärfer zu fokussieren.

Nun wird auch klar, daß die SQUID-Magnetometrie und die Mössbauer-Spektroskopie zur Untersuchung der Schärfe von Phasenübergängen dünner ferromagnetischer Schichten dem MOKE deutlich unterlegen sind, da diese Verfahren über die *gesamte* Fläche einer Probe mitteln. Diese ist wesentlich größer als die Ausdehnung des beleuchteten Flecks bei MOKE. Daher wirkt sich ein unbeabsichtigter Schichtdickengradient viel stärker aus. Beim SQUID-Magnetometer kommt noch hinzu, daß das Magnetfeld am Probenort kaum auf Werte $|H| < 1$ Oe einjustiert werden kann (außer

am Quantum-Design-Gerät mit installierter „low field“-Option). Der unbeabsichtigte Schichtdickengradient könnte der wesentliche Grund sein, weshalb z.B. T. Richardsen für 1.4 ML Fe auf Au(001) mit CEMS einen „Schwanz“ von $\Delta T/T_C \approx 30$ K / 270 K ≈ 11 % Ausdehnung in $M_S(T)$ erhalten hat [Richardsen 97].

Der kritische Exponent b

Nach der Landau-Theorie sollte die Spontanmagnetisierung M_S als Funktion der Temperatur T in der Nähe der kritischen Temperatur T_C einem Potenzgesetz der Gestalt

$$M_S(T) = M_0 \cdot (1 - T/T_C)^{\beta}$$

folgen. Abhängig von der Universalitätsklasse, zu welcher das untersuchte System gehört, sollte der kritische Exponent β einen ganz bestimmten Wert annehmen (vgl. Seite 11). Eine Bestimmung des kritischen Exponenten β ermöglicht also prinzipiell Rückschlüsse auf die Universalitätsklasse. Da sich obiges Potenzgesetz auch in der Form

$$\log(M_S/\text{Einheit}) = \log(M_0/\text{Einheit}) + \beta \cdot \log(1 - T/T_C)$$

schreiben läßt, ist eine doppellogarithmische Auftragung von Meßdaten besonders günstig. β läßt sich dann als Steigung einer angepaßten Geraden ablesen.

An einer Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6) wurde mit dem „digital-ac-MOKE“-Verfahren die remanente Kerr-Rotation θ_K als Funktion der Temperatur T bestimmt. Die Daten dieser Messung sind in Abb. 4.14 a in linearer Auftragung wiedergegeben. Wie auf Seite 72 begründet, kann man davon ausgehen, daß die remanente Kerr-Rotation θ_K proportional ist zur Spontanmagnetisierung M_S. Nun sollen diese Daten als $\log(\theta_K/\mu\text{rad})$ gegen $\log(1\text{-}T/T_C)$ aufgetragen werden. Dabei ist allerdings entscheidend, einen korrekten Wert für T_C einzusetzen.

Einem üblichen Vorgehen folgend, wurde T_C zunächst so festgelegt, daß der Verlauf im gesamten Temperaturbereich möglichst wenig von einer Geraden abweicht (Abb. 4.20). Der so bestimmte Wert von $T_C = 254.7$ K stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der Temperatur des in Abb. 4.18 dargestellten Maximums der magnetischen Suszeptibilität überein. Es zeigt sich, daß sich damit in einem Temperaturintervall von $\log(1\text{-}T/T_C) \approx -0.5$, d.h. $T \approx 0.7 \cdot T_C$ bis $\log(1\text{-}T/T_C) = -3.4$, d.h. $T = 0.9996 \cdot T_C$ ein linearer Verlauf ergibt. Aus der Steigung einer numerisch angepaßten Geraden folgt ein kritischer Exponent von $\beta = 0.26 \pm 0.02$.

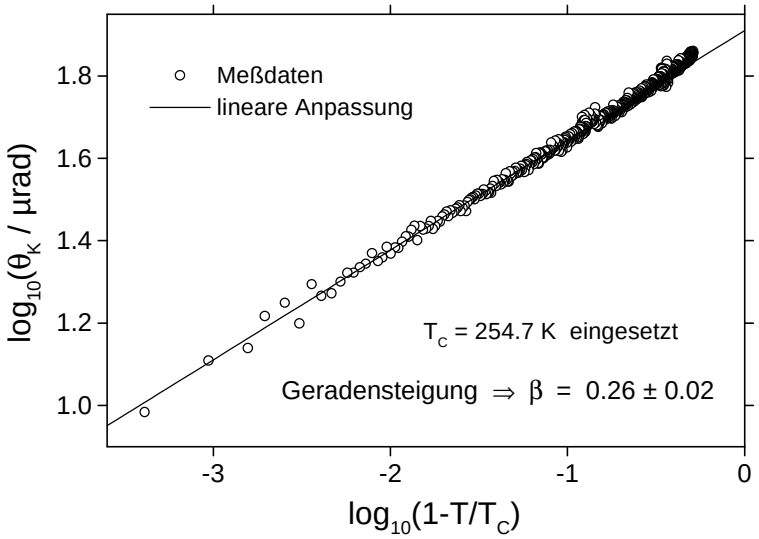

Abb. 4.20 : Remanente Kerr-Rotation q_K als Funktion der Temperatur T in doppellogarithmischer Auftragung für eine Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(6x6). Für die Curietemperatur T_C wurde der Wert 254.7 K eingesetzt, welcher zu einem möglichst linearen Verlauf führt. Der kritische Exponent $b = 0.26 \pm 0.02$ folgt aus der Steigung einer numerisch angepaßten Geraden.

Dieser Wert ist definitiv verschieden von kritischen Exponenten, welche für dreidimensionale Ferromagnete theoretisch hergeleitet wurden ($\beta > 0.3$). Er ist auch verschieden von dem zur 2D-Ising-Universalitätsklasse gehörigen Theoriewert ($\beta = 1/8 = 0.125$). Ebenso kann ein dipolarer Superferromagnetismus ausgeschlossen werden, da hierfür der aus der Molekularfeldtheorie folgende kritische Exponent $\beta = 0.5$ gelten sollte. Das tatsächlich gefundene β liegt jedoch nahe bei dem effektiven kritischen Exponenten zweidimensionaler XY-Systeme von endlicher Ausdehnung ($\beta = 3\pi^2/128 \approx 0.23$) [Bramwell 93] [Bramwell 94].

Auch bei anderen epitaktischen ferromagnetischen Schichtsystemen, die eine magnetisch schwere Achse senkrecht zur Schichtebene, aber keine uniaxiale magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene aufweisen, wurden für den kritischen Exponenten β ähnliche Werte gefunden, wie die folgende Tabelle zeigt.

Schichtsystem	kritischer Exponent β	Referenz
2 ... 3 ML Ni / Cu(111)	0.24 ± 0.07	[Ballentine 90]
2.5 ... 7 ML Ni / Cu(001)	0.25 ± 0.05	[Huang 93]
1.6 ML Fe / W(001)	0.22 ± 0.03	[Elmers 96a]
1.0 ... 2.5 ML Fe / Au(001)	0.22 ± 0.05	[Dürr 89]
2 ML Fe / Au(001)	0.25 ± 0.01	[Rau 96]
3.4 ML Fe / GaAs(001)	**0.26 ± 0.02**	**diese Arbeit**

Bei diesen Schichtsystemen wurde ebenfalls beobachtet, daß das Potenzgesetz bis zu Temperaturen weit unterhalb T_C in recht guter Näherung gilt. Dies ist bemerkenswert, da z.B. im Falle der 2D-Ising Universalitätsklasse das kritische Potentzgesetz bereits bei Temperaturen $T < 0.9 \cdot T_C$ beträchtlich von der exakten „Onsager-Lösung“ (vgl. Seite 11) abweicht [Kohlhepp 92]. Leider gibt es für das 2D-XY-Modell endlicher Ausdehnung bislang keine exakte Berechnung der Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung, mit welcher verglichen werden könnte. Daher kann nicht entschieden werden, ob für die 2D-XY-Universalitätsklasse das Potenzgesetz tatsächlich bis weit unterhalb T_C gelten sollte.

Im Unterschied zu den soeben diskutierten Schichtsystemen existiert bei epitaktischem Fe auf GaAs(001) eine recht starke uniaxiale magnetische Anisotropie, deren leichte Achse innerhalb der Schichtebene parallel zur [110]-Richtung liegt [Brockmann 99]. Binder und Hohenberg [Binder 74] sowie Bander und Mills [Bander 88] haben erläutert, daß sich jedes anisotrope Heisenberg-System in einem mehr oder weniger kleinen Temperaturintervall bei T_C „Ising-artig“ verhalten sollte. Daher kann man nicht ausschließen, daß der in Abb. 4.20 für T_C eingesetzte Wert nicht korrekt war und sich somit zumindest bei den kleinsten Werten von $\log(1\text{-}T/T_C)$ eine falsche Steigung und damit ein falsches β ergab. In Abb. 4.21 sind nochmals die Daten von Abb. 4.20 aufgetragen, jedoch wurde der für T_C eingesetzte Wert um 0.3 K auf 254.4 K geändert. Damit ergibt sich im Intervall zwischen $\log(1\text{-}T/T_C) = -3.8$ und $\log(1\text{-}T/T_C) = -2.4$ eine Steigung von 0.125, welche dem für das 2D-Ising-Modell erwarteten kritischen Exponenten β entspricht. Durch Vergleich mit der Onsager-Lösung kann im Temperaturbereich $\log(1\text{-}T/T_C) > -2.4$ ein 2D-Ising-Verhalten eindeutig ausgeschlossen werden.

Um nun zu entscheiden, ob tatsächlich bereits bei $\log(1\text{-}T/T_C) \approx -2.4$ oder erst bei noch dichterer Annäherung an T_C ein Übergang zu Ising-Verhalten auftritt, muß ein Weg gefunden werden, um die Curietemperatur T_C mit einer Unsicherheit von deutlich weniger als 0.3 K unabhängig zu bestimmen. Da es bereits Berichte gibt, wonach die Temperatur des Suszeptibilitäts-Maximums unter Umständen nicht genau mit T_C zusammenfällt [Elmers 95], erscheint das Suszeptibilitäts-Maximum nicht zur hochpräzisen T_C-Bestimmung geeignet. Eine zuverlässigere Ermittlung von T_C könnte aber eventuell durch einen sogenannten „verallgemeinerten Arrott-Plot“ erreicht werden. Ein solcher setzt jedoch sehr umfangreiche Meßdaten voraus. Dies hätte den Rahmen der vorliegenden Arbeit überschritten.

Bei einer entsprechenden zukünftigen Untersuchung sollte beachtet werden, daß der Unterschied von 0.3 K der T_C-Werte von Abb. 4.20 und Abb. 4.21 in der selben Größenordnung liegt wie die T_C-Variation von 0.7 K innerhalb des untersuchten Bereiches der Probe (vgl. Seite 81). Daher ist eine zuverlässige Klärung der Frage nach der Größe des Temperaturintervalles bei T_C, in welchem Ising-Verhalten auftritt, erst zu erwarten, wenn diese T_C-Variation weiter reduziert wurde, sei es

durch eine Reduktion des Schichtdickengradienten und/oder einer schärferen Fokussierung des MOKE-Laserstrahls.

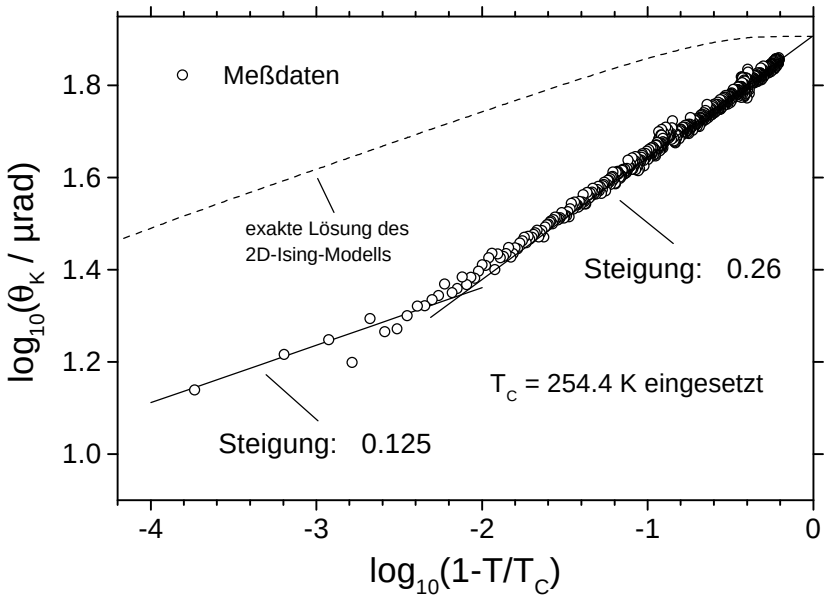

Abb. 4.21 : Nochmalige Auftragung der Daten von Abb. 4.20, nun mit um 0.3 K modifiziertem T_C-Wert. Bei Annäherung an T_C ändert sich nun die Steigung von 0.26 auf 0.125, was einem Übergang zu Ising-Verhalten entspräche. Zum Vergleich ist ein nach der exakten Lösung des 2D-Ising-Modells zu erwartender Verlauf eingezeichnet.

Die magnetische Anisotropie als Funktion der Temperatur

Ising-Verhalten sollte auftreten, wenn die Anisotropieenergie einer uniaxialen magnetischen Anisotropie gegenüber der thermischen Energie dominiert. Um einen Vergleich der Anisotropieenergie mit der thermischen Energie auch in unmittelbarer Nähe von T_C zu ermöglichen, wurde exemplarisch für eine Probe mit 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) die Stärke der uniaxialen magnetischen Anisotropie innerhalb der Schichtebene als Funktion der Temperatur untersucht, und zwar von $T << T_C$ bis $T > T_C$.

Im Unterschied zu früheren Messungen der magnetischen Anisotropie an dickeren Fe-Schichten auf GaAs(001) [Brockmann 00] kann hier nicht vorausgesetzt werden, daß der *Betrag* der Magnetisierung unabhängig ist vom angelegten Magnetfeld. Deshalb genügt es nicht, nur Magnetisierungskurven bezüglich der schweren Richtung auszuwerten. Statt dessen muß die Differenz der Magnetisierungsarbeiten von schwerer Richtung [-110] und leichter Richtung [110] bestimmt werden.

Bei dem vorliegenden Schichtsystem hat man den günstigen Fall, daß beim Verringern des externen Magnetfelds aus der Sättigung bis auf Null keine magnetischen Domänen auftreten. Der dabei erhaltene Verlauf des magnetischen Gesamtmoments der Fe-Schicht enthält deshalb die volle Information über die Magnetisierungsarbeit. Die anderen Abschnitte der Hysteresekurve brauchen bei der Bestimmung der magnetischen Anisotropie nicht berücksichtigt zu werden.

Zur Messung wurde das Münchener SQUID-Magnetometer (vgl. Seite 50) verwendet. Die Probe wurde vorbereitet wie auf den Seiten 49 und 71 beschrieben. Das Substratsignal ist also direkt kompensiert. Da die Spaltkanten des GaAs-Substrats parallel zu den ⟨110⟩-Kristallrichtungen verlaufen, ist die Parallelität zwischen der Meßrichtung und der [110]- bzw. [-110]-Richtung auf einfache Weise zuverlässig gewährleistet. Beim Drehen der Probe um 90° zum Wechseln der Meßrichtung ändert sich die Lage der Umrisse der Probe relativ zu den pick-up-Spulen nicht. Daher kann man für beide Teilmessungen den gleichen Geometriefaktor annehmen. Außerdem ändert sich dabei auch der Formanisotropiebeitrag nicht.

Die Diagramme von Abb. 4.22 zeigen die Ergebnisse einer solchen SQUID-Magnetometer-Messung an einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) bei verschiedenen Temperaturen, sowohl in [110]-Richtung (Abb. 4.22 a) als auch in [-110]-Richtung (Abb. 4.22 b). Das magnetische Ge-

samtmoment der Fe-Lage wurde umgerechnet auf ein mittleres magnetisches Moment pro Fe-Atom.

In Abb. 4.23 a-d ist ein Teil dieser Daten noch einmal in anderer Form dargestellt. Für vier ausgewählte Temperaturen sind jeweils die zur [110]- und zur [-110]-Richtung gehörigen Magnetisierungskurven in ein gemeinsames Diagramm eingezeichnet. In diesem Fall ist auf der Ordinate das magnetische Moment pro Flächeneinheit des GaAs-Substrats aufgetragen. Die Anisotropieenergie pro Flächeneinheit ergibt sich nun ganz anschaulich in absoluten Einheiten aus der von den beiden Kurven und der Ordinate eingeschlossenen Fläche, welche durch numerische Integration bestimmt werden kann. Sie entspricht dem Produkt aus der auf Seite 7 eingeführten effektiven uniaxialen Anisotropiekonstanten K_u^{eff} und der nominellen Schichtdicke d_{Fe}. Eigentlich müßte die Differenz zwischen den Kurven von H = 0 bis $H \rightarrow \infty$ aufintegriert werden. Aus praktischen Gründen wird die Integration jedoch auf ein endliches Intervall beschränkt (hier: H = 0 ... 7 kOe). Auf diese Weise erhält man zumindest eine untere Schranke für $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$.

Eine derartige Auswertung wurde für jede der in Abb. 4.22 auftretenden Temperaturen durchgeführt. Die erhaltenen Werte der Anisotropieenergie pro Flächeneinheit sind in Abb. 4.24 gegen die Temperatur aufgetragen. Die Betrachtung einer Anisotropieenergie pro Flächeneinheit, also der Größe $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$, ist naheliegend, da es sich um eine reine Grenzflächenanisotropie handelt (vgl. Seite 96). Zusätzlich wurden diese Werte aber auch auf eine mittlere Anisotropieenergie pro Fe-Atom umgerechnet (rechte Skala in Abb. 4.24).

Die Temperaturabhängigkeit der magnetischen Anisotropie wurde im Rahmen von theoretischen Betrachtungen bisher meist mit der Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung M_S in Verbindung gebracht (vgl. Seite 14). Da M_S bei T_C gleich Null wird, wurde erwartet, daß auch die magnetische Anisotropie bei T_C verschwindet. In vielen Fällen wurde im Experiment tatsächlich ein solches Verhalten beobachtet [Elmers 99].

Bei der vorliegenden Probe beträgt die Curietemperatur $T_C \approx 180$ K. Dies erkennt man leicht am Verschwinden der Remanenz für T > 180 K (vgl. Abb. 4.29 auf Seite 94). Es zeigt sich, daß $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$ bei $T = T_C$ *nicht* verschwindet, sondern mit 0.0137 erg/cm^2 bzw. 2.3 µeV/Atom etwa 35 % des Tieftemperaturwertes (bei T = 10 K) beträgt. Es gibt auch keine Trendänderung im Verlauf von $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$ als Funktion der Temperatur bei T_C. Der Verlauf ist zwischen 100 K und 250 K im Rahmen der Meßgenauigkeit linear. Nach einer linearen Extrapolation scheint die magnetische Anisotropie bei $T \approx 270$ K zu verschwinden, d.h. bei $T \approx 1.5 \cdot T_C$. Ein Vorzeichenwechsel, d.h. ein Reorientierungsübergang der leichten Richtung von [110] nach [-110] findet offenbar nicht statt, wie der Meßpunkt bei 300 K zeigt. Es wäre denkbar, daß $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$ tatsächlich nicht linear mit der Temperatur gegen Null geht, sondern asymptotisch. Da sich nämlich mit zunehmender Temperatur der Bereich mit der größten Aufspaltung zwischen den zu den beiden Meßrichtungen gehörigen Magnetisierungskurven zu höheren Magnetfeldern verschiebt, wird durch die oben erwähnte Beschränkung der Integration auf ein endliches Feldintervall die Magnetisierungsarbeit umso stärker unterschätzt, je höher die Temperatur ist. Unterhalb von T = 100 K weicht $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$ ebenfalls von einem linearen Verlauf ab. Eine befriedigende Erklärung gibt es dafür bislang nicht.

Ein Verschwinden der magnetischen Anisotropie für $T > T_C$ ist von einem theoretischen Standpunkt aus nicht zwingend. So ist z.B. die Spin-Bahn-Kopplung auch für $T > T_C$ wirksam. Außerdem läßt sich für $T > T_C$ mit Hilfe eines externen Magnetfeldes eine Nettomagnetisierung induzieren, welche auf Grund der Spin-Bahn-Kopplung eine magnetische Anisotropie spüren sollte. In der Tat konnte bereits mit modernen ab-initio-Methoden ein solches Verhalten begründet werden [Elmers 99]. Für die uniaxiale magnetische Anisotropie senkrecht zur Schichtebene einer Co-Monolage auf Cu(111) wurde dies auch schon experimentell bestätigt [Kohlhepp 93]. Mit den hier vorgestellten Daten liegt nun eine weitere Bestätigung am Beispiel der uniaxialen magnetischen Anisotropie innerhalb der Schichtebene einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001) vor.

Offenbar reicht die Stärke der magnetischen Anisotropie bei 3.1 ML Fe auf GaAs(001) nicht aus, um den magnetischen Phasenübergang eindeutig Ising-artig zu machen. Dies verwundert zunächst nicht, da die Anisotropieenergie pro Atom bei $T = T_C$ mit 2.3 µeV um Größenordnungen geringer ist als die thermische Energie von $k_B T_C \approx 15$ meV.

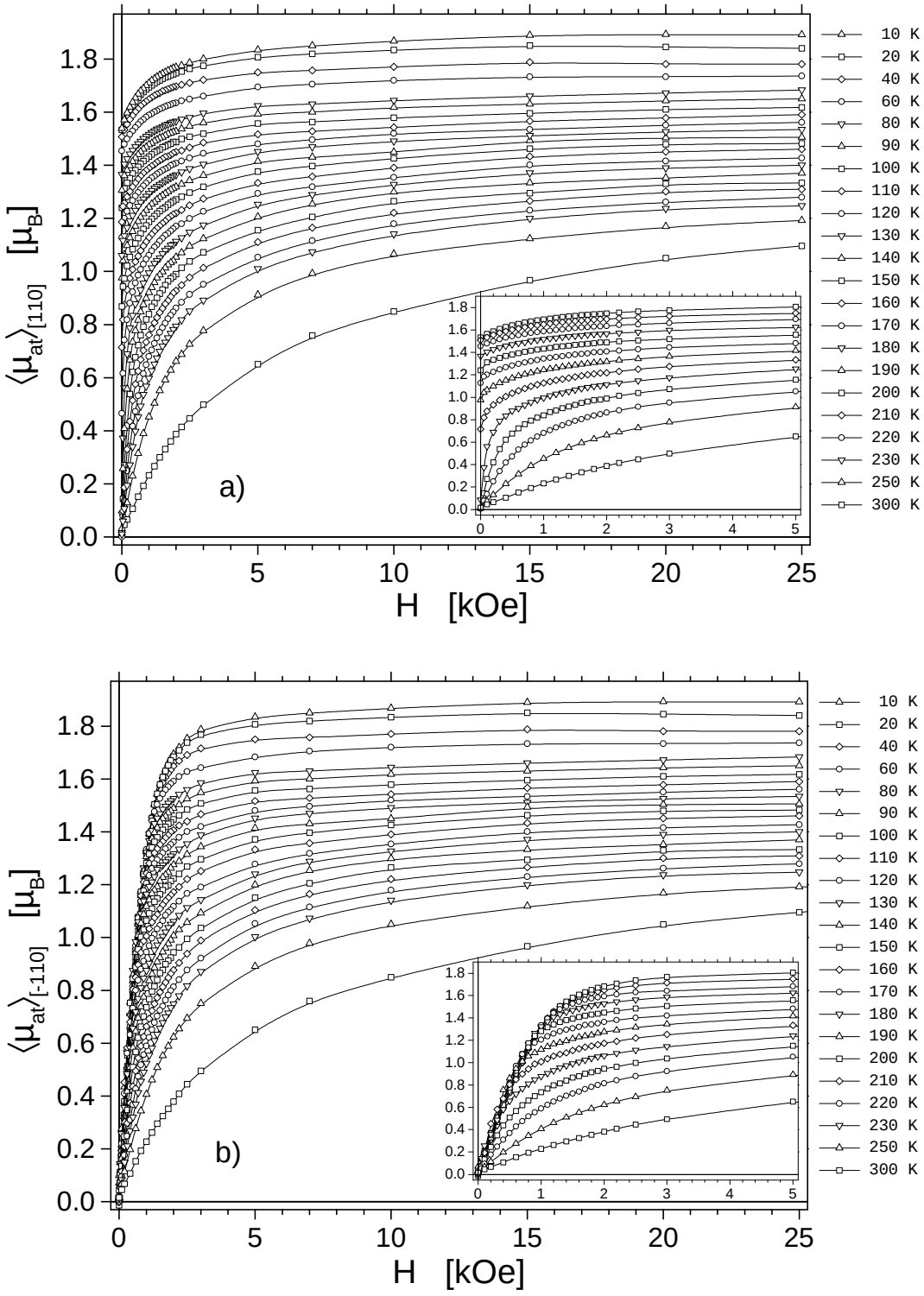

Abb. 4.22 : Komponente des mittleren magnetischen Moments pro Fe-Atom, $\langle\mu_{at}\rangle$, einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) als Funktion des externen Magnetfeldes H, gemessen mit SQUID-Magnetometrie bei verschiedenen Temperaturen a) in [110]-Richtung b) in [-110]-Richtung.

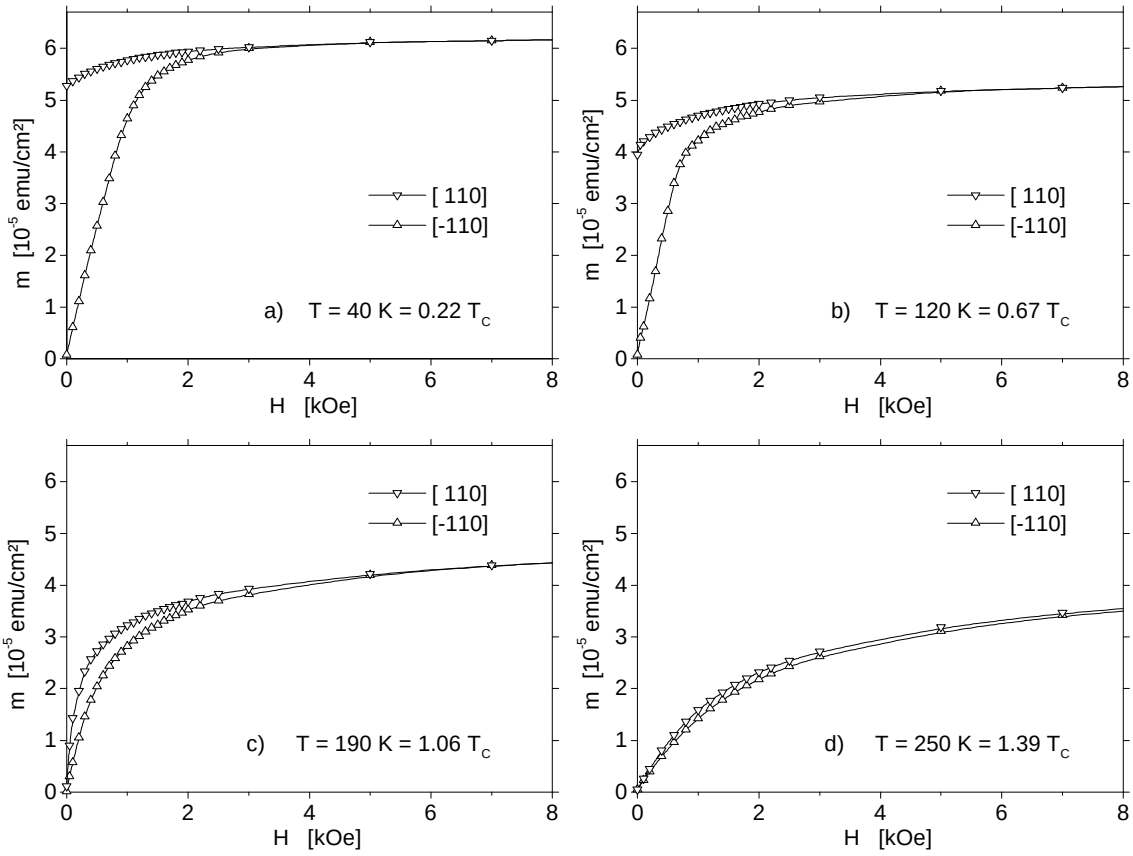

Abb. 4.23 : Magnetisierungskurven von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2), gemessen in [110]- und [-110]-Richtung für vier ausgewählte Temperaturen. Die Anisotropieenergie pro Substrat-Flächeneinheit ergibt sich aus der von den beiden Kurvenverläufen und der Ordinate eingeschlossenen Fläche. Sie entspricht dem Produkt aus der uniaxialen effektiven Anisotropiekonstanten K_u^{eff} und der nominellen Schichtdicke d_{Fe}.

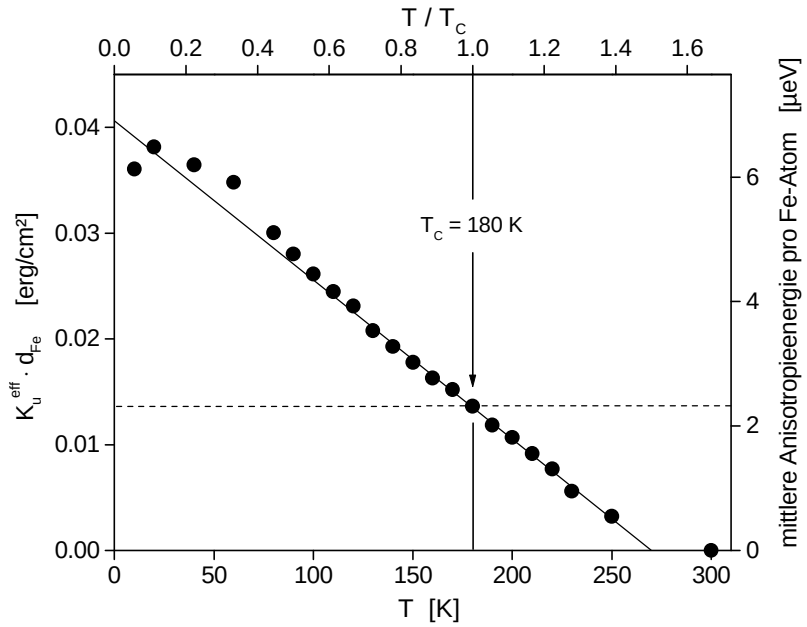

Abb. 4.24 : Anisotropieenergie pro Flächeneinheit $K_u^{eff} \cdot d_{Fe}$ bzw. Anisotropieenergie pro Fe-Atom der uniaxialen magnetischen Anisotropie innerhalb der Schichtebene einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2), als Funktion der Temperatur.

Etwas Ähnliches scheint für 2 ML Co auf W(110) zu gelten. Auch bei diesem Schichtsystem wurde für den kritischen Exponenten ein 2D-XY-artiger Wert von $\beta = 0.25 \pm 0.01$ gefunden, obwohl eine uniaxiale magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene vorliegt [Garreau 97a]. Die Stärke der magnetischen Anisotropie wurde jedoch leider nicht berichtet.

Bei einer Monolage Fe auf W(110) tritt dagegen 2D-Ising-Verhalten auf ($T_C \approx 230$ K, $\beta \approx 0.134 \pm 0.003$) [Elmers 96b]. In diesem Fall liegt wiederum eine uniaxiale magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene vor. Die Stärke beträgt 110 µeV/Atom bei $T << T_C$ [Elmers 96b]. Leider wurde auch hier die Stärke der Anisotropie bei $T = T_C$ nicht angegeben. Aber selbst unter der Annahme, daß diese magnetische Anisotropie bei $T = T_C$ nicht schwächer ist als bei $T << T_C$, ist die mittlere Anisotropieenergie pro Atom auch in diesem Fall gering verglichen mit der thermischen Energie von $k_B T_C \approx 19$ meV.

Offenbar ist es nicht sinnvoll, die auf einzelne Atome bezogene mittlere Anisotropieenergie mit der thermischen Energie zu vergleichen. Vielmehr erscheint es als grundsätzlich notwendig, die Existenz von Spin-Blöcken zu berücksichtigen, welche sich im Rahmen der kritischen Fluktuationen des Ordnungsparameters ausbilden und viele magnetische Atome umfassen. Die thermische Energie sollte daher mit der mittleren Anisotropieenergie pro Spin-Block verglichen werden, welche wesentlich größer ist als die mittlere Anisotropieenergie pro Atom. Da die Größe der Spin-Blöcke bei Annäherung an T_C divergieren sollte, wäre damit auch der erwartete Übergang zu Ising-Verhalten quantitativ zu verstehen. Die Größe der Spin-Blöcke als Funktion der Temperatur ist allerdings derzeit für die oben diskutierten Schichtsysteme nicht mit hinreichender Genauigkeit bekannt, um eine solche quantitative Auswertung wirklich durchzuführen.

Wie Abb. 4.15 b zeigt, ist für 3.1 ML Fe auf GaAs(001) bei $T \approx T_C$ die uniaxiale magnetische Anisotropie mit (schwerer) Achse senkrecht zur Schichtebene lediglich etwa doppelt so stark wie die uniaxiale magnetische Anisotropie mit Achse innerhalb der Schichtebene. Daher kann man davon ausgehen, daß auch sie, zumindest bei Temperaturen deutlich unterhalb T_C, die thermische Energie nicht dominieren kann. Somit ist nicht unmittelbar einzusehen, weshalb sich ein 2D-XY-artiges Verhalten ergeben sollte, da die Orientierung der Spins nicht vollständig auf eine „XY-Ebene“ eingeschränkt sein wird.

Schließlich ist interessant, daß sich bei der Untersuchung von Fe-Lagen auf (6x6)-rekonstruiertem GaAs(001) im Rahmen dieser Arbeit keine signifikanten Unterschiede in der magnetischen Anisotropie verglichen mit Fe auf (4x2)-rekonstruiertem GaAs(001) ergeben haben. Die gelegentlich in der Literatur (z.B. bei [Xu 00]) zu findende Aussage, die leichen Richtungen der uniaxialen magnetischen Anisotropie in der Schichtebene von Fe auf diesen beiden unterschiedlich rekonstruierten Substratoberflächen seien um 90° gegeneinander verdreht, ist offenbar falsch.

4.2.2 Das Einsetzen des Ferromagnetismus

Während im vorherigen Kapitel primär die Temperaturabhängigkeit verschiedener Größen bei konstanter nomineller Fe-Bedeckung betrachtet wurde, soll nun die Abhängigkeit von der Fe-Bedekkung bei konstanter Temperatur im Vordergrund stehen. Dabei interessiert insbesondere diejenige kritische Fe-Bedeckung, welche überschritten werden muß, um ferromagnetisches Verhalten zu bekommen.

Dieses *Einsetzen des Ferromagnetismus* wurde bisher für Fe auf GaAs(001) in der Literatur nur bei Zimmertemperatur betrachtet. Für Fe auf As-reichen (2x4)- bzw. (4x4)-rekonstruierten GaAs(001)-Substratoberflächen wurde eine kritische Schichtdicke von 6.0 ML berichtet [Kneedler 97] und für Fe auf Ga-reichen (4x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberflächen wurde ein Wert von 4.8 ML als kritische Dicke angegeben [Xu 98]. Freeland et al. schließlich sprechen von einer kritischen Dicke von 3.8 ML [Freeland 99]. Dies ist deutlich mehr als bei Fe-Lagen auf Metall-Einkristallen, wie W(110) [Elmers 96 b], Au(001) [Dürr 89], Ag(111) [Qiu 91] oder Ag(001) [Qiu 94], welche ferromagnetisches Verhalten bei Zimmertemperatur schon ab einer Fe-Bedeckung von weniger als 2.4 ML zeigen.

Die Wahl von Zimmertemperatur bei diesen Untersuchungen erscheint von einem theoretischen Standpunkt aus betrachtet als völlig willkürlich. Sie erklärt sich im Wesentlichen aus der begrenzten experimentellen Ausstattung der Autoren, welche nur Experimente bei Zimmertemperatur erlaubte. Von wirklich fundamentaler Bedeutung ist diejenige minimale Fe-Bedeckung, bei welcher ein ferromagnetischer *Grundzustand* auftritt, bei welcher also die Curietemperatur von Null verschieden wird. Es war daher ein Ziel dieser Arbeit, die Curietemperatur T_C als Funktion der Fe-Bedeckung zu

untersuchen und zwar bis zu möglichst geringen Fe-Bedeckungen bzw. bis zu möglichst kleinen Werten von T_C.

Um den Mechanismus aufzuklären, welcher hinter dem Einsetzen des Ferromagnetismus steckt, wurden außerdem der prozentuale Anteil des ferromagnetischen Eisens am gesamten Eisen, die Stärke der magnetischen Anisotropie im Grundzustand und die atomaren magnetischen Grundzustandsmomente als Funktion der Fe-Bedeckung untersucht.

Die Curietemperatur als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung

Zur Bestimmung der Curietemperatur T_C in Abhängigkeit von der nominellen Fe-Schichtdicke d_{Fe} wurde statt der spontanen Magnetisierung die magnetische (Nullfeld-)Suszeptibilität herangezogen, da es im allgemeinen günstiger ist, eine Größe zu betrachten, die bei T_C einen Maximalwert erreicht, statt einer solchen, welche bei T_C verschwindet.

Für jeden Bereich von bestimmter Dicke einer stufenkeilfömigen Fe-Schicht auf GaAs(001)-(4x2) wurde die magnetische Suszeptibilität mit dem „analog-ac-MOKE“-Verfahren als Funktion der Temperatur gemessen (vgl. Seite 42 ff.). In Abb. 4.25 sind diese Meßdaten in einem gemeinsamen Diagramm dargestellt. Die unregelmäßigen Peakhöhen sind vermutlich eine Folge von kleinen Schwankungen des statischen Restmagnetfeldes. Die Temperaturen, bei welchen Maxima der Suszeptibilität auftreten, werden als Curietemperaturen interpretiert und sind in Abb. 4.26 gegen die nominelle Schichtdicke aufgetragen.

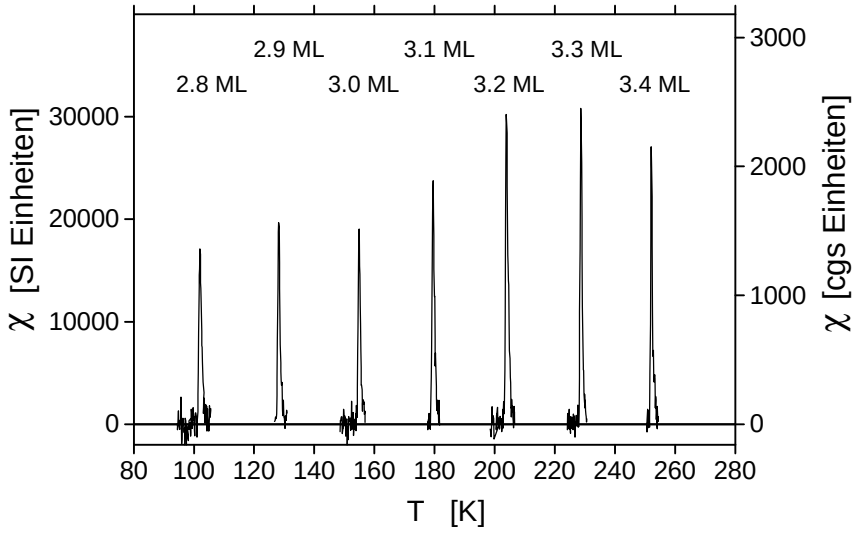

Abb. 4.25 : Magnetische (Nullfeld-)Suszeptibilität χ als Funktion der Temperatur T für mehrere verschieden dicke Fe-Lagen auf GaAs(001)-(4x2). Die Lage der Peakmaxima gibt die zur jeweiligen Fe-Bedeckung gehörige Curietemperatur T_C an.

Man erkennt eine starke, geringfügig nichtlineare Abhängigkeit der Curietemperatur T_C von der nominellen Schichtdicke d_{Fe}. Die mittlere Steigung beträgt ungefähr 270 K/ML. Für d_{Fe} = 3.6 ML liegt T_C bei 300 K, d.h. bei Zimmertemperatur. Dies ist deutlich weniger als die von Kneedler et al. bzw. Xu et al. berichteten Werte von 6.0 ML [Kneedler 97] bzw. 4.8 ML [Xu 98] und auch etwas geringer als der von Freeland et al. berichtete Wert von 3.8 ML [Freeland 99]. Dies könnte auf die im vorliegenden Fall besonders glatte Substratoberfläche zurückzuführen sein.

Offenbar ändert sich die Curietemperatur mit der nominellen Schichtdicke *kontinuierlich*, obwohl die lokale Schichtdicke bei einkristallinen Schichten diskret ist. Dies beruht wohl ebenso wie die besondere Schärfe des magnetischen Phasenübergangs auf der bereits diskutierten Abwesenheit von langwelligen Schichtdickenfluktuationen (vgl. Seite 80). Die vorhandenen Schichtdickenfluktuationen sind offenbar hinreichend kurzwellig, so daß sich die damit verbundenen Schwankungen der Austauschenergie wegmitteln. Die Curietemperatur folgt also der mittleren Austauschenergie pro Atom, welche mit der nominellen Schichtdicke kontinuierlich zunimmt.

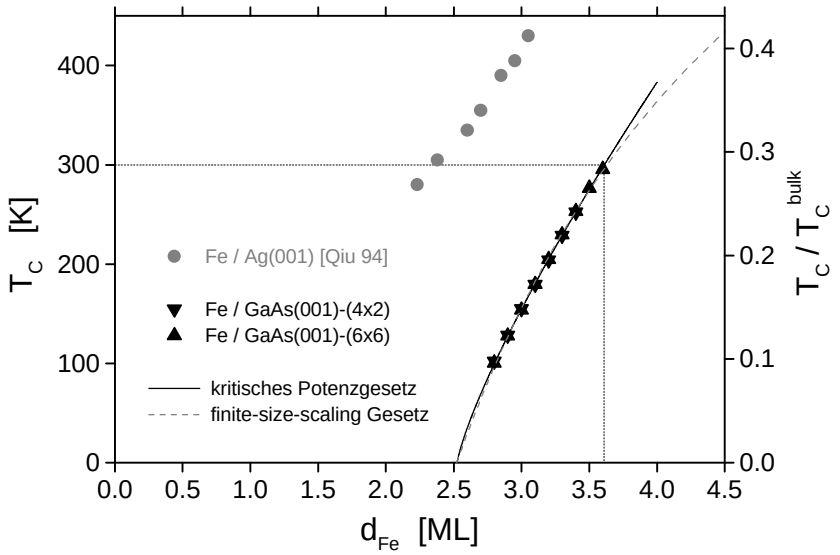

Abb. 4.26 : Curietemperatur T_C als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe}, für Fe auf (4x2)- und (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberflächen. Als optische Leitlinien sind Kurven eingezeichnet, welche sich aus Anpassungen von weiter unten im Text diskutierten Potenzgesetzen ergeben. Zum Vergleich wurden außerdem Literaturdaten für Fe-Schichten auf Ag(001)-Substraten aufgetragen [Qiu 94].

Für eine Fe-Stufenkeilschicht auf GaAs(001)-(6x6) wurden die Curietemperaturen in völlig analoger Weise ermittelt. Interessanterweise stimmen diese Daten außerordentlich gut mit den für Fe auf GaAs(001)-(4x2) erhaltenen überein (vgl. Abb. 4.26). Dies ist recht erstaunlich, da man intuitiv auf Grund der deutlich unterschiedlichen Strukturen von (4x2)- und (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberflächen ein unterschiedliches Fe-Wachstum erwarten könnte.

Deutungsversuch im Rahmen eines „finite-size-scaling"-Modells

Die Abhängigkeit der Curietemperatur T_C von der Dicke d ferromagnetischer Schichten wurde bisher in der Literatur fast ausschließlich im Rahmen eines von G.A.T. Allan erstmals formulierten *„finite-size-scaling" Modells* interpretiert [Allan 70]. Zur Anpassung der Daten wird dabei folgende Formel benutzt:

$$1-\frac{T_C(d)}{T_C(\infty)}=\left(\frac{d}{\xi_0}\right)^{-\frac{1}{\nu}}$$

welche sich auch in der Form

$$\log\left(d/ML\right)=\log\left(\xi_0/ML\right)-\nu\cdot\log\left(1-\frac{T_C(d)}{T_C(\infty)}\right)$$

schreiben läßt. Dabei bedeutet $T_C(\infty)$ die Curietemperatur des Massivmaterials, ν den kritischen Exponenten und ξ_0 die kritische Amplitude des kritischen Potenzgesetzes der Korrelationslänge (vgl. Seite 11).

In Abb. 4.27 sind die für Fe auf GaAs(001) erhaltenen Meßdaten als $\log_{10}(d_{Fe}/ML)$ gegen $\log_{10}[1 - T_C(d_{Fe})/T_C(\infty)]$ aufgetragen, wobei der für bcc-Fe bekannte Massivmaterialwert $T_C(\infty) = 1043$ K eingesetzt wurde. Der Verlauf läßt sich recht gut mit einer Geraden anpassen. Aus der Steigung der Geraden ergibt sich $\nu = 1.07 \pm 0.01$ und aus dem Achsenabschnitt folgt $\xi_0 = (2.52 \pm 0.01)$ ML.

Im Rahmen eines 2D-Ising-Modells gilt für den kritischen Exponenten ein Wert von $\nu = 1$. Für Fe/GaAs(001) sollte jedoch am ehesten ein 2D-XY-Modell endlicher Ausdehnung zutreffen (vgl. Seite 82). Leider gibt es bislang keine theoretische Vorhersage für ν im Rahmen eines solchen Modells. Nimmt man jedoch an, daß dieser Wert ebenso wie im Fall des kritischen Exponenten β zwischen dem für das 2D-Ising-Modell und dem für das 3D-Ising-Modell gültigen Wert von $\nu \approx 0.63$ liegt, so ist ein experimenteller Wert von $\nu > 1$ nicht verständlich.

Noch drastischer ist die Diskrepanz zwischen dem experimentellen Befund und der theoretischen Erwartung beim Parameter ξ_0. Für ξ_0 wurde im Rahmen einer Molekularfeldnäherung ein theoretischer Wert von $\xi_0 = {}^1/_3$ ML hergeleitet. Bei Verwendung der etwas besseren Bethe-Näherung ergibt sich $\xi_0 \approx 0.41$ ML [Allan 70]. Ein derart großer Wert wie $\xi_0 \approx 2.5$ ML, welcher für die Interpretation des Verhaltens von Fe auf GaAs(001) angenommen werden müßte, ist also ebenfalls nicht plausibel.

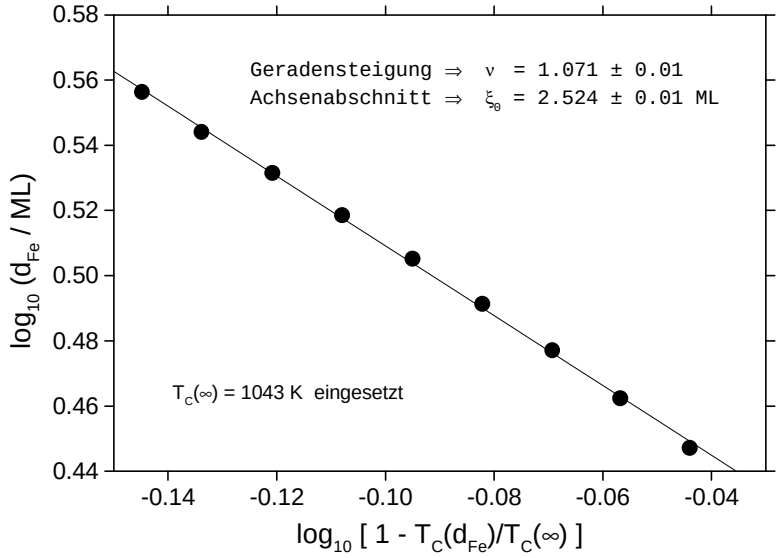

Abb. 4.27 : Daten von Abb. 4.26 in doppellogarithmischer Auftragung gemäß dem „finite-size-scaling“-Gesetz von G.A.T. Allan.

Diese Unstimmigkeiten erklären sich leicht auf Grund der Morphologie der Fe-Schichten. Während bei dem zitierten „finite-size-scaling“-Modell im gesamten Schichtdickenbereich einfach-zusammenhängende ferromagnetische Schichten mit ideal glatten Grenzflächen vorausgesetzt sind, treten beim Wachstum von Fe auf GaAs(001) ebenso wie beim Wachstum auf anderen Substraten anfänglich isolierte Fe-Inseln auf. Das Divergieren der Korrelationslänge bei T_C ist in diesem Fall nicht nur bezüglich der Richtung senkrecht zur Substratoberfläche limitiert, sondern auch parallel zu dieser Ebene. Im nächsten Abschnitt wird dieser Aspekt näher beleuchtet und ein gänzlich anderes Modell für das Einsetzen des Ferromagnetismus vorgeschlagen.

Deutung als Perkolationsphänomen

Die bei einer bestimmten nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe} vorliegende Morphologie wird durch den Schichtwachstumsprozeß bestimmt. Bei Rastertunnelmikroskopie-Experimenten an unterschiedlichen Materialien und bei variabler Temperatur wurde bereits eine ganze Vielfalt von morphologischen Strukturen beobachtet [Hwang 92] [Lagally 93] [Röder 93] [Brune 94] [Röder 95]. Deren Deutung im Rahmen von Modellen des Schichtwachstumsprozesses ist zum Teil eine komplizierte Sache. Im folgenden soll jedoch nur ein recht einfacher, aber häufiger Fall betrachtet werden. Es wird angenommen, daß im Zuge einer fortgesetzten Fe-Deposition zunächst runde Inseln entstehen, deren Durchmesser kontinuierlich zunimmt. Schließlich werden sich benachbarte Inseln berühren und miteinander verwachsen (Koaleszenz). Es sei außerdem angenommen, daß innerhalb der Fe-Inseln die atomaren magnetischen Momente ferromagnetisch geordnet sind und die Inseln untereinander nicht magnetisch wechselwirken, solange sie sich nicht berühren.

Da magnetische Meßverfahren wie MOKE oder SQUID-Magnetometrie im allgemeinen über viele Fe-Inseln mitteln, muß nun überlegt werden, wie sich die mittlere Magnetisierung eines Ensembles solcher Inseln verhält. Bei geringen nominellen Bedeckungen ist Superparamagnetismus zu erwarten (vgl. Seite 15 f.). Bei weiter zunehmender Bedeckung sind zwei Fälle zu unterscheiden.

Einerseits ist es denkbar, daß die Blockierungstemperatur der superparamagnetischen Relaxation bei zunehmender Inselausdehnung die für eine unendlich ausgedehnte Schicht entsprechender nomineller Dicke zu erwartende Curietemperatur überschreitet noch bevor benachbarte Inseln zusammenwachsen. Das magnetische Verhalten als Funktion der Temperatur ist dann nicht mehr gut

mit Modellen des Superparamagnetismus zu beschreiben, sondern nimmt mehr und mehr den Charakter eines echten magnetischen Phasenübergangs an.

Andererseits kann das Zusammenwachsen benachbarter Inseln in bestimmten Fällen auch schon auftreten bevor die Ausdehnung der Inseln mit einer entsprechend hohen Blockierungstemperatur verbunden ist. Durch die Koaleszenz wird die Ausdehnung der Aggregate plötzlich vervielfacht, wodurch die Blockierungstemperatur stark zunimmt und wiederum ein Übergang zu ferromagnetischem Verhalten stattfindet. Sobald sich ein quasi-unendlich ausgedehntes Netzwerk von Fe gebildet hat, kann man von echtem Ferromagnetismus sprechen. Der Prozeß der Bildung dieses Netzwerkes beinhaltet ein magnetisches Perkolationsphänomen, denn bei der Berührung von Fe-Inseln setzen direkte Austauschkopplungen abrupt ein.

Für Co auf Cu(001) wurden solche Phänomene bereits berichtet [Bovensiepen 99]. Schon bei nominellen Co-Bedeckungen d_{Co} unterhalb der Schwelle der morphologischen Perkolation, d.h. für ein Ensemble getrennter Inseln, wird ein Verhalten beobachtet, welches sich im Experiment nicht von einem magnetischen Phasenübergang unterscheidet. Die Curietemperatur steigt mit d_{Co} kontinuierlich bis auf 200 K an. Bei $d_{Co} \approx 1.8$ ML macht sie einen Sprung auf 300 K, was die Autoren mit einem Perkolationsphänomen während der Koaleszenz der Co-Inseln in Verbindung bringen.

Für Fe auf GaAs(001) zeigen STM-Bilder, daß die Fe-Inseln eine Fläche von $(1.6\ \text{nm})^2$ nicht überschreiten bevor sie miteinander verwachsen (vgl. Seite 69 f.). Bei dieser Ausdehnung beträgt die Blockierungstemperatur nur 0.16 K (vgl. Seite 75). Ein Anstieg der Curietemperatur auf Werte von $T_C > 0.16$ K setzt also das Zusammenwachsen von Fe-Inseln voraus. Daher kann man annehmen, daß bei Fe auf GaAs(001) das Einsetzen des Ferromagnetismus unmittelbar mit einem Perkolationsphänomen verbunden ist.

In der Theorie der Perkolationsphänomene werden verschiedene Modelle diskutiert (vgl. Seite 15). Im vorliegenden Fall sollte ein „bond"-Perkolationsmodell gegenüber einem „site"-Perkolationsmodell besser geeignet sein, denn nach STM-Daten stellt sich bereits während der Deposition der ersten 0.5 ML Fe, d.h. vor dem Einsetzen der Koaleszenz, eine bestimmte Inseldichte ein, welche im weiteren Verlauf des Schichtwachstums nicht mehr zunimmt. Es ist also naheliegend, ein quadratisches Gitter von magnetischen Dipolen zu betrachten, welche die magnetischen Gesamtmomente der Fe-Inseln repräsentieren, wobei direkte Austauschkopplungen im Prinzip zwischen beliebigen Paaren von nächsten Nachbarn möglich sind, aber nur ein Bruchteil p der Paare wirklich gekoppelt ist ($0 \le p \le 1$). Die gekoppelten Paare seien zufällig verteilt und die Kopplungsstärke soll in erster Näherung als unabhängig vom Perkolationsparameter p angenommen werden. Es ist unmittelbar klar, daß p mit d_{Fe} monoton ansteigt. Bei einem bestimmten kritischen Wert $p = p_C$ tritt ein unendlich ausgedehntes zweidimensionales Netzwerk von austauschgekoppelten magnetischen Dipolen auf. Ein solches Netzwerk ist ein Ferromagnet mit einer bestimmten Curietemperatur T_C, zumindest wenn eine magnetische Anisotropie vorliegt, welche das Mermin-Wagner-Theorem (vgl. Seite 11) überwindet. Auf die Bedeutung der magnetischen Anisotropie für das Auftreten von Ferromagnetismus bei Fe auf GaAs(001) wird im übernächsten Abschnitt genauer eingegangen (Seite 95 ff.).

Da die Entstehung des Netzwerks als Funktion des Perkolationsparameters p ein Phasenübergangsphänomen ist, sollte die Landau-Theorie anwendbar sein, und T_C sollte für $p \ge p_C$ einem Potenzgesetz der Form

$$T_C(p) \propto (p/p_C - 1)^{\phi}$$

folgen [Stinchcombe 83]. Der dabei auftretende kritische Exponent ϕ wird als *„crossover"-Exponent* bezeichnet.

Leider ist der Zusammenhang zwischen der nominellen Schichtdicke d_{Fe} und dem Perkolationsparameter p nicht *a priori* klar. Die Funktion $p(d_{Fe})$ wird durch die Details des Fe-Wachstumsprozesses festgelegt. STM-Untersuchungen sollten zwar im Prinzip diesen Zusammenhang aufklären können, dies ist jedoch schwierig und entsprechende Experimente von R. Moosbühler sind noch nicht abgeschlossen. Daher ist eine genaue experimentelle Bestimmung des kritischen Exponenten ϕ derzeit noch nicht möglich. Für ein zweidimensionales quadratisches Gitter sagt die Perkolationstheorie einen kritischen Perkolationsparameter $p_C = 0.5$ vorher und ein kritischer Exponent $\phi = 0.69$ wird im Rahmen eines zweidimensionalen XY-Modells erwartet [Stinchcombe 83].

Dem Vorgehen von Freeland et al. [Freeland 99] folgend, wird nun im Sinne einer ersten Näherung angenommen, daß p proportional zu d_{Fe} ist. Somit wird ein „naives" Potenzgesetz der Form

$$T_C(d_{Fe}) \propto (d_{Fe}/d_{Fe,C} - 1)^{\phi}$$

an die experimentellen Daten numerisch angepaßt. Dabei ergibt sich für den kritischen Exponenten ein Wert von $\phi = 0.837 \pm 0.003$, was zumindest größenordnungsmäßig mit der theoretischen Erwartung übereinstimmt. Für die kritische Schichtdicke erhält man $d_{Fe,C} = (2.53 \pm 0.02)$ ML. In Abb. 4.26 ist eine diesem Potenzgesetz entsprechende Kurve zusammen mit den experimentellen Daten auf einer linearen Skala dargestellt. Abb. 4.28 zeigt eine doppellogarithmische Auftragung der Meßdaten, sowie eine Anpassungsgerade.

Die kritische nominelle Fe-Bedeckung für das Einsetzen des Ferromagnetismus scheint also bei

$$d_{Fe,C} \approx 2.5 \text{ ML}$$

zu liegen. Dies ist deutlich mehr als bei Fe, das auf metallischen Einkristallsubstraten, ebenfalls bei Zimmertemperatur, aufgewachsen ist, wie z.B. der Vergleich mit den in Abb. 4.26 eingezeichneten Literaturdaten zu Fe/Ag(001) zeigt [Qiu 94]. Die Ursache wird in dem bei Fe auf GaAs(001) stärker dreidimensionalen Wachstumsmodus zu suchen sein, im Vergleich zu dem weitgehend lagenweisen Wachstum auf Metall-Einkristallen. Daher werden sich bei Fe auf metallischen Substraten im Vergleich zu Fe auf GaAs die Inselränder schon bei geringeren nominellen Bedeckungen berühren.

Es sei außerdem darauf hingewiesen, daß die Aussage $d_{Fe,C} \approx 2.5$ ML nicht gleichbedeutend ist mit der Existenz von 2.5 „magnetisch toten“ Lagen. Zwar zeigt eine Einzelschicht von 2.5 ML nomineller Fe-Dicke bei einer Temperatur von T = 10 K keine Remanenz und ist daher wohl tatsächlich nicht *ferro*magnetisch. Bringt man dieselbe Probe jedoch bei tiefen Temperaturen (T = 10 K) in ein hinreichend starkes Magnetfeld (H = 10 kOe), so lassen sich offenbar die atomaren magnetischen Momente parallel ausrichten und es ergibt sich ein mittleres magnetisches Moment von 2.0 μ_B/Atom (vgl. Abb. 4.33). Die atomaren magnetischen Momente sind also bei $d_{Fe} = 2.5$ ML nur unwesentlich gegenüber dem Massivmaterialwert von 2.2 μ_B/Atom vermindert.

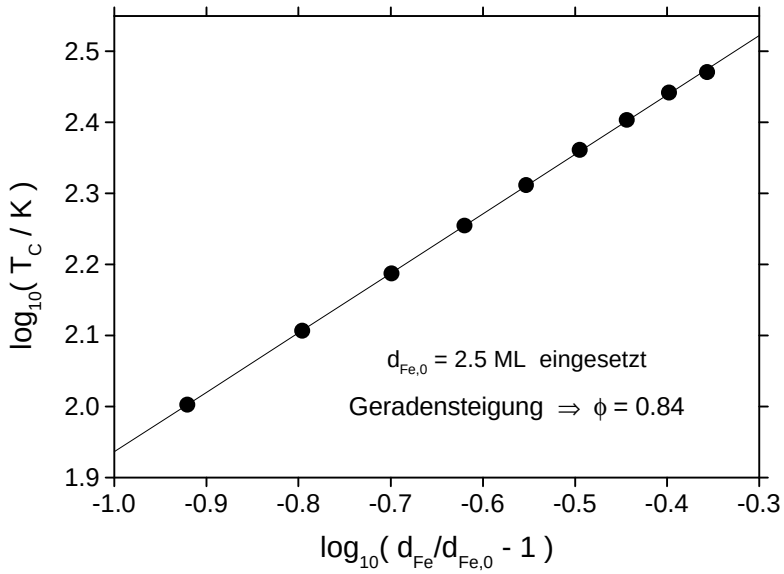

Abb. 4.28 : Daten von Abb. 4.26 in doppellogarithmischer Auftragung gemäß dem „naiven“ Potenzgesetz des Perkolationsmodells.

Der Anteil des ferromagnetischen Eisens als Funktion der nominellen Fe-Bedekkung

Das Perkolationsmodell besagt, daß für einen bestimmten Perkolationsparameter p ein Bruchteil 1-p der prinzipiell möglichen Kopplungen nicht hergestellt ist. Deshalb wird es für $p_C < p < 1$, d.h. wenn ein unendlich ausgedehntes Netzwerk existiert, einen von Null verschiedenen Anteil c von Fe-Inseln geben, welche nicht in dieses Netzwerk eingebunden sind. Diese isolierten Fe-Inseln sollten einen nicht-ferromagnetischen Beitrag zum magnetischen Gesamtsignal liefern. Ein solcher nicht-

ferromagnetischer Beitrag tritt tatsächlich auf, wie im folgenden gezeigt wird. Dazu seien noch einmal die in Abb. 4.22 a dargestellten Magnetisierungskurven betrachtet, welche an einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) mit einem SQUID-Magnetometer bei verschiedenen Temperaturen gemessen wurden.

Das remanente magnetische Moment $m_R := m(H = 0)$ der Probe wird ausschließlich von den Fe-Atomen verursacht, welche sich in einer ferromagnetischen Phase befinden, welche also zum unendlich ausgedehnten Netzwerk gehören. Da man davon ausgehen kann, daß eine Domänenaufspaltung im remanenten Zustand nicht vorliegt (vgl. Seiten 72 und 76 f.), wird dieses remanente Moment proportional sein zur Anzahl dieser Fe-Atome. Demgegenüber sollte sich das magnetische Sättigungsmoment in einem starken externen Magnetfeld, $m_S := m(H = 25\ kOe)$, zusammensetzen aus Beiträgen der zur ferromagnetischen und zur nicht-ferromagnetischen Phase gehörenden Fe-Atome. Bei tiefen Temperaturen ($T << T_C$ bzw. $T \rightarrow 0$) wird der Beitrag des ferromagnetischen Fe zu m_S gerade so groß sein wie m_R, da in diesem Fall der Paraeffekt vernachlässigbar ist. Außerdem sollten die zur nicht-ferromagnetischen Phase gehörenden Fe-Atome zu m_S mit gleichem Gewicht beitragen wie die Fe-Atome der ferromagnetischen Phase, da sie das gleiche mittlere atomare magnetische Moment besitzen und sich das nicht-ferromagnetische Fe in externen Magnetfeldern von H > 10 kOe magnetisch sättigen läßt (vgl. Seiten 97 f. und Abschnitt 4.2.3). Das Verhältnis der beiden magnetischen Momente m_R und m_S liefert daher für $T \rightarrow 0$ den relativen Anteil des zur ferromagnetischen Phase gehörigen Eisens an der gesamten magnetischen Fe-Substanzmenge in der Probe:

$$R_{T\rightarrow 0} \quad := \quad m_{R,T\rightarrow 0} \,/\, m_{S,T\rightarrow 0} \quad = \quad 1 - c$$

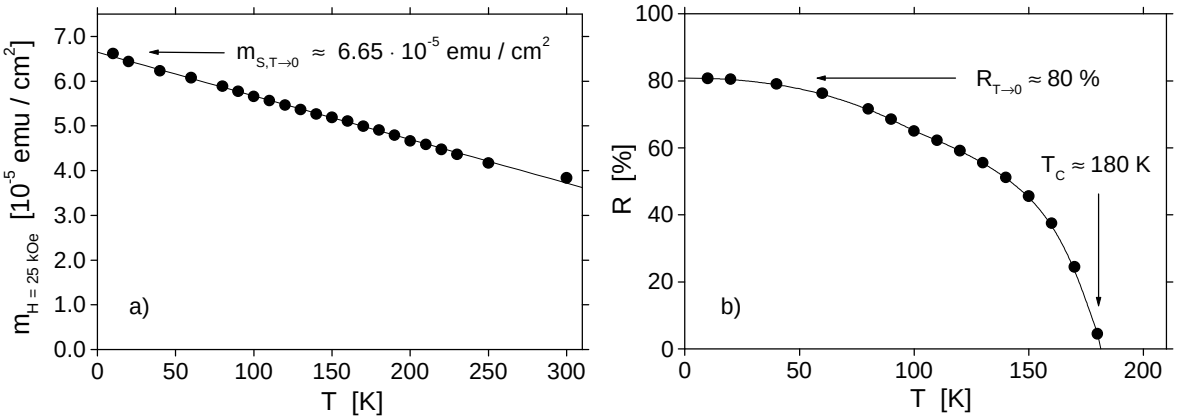

Abb. 4.29 : Auswertung der bereits in Abb. 4.22 a vorgestellten SQUID-Magnetometriedaten einer Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2): a) magnetisches Sättigungsmoment in einem externen Feld von H = 25 kOe als Funktion der Temperatur; b) Remanenz R, d.h. remanentes magnetisches Moment m_R, normiert auf das aus a) folgende Sättigungsmoment bei tiefen Temperaturen, $m_{S,T\rightarrow 0}$, als Funktion der Temperatur.

Aus Abb. 4.29 a ergibt sich ein Wert von $m_{S,T\rightarrow 0} = 6.65 \cdot 10^{-5}$ Gcm^3 pro cm^2 Probenfläche. In Abb. 4.29 b ist $R := m_R / m_{S,T\rightarrow 0}$ gegen die Temperatur T aufgetragen. Für $T \rightarrow 0$ wird ein Wert von $R_{T\rightarrow 0} \approx 80$ % erreicht. Daraus ist zu schließen, daß sich c = 20 % des magnetischen Materials in einem nicht-ferromagnetischen Zustand befindet.

Der Anteil 1-c des ferromagnetischen Eisens sollte unmittelbar mit dem Perkolationsparameter p zusammenhängen. Genauer gesagt sollte 1-c und damit auch $R_{T\rightarrow 0}$ für $p \leq p_C$ verschwinden, für $p > p_C$ monoton mit p ansteigen und für $p \rightarrow 1$ den Wert 100 % erreichen. Um dies zu überprüfen, wurden Messungen an mehreren Proben mit verschiedenen Fe-Bedeckungen durchgeführt und jeweils $R_{T\rightarrow 0}$ bestimmt. Diese Werte sind in Abb. 4.30 gegen d_{Fe} aufgetragen. Es ist offensichtlich, daß wie erwartet für $d_{Fe} \rightarrow d_{Fe,C} = 2.5$ ML (d.h. für $p \rightarrow p_C$) nicht nur T_C kontinuierlich gegen Null geht, sondern auch der Anteil des bei $T \rightarrow 0$ ferromagnetischen Eisens. Diese Beobachtung gibt eine eindrucksvolle Bestätigung für das Perkolationsmodell. Vergleichbare experimentelle Untersuchungen an perkolierenden dünnen magnetischen Schichten sind nach dem Kenntnisstand des Autors bisher in der Literatur nicht beschrieben.

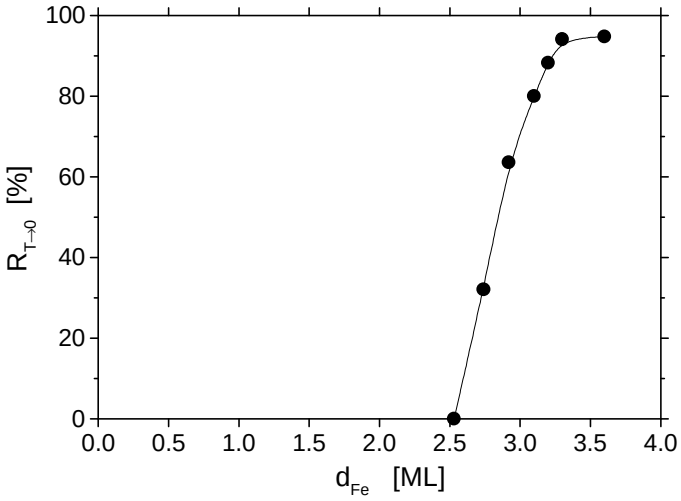

Abb. 4.30 : Remanenz R, extrapoliert auf T® 0, als Funktion der nominellen Fe-Bedekkung d_{Fe} auf GaAs(001). Diese Größe wird als relativer Anteil des ferromagnetischen Eisens am gesamten magnetischen Eisen interpretiert.

Für den Anteil des unendlichen Netzes als Funktion des Perkolationsparameters p sollte das folgende kritische Potenzgesetz gelten (vgl. Seite 16):

$$1 - c \;=\; M(p) \;\propto\; (p / p_C - 1)^{\beta_p} \quad \text{mit} \quad \beta_p = 5/36 \approx 0.139$$

Eine Auswertung des kritischen Exponenten β_p aus den experimentellen Daten macht allerdings derzeit in Anbetracht des nicht genau bekannten Zusammenhangs zwischen p und d_{Fe} kaum Sinn.

Da $R_{T\to 0}$ zwischen d_{Fe} = 3.3 ML und 3.6 ML nicht mehr wesentlich ansteigt kann man vermuten, daß die Koaleszenz bei d_{Fe} = 3.3 ML bereits abgeschlossen ist. $R_{T\to 0}$ erreicht einen maximalen Wert von ≈ 94 %. Offenbar gehören also ≈ 6 %, d.h. ca. 0.2 ML des Fe zu einer weiteren nicht-ferromagnetischen Phase. Da diese Menge an nicht-ferromagnetischem Fe unabhängig von der Schichtdicke zu sein scheint, liegt es nahe anzunehmen, daß dieses Material an der Fe/GaAs- oder der Fe/Au-Grenzfläche lokalisiert ist. Der Grund für die Abwesenheit einer ferromagnetischen Ordnung in diesem Fe könnte eine gewisse Durchmischung von Fe mit Ga bzw. As oder mit dem Au der Abdeckschicht sein.

Wenn im Bereich d_{Fe} > 3.3 ML die Koaleszenz tatsächlich abgeschlossen ist, dann kann die Änderung der Curietemperatur in diesem Schichtdickenbereich nicht mehr im Rahmen eines Perkolationsmodells beschrieben werden. Statt dessen sollte hier eher ein „finite-size-scaling“-Modell geeignet sein (vgl. Seite 90 f.). Es wird aber einen fließenden Übergang zwischen diesen Modellen geben, denn man beobachtet in Verlauf von $T_C(d_{Fe})$ bei d_{Fe} = 3.3 ML keine Trendänderung (Abb. 4.26).

Die magnetische Anisotropie als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung

In Abschnitt 2.6 auf Seite 16 wurde darauf hingewiesen, daß in der Literatur in einzelnen Fällen das Einsetzen des Ferromagnetismus in dünnen Schichten auf das Einsetzen einer magnetischen Anisotropie zurückgeführt wurde. Daher ist es interessant, zu betrachten, wie sich bei Fe auf GaAs(001) die magnetische Anisotropie beim Einsetzen des Ferromagnetismus verhält.

Brockmann hat für Fe-Schichten auf GaAs(001) im Schichtdickenbereich $d_{Fe} \geq 4$ ML die magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene bei Zimmertemperatur (T ≈ 300 K) im Detail untersucht [Brockmann 00]. Dabei ergab sich, daß im Wesentlichen ein *uniaxialer* Beitrag (vgl. Seite 7) und ein *kubischer* Beitrag (vgl. Seite 8) vorliegt. Da bei Schichtdicken d_{Fe} < 10 ML die Anisotropieenergiedichte des uniaxialen Beitrags die des kubischen Beitrags deutlich überwiegt, wird im folgenden der kubische Beitrag außer Acht gelassen. Die leichte Achse der dominierenden uniaxialen magnetischen Anisotropie ist innerhalb der Schichtebene parallel zur [110]-Richtung orientiert.

Wie auf Seite 8 erläutert, kann aus der Abhängigkeit der effektiven Anisotropiekonstanten K_u^{eff} von der nominellen Schichtdicke d_{Fe} auf den Volumenbeitrag und den Grenzflächenbeitrag zur uniaxialen magnetischen Anisotropie geschlossen werden. Dazu hat Brockmann die Größe $d_{Fe} \cdot K_u^{eff}$ gegen d_{Fe} aufgetragen und mit dem erwarteten Zusammenhang

$$d_{Fe} \cdot K_u^{eff} = d_{Fe} \cdot K_u^{V} + K_u^{S}$$

verglichen. Im Schichtdickenbereich $d_{Fe} > 10$ ML erwies sich $d_{Fe} \cdot K_u^{eff}$ als unabhängig von d_{Fe}, d.h. $K_u^{V} = 0$. Dies zeigt, daß es sich um eine reine Grenzflächenanisotropie handelt. Die Ursache für diese magnetische Anisotropie ist mit großer Wahrscheinlichkeit an der Fe/GaAs-Grenzfläche lokalisiert, da die Kristallstruktur von GaAs eine uniaxiale strukturelle Anisotropie besitzt (vgl. Seite 53), während das als Abdeckmaterial verwendete Au bei epitaktischem Wachstum mit (001)-Orientierung keine uniaxiale strukturelle Anisotropie aufweisen wird.

In Abb. 4.31 erkennt man, daß im Schichtdickenbereich zwischen $d_{Fe} = 4$ ML und $d_{Fe} = 10$ ML die Größe $d_{Fe} \cdot K_u^{eff}$, d.h. die Stärke der uniaxialen magnetischen Grenzflächenanisotropie, bei abnehmender Schichtdicke abnimmt. Brockmann konnte im Rahmen seiner nur bei Zimmertemperatur durchgeführten Experimente nicht entscheiden, ob dies ausschließlich durch die Annäherung der Curietemperatur an die relativ hohe Meßtemperatur ($T \approx 300$ K) zu erklären ist, oder ob die uniaxiale magnetische Grenzflächenanisotropie auch im Grundzustand dickenabhängig ist.

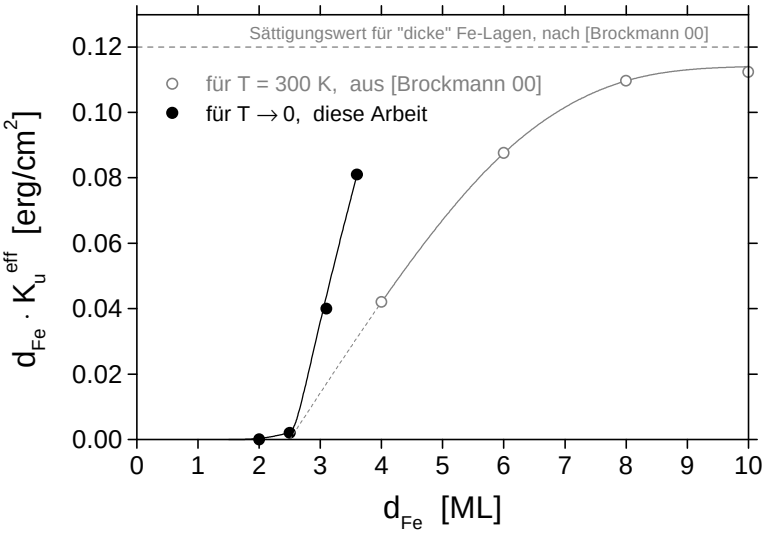

Abb. 4.31 : Die Größe $d_{Fe} \cdot K_u^{eff}$, welche ein Maß für die Stärke der uniaxialen magnetischen Grenzflächenanisotropie darstellen sollte, aufgetragen gegen die nominelle Fe-Bedeckung d_{Fe} eines GaAs(001)-Substrates.

Um dies zu klären, muß die Anisotropiekonstante für T=0 bestimmt werden. Für eine Probe von 3.1 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) wurde dies bereits auf Seite 87 durch Extrapolation auf $T \rightarrow 0$ durchgeführt (vgl. Abb. 4.24). Es ergibt sich ein Wert von $d_{Fe} \cdot K_u^{eff} = K_u^{S} \approx 0.04$ erg/cm^2. Dies sind nur ca. 30 % des von Brockmann für „dicke“ Fe-Lagen ($d_{Fe} > 10$ ML) bei Zimmertemperatur gefundenen Sättigungswerts von $K_u^{S} \approx 0.12$ erg/cm^2 (vgl. Abb. 4.31). Die Stärke der uniaxialen magnetischen Grenzflächenanisotropie ist also bei $d_{Fe} = 3.1$ ML tatsächlich auch im Grundzustand vermindert gegenüber dem Fall dickerer Schichten.

Ein Grund dafür könnte sein, daß wegen des nicht ideal lagenweisen Wachstums das Fe erst für $d_{Fe} >> 3.1$ ML die gesamte Substratoberfläche bedeckt, während für $d_{Fe} = 3.1$ ML die Fe-Schicht noch „Löcher“ aufweist. Die Grenzflächenanisotropieenergie sollte nämlich proportional sein zum Flächeninhalt der *tatsächlichen* Grenzfläche, während bei der Herleitung der obigen Formel für den Zusammenhang zwischen K_u^{eff} und K_u^{V} bzw. K_u^{S} der Flächeninhalt der Grenzfläche mit der Substratfläche gleichgesetzt wurde (vgl. Seite 8). Es wäre allerdings auch denkbar, daß elastische Verspannungen und damit magnetostriktive Beiträge zur magnetischen Anisotropie abhängig sind von d_{Fe}.

Neben dem Datenpunkt für d_{Fe} = 3.1 ML und T→0 sind in Abb. 4.31 auch die Ergebnisse von Messungen für d_{Fe} = 2.0 ML, d_{Fe} = 2.5 ML und d_{Fe} = 3.6 ML bei T = 10 K eingezeichnet, welche im Wesentlichen die für T→0 zu erwartenden Werte der Anisotropiekonstanten K_u^{eff} repräsentieren. Um den Trend zu verdeutlichen, sind diese Meßpunkte ebenso wie die Meßpunkte von Brockmann durch eine Hilfslinie verbunden. Sowohl die bei Zimmertemperatur gewonnenen Daten als auch die bei tiefen Temperaturen, d.h. nahe des Grundzustandes des magnetischen Systems gemessenen Werte streben für $d_{Fe} \rightarrow 2.5$ ML auf den Wert Null zu. Da für $d_{Fe} \rightarrow 2.5$ ML der Anteil der von Fe bedeckten Substratoberfläche sicher nicht gegen Null geht, reicht das bereits angeführte Argument zur Deutung dieser Tatsache nicht aus.

Die uniaxiale magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene wird interessanterweise bei genau derselben nominellen Fe-Bedeckung von Null verschieden, bei welcher auch die Curietemperatur von Null verschieden wird (vgl. Seite 89 ff.). Offenbar ist im vorliegenden Fall das Einsetzen des Ferromagnetismus mit dem Einsetzen einer magnetischen Anisotropie gekoppelt. Es stellt sich nun die Frage, ob das Auftreten einer magnetischen Anisotropie die *Ursache* oder eine *Folge* des Ferromagnetismus ist, bzw. ob es eine gemeinsame Ursache für beide Phänomene gibt.

Da die magnetische Anisotropie für Temperaturen $T > T_C$ nicht verschwindet, wie auf den Seiten 84 ff. gezeigt ist, kann der Ferromagnetismus als Ursache für die magnetische Anisotropie ausgeschlossen werden. Vor dem Hintergrund des Mermin-Wagner-Theorems [Mermin 66] (vgl. Seiten 11 und 16) könnte man aber argumentieren, daß die magnetische Anisotropie eine Ursache des Ferromagnetismus ist, denn in einem zweidimensionalen magnetischen System sollte die Existenz von direkten Austauschwechselwirkungen alleine nicht ausreichen, um bei Temperaturen T > 0 eine spontane Magnetisierung hervorzurufen. Erst durch die Existenz einer magnetischen Anisotropie und/oder von langreichweitigen magnetischen Kopplungen ist bei von Null verschiedenen Temperaturen Ferromagnetismus möglich. Daher kann man nicht ausschließen, daß die Koaleszenz der Fe-Inseln und damit die Perkolation der direkten Austauschkopplungen zwischen den Inseln schon bei $d_{Fe} < 2.5$ ML erfolgt, aber die langreichweitige magnetische Ordnung erst einsetzt, sobald eine magnetische Anisotropie vorliegt. Es bleibt aber in diesem Falle die Frage nach der Ursache, welche gerade bei $d_{Fe} = 2.5$ ML zum Einsetzen der magnetischen Anisotropie führt.

Möglicherweise kommt es bei der Koaleszenz der Fe-Inseln nicht nur zum Auftreten direkter Austauschkopplungen sondern auch zu einer Umwandlung der atomaren Struktur von einem weitgehend amorphen zu einem kristallinen Zustand, d.h. zu einem Übergang von einer isotropen zu einer anisotropen Struktur. Dies liegt jedenfalls auf Grund der RHEED-Ergebnisse nahe (vgl. Seite 68 ff.). Wenn das so ist, dann würde das Einsetzen der magnetischen Anisotropie und das Einsetzen von direkten Austauschkopplungen zwischen den Inseln „Hand in Hand“ erfolgen und gemeinsam das Einsetzen des Ferromagnetismus bewirken.

Bedenkt man, daß nach Berechnungen von Bruno die Anisotropiekonstante *logarithmisch* in T_C eingeht, während die Austauschkopplung *linear* beiträgt [Bruno 92] (vgl. Seite 13), so sollte die magnetische Ordnung durch die magnetische Anisotropie im Wesentlichen nur „getriggert“ werden, während der Wert der Curietemperatur primär durch die Stärke der Austauschkopplung bestimmt ist. Somit kann man erwarten, daß die Abhängigkeit der Curietemperatur von der nominellen Fe-Bedeckung durchaus in guter Näherung mit dem auf Seite 91 ff. erläuterten Perkolationsmodell zu beschreiben ist.

Das atomare magnetische Grundzustandsmoment als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung

Lange Zeit galt es als unvermeidlich, daß beim Wachstum von Fe auf GaAs(001) mehrere „magnetisch tote“ Atomlagen entstehen. In Einzelfällen wurde sogar von mehreren zehn unmagnetischen Fe-Atomlagen an der Grenzfläche zu GaAs(001) berichtet [Filipe 97]. Solche Berichte beziehen sich allerdings immer auf GaAs-Substrate, welche nur durch Tempern im Vakuum, aber nicht zusätzlich durch Ionenätzen vorbehandelt wurden. Solche Substrate weisen eine beträchtliche, sehr kurzwellige Oberflächenrauhigkeit auf (vgl. Abb. 4.2 auf Seite 56). Außerdem kann es wegen der größeren Flüchtigkeit von As zu einer Ansammlung von flüssigem Ga an der Oberfläche gekommen sein. Die wahrscheinlichste Ursache für die unmagnetischen Fe-Lagen ist eine Durchmischung von Fe mit Ga und As bei der gewählten Wachstumstemperatur von 175 °C.

M. Zölfl und M. Brockmann konnten zeigen, daß das mittlere atomare magnetische Grundzustandsmoment von Fe-Schichten, welche bei Zimmertemperatur auf ionengeätzten GaAs(001)-

Substraten aufgewachsen sind, für nominelle Schichtdicken $d_{Fe} \geq 5$ ML nicht signifikant gegenüber dem Massivmaterialwert von 2.2 μ_B reduziert ist [Zölfl 97a] [Zölfl 97b] (vgl. Seite 2). Trotzdem ist es nicht selbstverständlich, daß auch wesentlich dünnere Fe-Lagen das volle Massivmaterialmoment aufweisen. Insbesondere stellt sich die Frage, wie sich die atomaren magnetischen Grundzustandsmomente beim Einsetzen des Ferromagnetismus verhalten.

Für verschiedene Proben im Schichtdickenbereich d_{Fe} = 2.0 ... 3.6 ML wurde bei mehreren Temperaturen zwischen 10 K und 100 K die Feldabhängigkeit des magnetischen Moments mittels SQUID-Magnetometrie gemessen (vgl. z.B. Abb. 4.22 a und Abb. 4.35). In allen Fällen ist bei externen Magnetfeldern H > 10 kOe eine magnetische Sättigung zu erkennen. Die Sättigungsmomente im Feld H = 25 kOe wurden jeweils analog zu Abb. 4.29 a gegen die Temperatur aufgetragen. Durch Extrapolation auf $T \rightarrow 0$ und Division durch die aus der nominellen Schichtdicke und der Massivmaterial-Gitterkonstanten bekannte Anzahl von Fe-Atomen pro Flächeneinheit, erhält man daraus die mittleren atomaren magnetischen Grundzustandsmomente. Diese Werte sind in Abb. 4.32 gegen die nominelle Fe-Bedeckung aufgetragen.

Die durch die Fehlerbalken ausgedrückte Unsicherheit der Meßwerte von 6.5 % ergibt sich aus folgenden Gründen: 1) Die Absolutkalibrierung des SQUID-Magnetometers trägt mit maximal 1 % zum Gesamtfehler bei, da der gemessene diamagnetische Beitrag des Substrats um nicht mehr als 1 % vom Literaturwert abweicht. 2) Die Schichtfläche ist mit einem Fehler von weniger als 0.5 % bekannt, da die Proben mit Hilfe des auf Seite 71 beschriebenen Präzisionsritzgerätes gespalten wurden. 3) Die nominelle Dicke der Fe-Schicht ist durch Verwendung der auf den Seiten 23 ff. und 66 ff. beschriebenen Schwingquarz-Mikrowaagen mit einem Absolutfehler von ca. 5 % bekannt.

Es zeigt sich für nominelle Schichtdicken von $d_{Fe} \geq 2.5$ ML ein mittleres magnetisches Grundzustandsmoment pro Atom von ≈ 2.0 μ_B. Dies kommt dem Massivmaterialwert von 2.2 μ_B für bcc-Fe sehr nahe. Dafür scheint entscheidend zu sein, daß das bei relativ hoher Temperatur ($T \approx 600$ °C) durchgeführte Argon-Ionenätzen die Oberflächenrauhigkeit des GaAs(001)-Substrats sehr stark vermindert hat, so daß zu Beginn des Fe-Wachstums große atomar glatte Terrassen vorliegen (vgl. Abb. 4.4 auf Seite 59). Eine gewisse Rolle spielt wohl außerdem, daß die Oberflächenatomlage des Substrats nach dieser Vorbehandlung As-verarmt ist und das Fe bei Zimmertemperatur aufgedampft wurde, statt bei der früher meist verwendeten Temperatur von 175 °C.

Wie die Fehlerbalken in Abb. 4.32 zeigen, ist das mittlere atomare Grundzustandsmoment im Schichtdickenbereich d_{Fe} = 2.5 ... 3.6 ML doch signifikant gegenüber dem Massivmaterialwert verringert. Wenn man annimmt, daß die Fe-Atome der Grenzflächen-Atomlage zur Au-Abdeckschicht ein magnetisches Moment von 2.9 μ_B tragen (vgl. Seite 7) und die sonstigen magnetischen Fe-Atome ein Moment von 2.2 μ_B besitzen, dann entspricht das gemessene mittlere magnetische Moment von 2.0 μ_B/Atom einer nominellen Zahl von ca. 0.6 „magnetisch toten Atomlagen“. Dies ist mehr als von Zölfl et al. bei dickeren Fe-Schichten ($d_{Fe} \geq 5$ ML) gefunden wurde [Zölfl 97a] [Zölfl 97b]. Möglicherweise gibt es in so dünnen Fe-Lagen eine etwas stärkere Reduktion des mittleren magnetischen Grundzustandsmoments als bei dickeren Schichten. Insbesondere könnte es sein, daß bei so dünnen Fe-Lagen das magnetische Moment der Fe-Atome, welche an die Au-Abdeckschicht angrenzen, weniger als 2.9 μ_B beträgt.

Bei d_{Fe} = 2.0 ML ist das mittlere atomare magnetische Grundzustandsmoment mit 1.3 μ_B/Atom deutlich reduziert gegenüber dem Massivmaterialwert. Dieser Wert entspricht dem für amorphe Fe-Lagen zwischen Yttrium berichteten magnetischen Grundzustandsmoment von (1.4 ± 0.2) μ_B/Atom [Arenholz 92]. Da RHEED-Reflexe des Fe nicht auftreten bevor 2.0 ML Fe auf GaAs(001) abgeschieden sind (vgl. Abb. 4.12 e), ist es denkbar, daß das Fe anfänglich amorph wächst. Dies könnte verursacht sein durch den Fehlpaß zwischen dem Fe und der *rekonstruierten* GaAs(001)-Oberfläche, welcher viel größer ist als der Fehlpaß der Massivmaterial-Gitterkonstanten von Fe und GaAs.

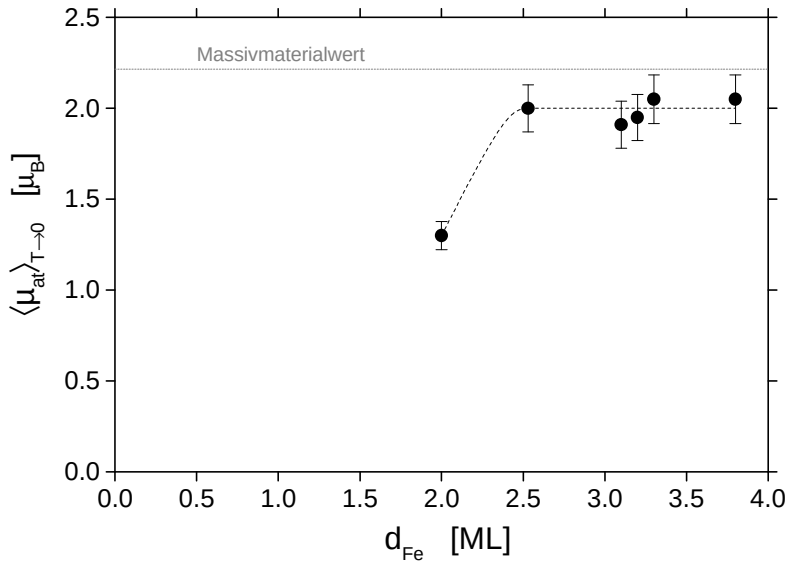

Abb. 4.32 : Mittleres atomares magnetisches Grundzustandsmoment $\langle\mu_{at}\rangle_{T\to 0}$ von Fe-Lagen auf GaAs(001) als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe}.

Da für $d_{Fe} \geq 2.5$ ML das mittlere atomare magnetische Grundzustandsmoment nicht wesentlich geringer ist als das magnetische Moment von massivem kristallinen bcc-Fe, scheint der Übergang vom amorphen zum kristallinen Fe für $d_{Fe} \geq 2.5$ ML bereits abgeschlossen zu sein. Das Einsetzen der uniaxialen magnetischen Anisotropie in der Schichtebene bei $d_{Fe} = 2.5$ ML ist also nicht direkt durch den Übergang des Fe von einer amorphen zu einer kristallinen Struktur zu erklären. Als Ausweg bietet sich an anzunehmen, daß die Strukturumwandlung für $d_{Fe} < 2.5$ ML zunächst nur das Fe betrifft, während die Grenzflächenatomlagen des GaAs noch ungeordnet bleiben. Da es sich bei der diskutierten magnetischen Anisotropie um eine Grenzflächenanisotropie handelt, wird sie dabei noch nicht einsetzen. Bei $d_{Fe} = 2.5$ ML könnte nun im Zuge der Koaleszenz der Fe-Inseln eine Umstrukturierung der Grenzflächenatomlagen des GaAs stattfinden, bei welcher der durch die Rekonstruktion bedingte Fehlpaß abgebaut und eine geordnete Grenzfläche gebildet wird. Mit der Formierung dieser geordneten Grenzfläche wird dann auch die magnetische Grenzflächenanisotropie auftreten.

Es zeigt sich kein Unterschied im magnetischen Moment von Fe auf (4x2)- oder (6x6)-rekonstruiertem GaAs(001). Dies deckt sich gut mit dem bereits erwähnten Befund, daß auch die magnetische Anisotropie und das Phasenübergangsverhalten nicht von der Art der Rekonstruktion der ursprünglichen Substratoberfläche abhängen. Möglicherweise entsteht durch die oben erwähnten Umordnungsprozesse immer die gleiche Fe/GaAs-Grenzfläche, unabhängig von der ursprünglichen Rekonstruktion des GaAs, wie schon von Kneedler et al. vermutet [Kneedler 97]. Die von diesen Autoren beobachtete Segregation von „überschüssigem“ Ga und As an die Oberfläche der wachsenden Fe-Schicht ist ein wichtiger Hinweis darauf.

4.2.3 Das magnetische Verhalten vor dem Einsetzen des Ferromagnetismus

Im Schichtdickenbereich $d_{Fe} \leq 2.5$ ML kann man nach den bisherigen Ausführungen davon ausgehen, daß das Fe in Form von morphologisch getrennten Inseln vorliegt. Innerhalb dieser Inseln wird bei hinreichend tiefen Temperaturen die Austauschkopplung zu einer Parallelstellung der atomaren magnetischen Momente führen, so daß sich jede Insel wie ein einzelnes magnetisches Moment („Superspin“) verhält. Da bei magnetometrischen Messungen immer über makroskopische Dimensionen gemittelt wird, erfaßt man nicht die einzelnen Inseln für sich, sondern das Verhalten eines Ensembles von Inseln.

Nun stellt sich unter anderem die Frage, ob magnetische Kopplungen zwischen den Inseln vernachlässigbar sind oder nicht. Wenn ja, dann sollten Modelle des Superparamagnetismus (vgl. Seite 14) eine gute Beschreibung des magnetischen Verhaltens liefern. Anderenfalls könnten sich bei hinreichend tiefen Temperaturen magnetische Ordnungsphänomene in dem System von Superspins ergeben (z.B. Superferromagnetismus bzw. Superantiferromagnetismus). Um nähere

Einsicht in diese Thematik zu bekommen, wurden zwei Proben näher untersucht, deren nominelle Fe-Bedeckungen 2.5 ML bzw. 2.0 ML betrugen.

Das magnetische Verhalten bei d_{Fe} = 2.5 ML

Eine Schicht mit d_{Fe} = 2.5 ML auf GaAs(001)-(4x2), also nahe bei der vermutlichen Perkolationsschwelle, wurde bei tiefer Temperatur (T = 10 K) mittels SQUID-Magnetometrie untersucht. Abb. 4.33 zeigt, daß die Magnetisierungskurven bzgl. der [110]- und [-110]-Richtungen praktisch identisch sind. Die bei dickeren Fe-Lagen auf GaAs(001) stark ausgeprägte uniaxiale magnetische Anisotropie in der Schichtebene tritt also bei d_{Fe} = 2.5 ML noch nicht auf. Auch die Remanenz ist nicht signifikant von Null verschieden. Der Sättigungswert in Feldern von H > 10 kOe zeigt, daß das mittlere atomare magnetische Moment mit ca. 2.0 μ_B fast den Massivmaterialwert von bcc-Fe (2.2 μ_B) erreicht.

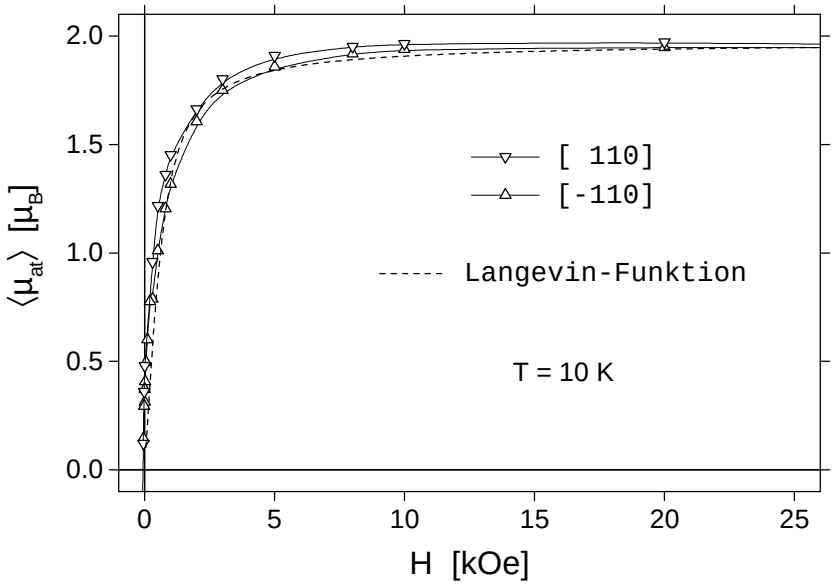

Abb. 4.33 : Komponente des mittleren magnetischen Moments pro Fe-Atom bzgl. der Meßrichtungen [110] und [-110] als Funktion des externen Magnetfeldes H bei Temperatur T = 10 K, für 2.5 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2). Zusätzlich ist eine an die experimentellen Daten numerisch angepaßte Langevin-Funktion eingezeichnet.

Der Verlauf läßt sich mit einer Langevin-Funktion

$$< \mu_{at} > (H) \;=\; < \mu_{at} >_S \cdot \left[\coth\left(\frac{\mu \cdot H}{k_B T}\right) - \left(\frac{\mu \cdot H}{k_B T}\right)^{-1} \right]$$

recht gut anpassen (gestrichelte Kurve in Abb. 4.33). Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten wird erzielt, wenn man ein magnetisches Moment pro Insel von μ = 450 μ_B annimmt. Zusammen mit dem mittleren magnetischen Moment pro Atom von 2.0 μ_B bedeutet das, daß die Inseln aus durchschnittlich 225 Fe-Atomen bestehen sollten. Wenn für d_{Fe} = 2.5 ML die gleiche Inseldichte von 1 / (1.6 nm)^2 vorliegen würde wie im Anfangsstadium des Fe-Wachstums (vgl. Seite 69 f.), dann wäre eine Inselgröße von 80 Fe-Atomen zu erwarten. Nach den RHEED-Daten kann man aber vermuten, daß die Koaleszenz schon bei 2.0 ML Fe beginnt. Bei d_{Fe} = 2.5 ML könnten also im Mittel bereits zwei bis drei Inseln koalesziert sein, so daß die mittlere Inselgröße tatsächlich 225 Fe-Atome beträgt.

Die Messungen bei einer einzigen Temperatur von T = 10 K sind also im Wesentlichen konsistent mit reinem Superparamagnetismus. Die im folgenden präsentierten Messungen bei mehreren verschiedenen Temperaturen widersprechen allerdings der Annahme von reinem Superparamagnetismus.

Das magnetische Verhalten bei d_{Fe} = 2.0 ML

Für eine Probe von 2.0 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) wurde eine umfangreichere Untersuchung mit SQUID-Magnetometrie durchgeführt. Bei einer Temperatur von T = 10 K sind die Magnetisierungskurven identisch in jeder von drei zueinander senkrechten Richtungen: der [110]- und [-110]-Richtungen innerhalb der Schichtebene, sowie senkrecht zur Schichtebene (Abb. 4.34). Es ist also sowohl innerhalb der Schichtebene als auch senkrecht zur Schichtebene keine uniaxiale magnetische Anisotropie vorhanden.

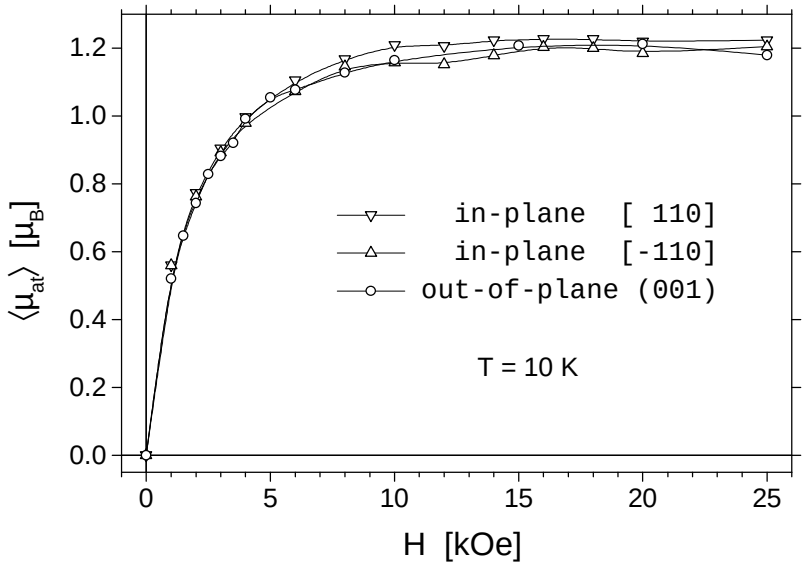

Abb. 4.34 : Magnetisierungskurven für 2.0 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2), gemessen bei einer Temperatur von T = 10 K in drei zueinander senkrechten Raumrichtungen: [110] und [-110] innerhalb der Schichtebene („in-plane"), sowie senkrecht zur Schichtebene („out-of-plane").

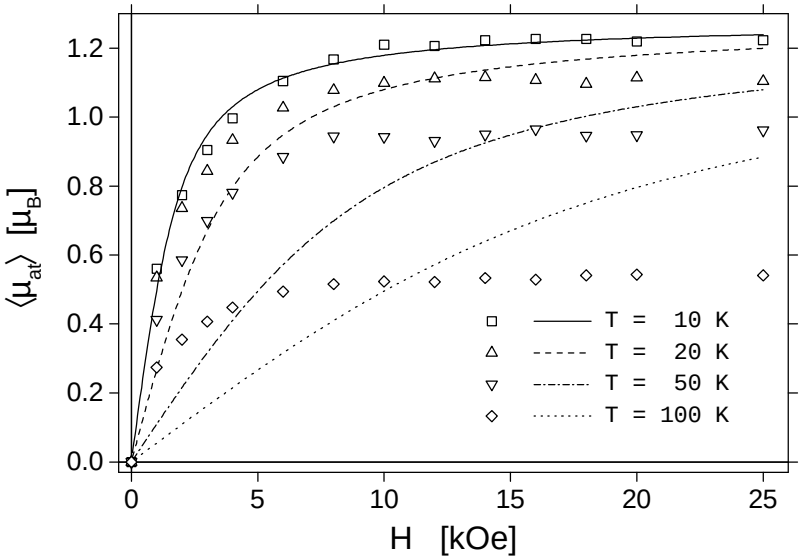

Abb. 4.35 : Symbole: Komponente des mittleren magnetischen Moments pro Atom bzgl. der [110]-Richtung als Funktion des externen Magnetfeldes H für 2.0 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) bei verschiedenen Temperaturen. Kurven: simulierte Langevin-Funktionen. Die effektive Magnetonenzahl, sowie das Sättigungsmoment wurden für T = 10 K durch numerische Anpassung bestimmt und bei den anderen Temperaturen beibehalten.

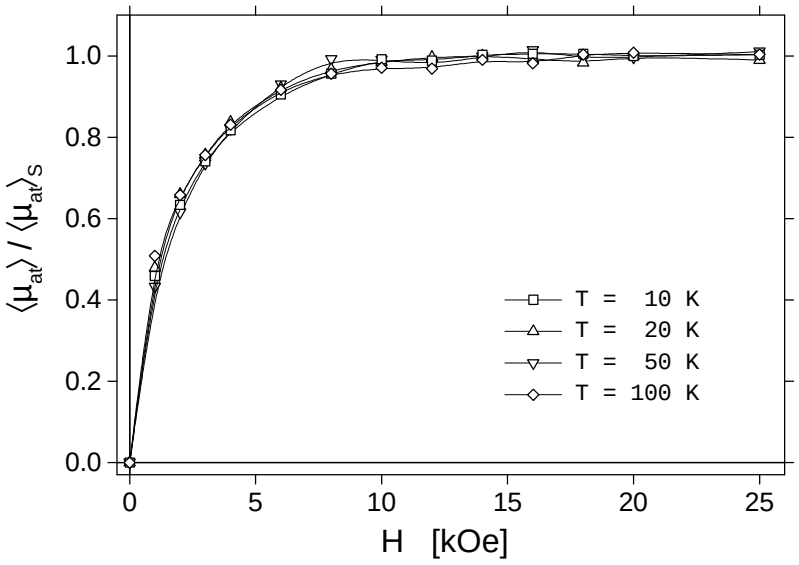

Abb. 4.36 : Meßdaten von Abb. 4.35 normiert auf die Sättigungswerte. Die zu verschiedenen Temperaturen gehörigen Verläufe kommen zur Deckung.

Die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierungskurven ist in Abb. 4.35 gezeigt. Bei T = 10 K können ebenso wie schon im Fall von d_{Fe} = 2.5 ML die Daten mit einer Langevin-Funktion recht gut angepaßt werden (beste Übereinstimmung mit μ = 190 μ_B). Bei höheren Temperaturen treten jedoch beträchtliche Diskrepanzen auf (vgl Abb. 4.35). Bei echtem Superparamagnetismus sollte das Magnetfeld, welches benötigt wird, um einen gewissen Prozentsatz der Sättigungsmagnetisierung zu erreichen, linear mit der Temperatur ansteigen (wenn man von einem konstanten magnetischen Moment pro Insel ausgeht). Im Gegensatz dazu erreicht man in Wirklichkeit, unabhängig von der Temperatur, mit einem bestimmten Magnetfeld immer den gleichen Prozentsatz des Sättigungsmomentes. Die zu unterschiedlichen Temperaturen gehörigen Magnetisierungskurven kommen völlig zur Deckung, wenn man auf das magnetische Moment im Sättigungsbereich normiert (Abb. 4.36).

Das mittlere magnetische Moment pro Atom $\langle\mu_{at}\rangle_S$ im Sättigungsbereich bei H ≥ 10 kOe und damit auch das mittlere magnetische Moment pro Insel μ nimmt mit steigender Temperatur ab. Dies könnte auf magnetischen Anregungen innerhalb der Fe-Inseln beruhen. Die „Curietemperatur“ für die magnetische Ordnung im Inneren der Fe-Inseln kann abgeschätzt werden durch Extrapolation der Sättigungsmomente auf $\langle\mu_{at}\rangle_S \rightarrow 0$ (vgl. Abb. 4.37). Es ergibt sich ein Wert von ungefähr 130 K.

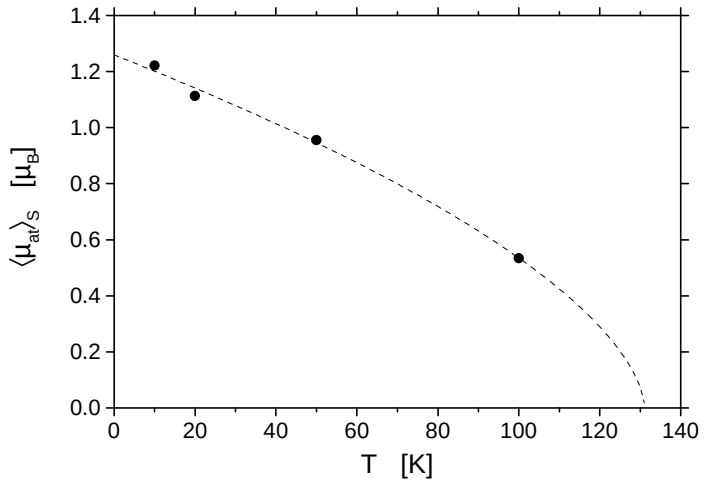

Abb. 4.37 : Sättigungsmoment $\acute{u}\mu_{at}\tilde{n}_S$ aufgetragen gegen die Temperatur T für 2.0 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2). Die gestrichelte Kurve soll den Trend der Meßdaten verdeutlichen.

Ein abnehmendes Sättigungsmoment bei konstanter Anzahl von Atomen pro Fe-Insel entspricht einer Verringerung der effektiven Magnetonenzahl. Dieser Aspekt kann bei der Simulation von Langevin-Funktionen berücksichtigt werden. Dies gibt jedoch eine Korrektur in falscher Richtung: Das Magnetfeld, welches zum Erreichen eines bestimmten Prozentsatzes des Sättigungsmomentes nötig ist, sollte mit der Temperatur noch stärker ansteigen als bei konstanter effektiver Magnetonenzahl. Daher kann ein reiner Superparamagnetismus völlig ausgeschlossen werden.

Interpretation der Beobachtungen

Da ein reiner Superparamagnetismus nicht mit den experimentellen Ergebnissen verträglich ist, muß man annehmen, daß zwischen den Fe-Inseln magnetische Kopplungen existieren. Dabei ist zunächst an die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zu denken. Da Dipolfelder mehrere Größenordnungen kleiner sind als Austauschfelder sollte zwar das magnetische Verhalten *innerhalb* der Fe-Inseln unabhängig sein von einer Dipolkopplung zwischen den Inseln, das Verhalten des Ensembles von Inseln wird sich aber durch Dipolwechselwirkungen verändern. Grundsätzlich entscheidet die Orientierung der magnetischen Momente über die Art der magnetostatischen Kopplung: Wenn die Momente parallel zur Substratoberfläche orientiert sind, sollte eine ferromagnetische Kopplung auftreten [Hauschild 98a], während eine Orientierung der Momente senkrecht zur Oberfläche eine antiferromagnetische Kopplung hervorruft [Hauschild 98b].

Um die für 2.5 ML Fe auf GaAs(001) zu erwartende Stärke der Kopplungsfelder abzuschätzen, wird nun vereinfachend angenommen, daß die im Anfangsstadium des Fe-Wachstums gebildeten Fe-Inseln für d_{Fe} = 2.5 ML gerade noch nicht koalesziert sind, d.h. daß deren Flächendichte noch 1 / (1.6 nm)^2 beträgt (vgl. Seite 69). Außerdem soll angenommen werden, daß die Inseln auf einem regulären quadratischen Gitter angeordnet sind. Aus der nominellen Schichtdicke d_{Fe} = 2.5 ML und der genannten Inseldichte folgt eine Zahl von 80 Fe-Atomen je Insel. Für das magnetische Moment pro Fe-Atom wird ein Wert von 2.0 μ_B angesetzt. Innerhalb der Inseln seien die atomaren Momente durch die Austauschwechselwirkung parallel ausgerichtet und auch für das Ensemble von Inseln sei angenommen, daß alle Supermomente parallel orientiert sind. Das Magnetfeld, welches nun am Ort einer bestimmten Fe-Insel von allen umgebenden Fe-Inseln erzeugt wird, hat folgende Werte: $B_{\parallel}^{dip} \approx 3$ kOe bei Orientierung der Momente parallel zur Schichtebene und $B_{\perp}^{dip} \approx -6$ kOe bei senkrechter Orientierung der magnetischen Momente [Tsymbal 94]. Diese Werte sind von der Größenordnung typischer Laborfelder und daher sicher nicht vernachlässigbar.

Bei ferromagnetischem Charakter der Dipolkopplung sollte es unterhalb einer bestimmten Temperatur T_C^{dip} zu *dipolarem Superferromagnetismus* kommen [Hauschild 98a]. Mit Hilfe des Ausdrucks $\mu^{Insel} \cdot B^{dip} = k_B \cdot T_C^{dip}$, der sich aus einem einfachen Molekularfeld-Ansatz ergibt, kann die superferromagnetische Curietemperatur abgeschätzt werden: $T_C^{dip} \approx 35$ K. Man beobachtet allerdings selbst bei der wesentlich tieferen Temperatur von 10 K keine Remanenz. Ein dipolarer Superferromagnetismus tritt also offenbar nicht auf.

Ein *dipolarer Superantiferromagnetismus* [Hauschild 98b] [Scheinfein 96] wäre konsistent mit der Abwesenheit einer remanenten Magnetisierung. Ein Schätzwert für die superantiferromagnetische Néeltemperatur von $T_N^{dip} \approx 70$ K folgt wiederum aus dem Molekularfeld-Ansatz $\mu^{Insel} \cdot B^{dip} = k_B \cdot T_N^{dip}$. Um die Magnetisierungen der Fe-Inseln parallel auszurichten, müßte das externe Magnetfeld die Kopplungsfelder überwinden. Tatsächlich erreicht man in einem Magnetfeld von ≈ 10 kOe ca. 95 % der Sättigungsmagnetisierung. Dieses Magnetfeld liegt in der Größenordnung der Dipolfelder, wie sie gerade abgeschätzt wurden. Es ist aber nicht verständlich, daß die Magnetisierung nach dem Abschalten eines parallel zur Schichtebene angelegten Magnetfeldes dieser Stärke wieder auf Null zurück geht. Durch ein solches Magnetfeld werden nämlich die magnetischen Momente innerhalb der Schichtebene parallel ausgerichtet und damit sollte sich der Kopplungstyp von antiferromagnetisch zu ferromagnetisch geändert haben. Da nachgewiesen wurde, daß keine magnetische Anisotropie mit leichter Achse senkrecht zur Substratoberfläche existiert, ist eine Rückkehr zu einer senkrechten Orientierung der magnetischen Momente und damit zu einer erneuten super*anti*ferromagnetischen Ordnung nicht zu erklären. Ein dipolarer Superantiferromagnetismus ist also ebenfalls auszuschließen.

Da offenbar die Dipol-Dipol-Kopplung alleine nicht das beobachtete Verhalten erklären kann, muß nun angenommen werden, daß Austauschkopplungen zwischen den Fe-Inseln von entscheidender Bedeutung sind. Es kommen insbesondere *indirekte* Austauschkopplungen in Frage, welche durch Leitungselektronen in der Au-Abdeckschicht und evtl. auch im GaAs-Substrat vermittelt werden. Der Abstand der Fe-Inseln liegt in der Größenordnung typischer Zwischenschichtdicken, bei welchen in metallischen Dreilagensystemen beträchtliche indirekte Austauschkopplungen beobachtet

wurden [Parkin 91]. Die Stärke solcher Kopplungen sollte bei monotoner Änderung des Abstands zwischen den Inseln oszillieren und kann dabei sogar mehrmals zwischen ferromagnetischem und antiferromagnetischem Charakter wechseln. Somit können sich prinzipiell sehr komplizierte Situationen ergeben.

Berechnungen von Bruno und Chappert sagen voraus, daß die indirekte Austauschkopplung über Au bei den geringsten Au-Dicken einen antiferromagnetischen Charakter haben sollte [Bruno 91]. Somit ist es denkbar, daß zumindest unmittelbar vor dem Zusammenwachsen der Fe-Inseln eine antiferromagnetische Kopplung über die Au-Abdeckschicht auftritt, welche eine superantiferromagnetische Ordnung in dem System von Fe-Inseln hervorruft. Wenn diese Interpretation stimmt, würde dies bedeuten, daß das Einsetzen des Ferromagnetismus bei Fe auf GaAs(001) bei der Koaleszenz der Fe-Inseln stattfindet, und zwar durch einen Übergang von einer indirekten antiferromagnetischen zu einer direkten ferromagnetischen Austauschkopplung.

Der Einfluß der Abdeckschicht auf das magnetische Verhalten sollte durch *in-situ*-Experimente vor und nach Deposition dieser Schicht untersucht werden. Dies wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht durchgeführt, da eine entsprechende experimentelle Ausrüstung nicht zur Verfügung stand.

Eine abschließende Deutung des beobachteten Verhaltens ist somit zum jetzigen Zeitpunkt noch nicht möglich. Die Materialkombination Fe / GaAs(001) stellt für nominelle Schichtdicken $d_{Fe} < 2.5$ ML jedoch ein sehr interessantes Modellsystem für selbstorganisierte, dicht gepackte Nanomagnete auf Halbleitersubstraten dar. Systeme von Nanomagneten finden derzeit im Hinblick auf Anwendungen in der Datenspeicherung großes Interesse. Eine weiterführende theoretische und experimentelle Untersuchung dieses Modellsystems könnte wertvolle Beiträge zur aktuellen Diskussion liefern.

5 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Struktur und das magnetische Verhalten von wenige Atomlagen dicken Fe-Schichten auf GaAs(001)-Oberflächen untersucht und interpretiert. Die Schwerpunkte lagen dabei auf dem magnetischen Phasenübergang bei konstanter Fe-Bedeckung als Funktion der Temperatur sowie auf dem Einsetzen des Ferromagnetismus als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung.

In einem ersten Schritt wurden GaAs(001)-Oberflächen von hoher Perfektion präpariert. In Zusammenarbeit mit R. Moosbühler wurden durch kombiniertes Tempern und Ionenätzen atomar glatte Bereiche von mehreren 100 nm Ausdehnung erzielt und es konnte wahlweise eine (4x2)- oder eine (6x6)-Oberflächenrekonstruktion großflächig einheitlich realisiert werden. Mit Elektronenbeugung (RHEED) und *in-situ* Rastertunnelmikroskopie (STM) wurden diese Oberflächen hochauflösend charakterisiert.

Das Wachstum von Fe auf (4x2)-rekonstruiertem GaAs(001) bei Zimmertemperatur wurde mit RHEED untersucht. Die Intensität der Beugungsreflexe des GaAs nimmt mit zunehmender nomineller Fe-Bedeckung d_{Fe} zunächst drastisch ab. Nach Überschreiten einer Fe-Bedeckung von 2.0 Monolagen (ML) treten Beugungsreflexe auf, die für bcc-kristallines epitaktisches Fe charakteristisch sind (vgl. Abb. 5.1 e). Vermutlich wächst das Fe für $d_{Fe} \leq 2.0$ ML amorph. Darauf weist auch der bei $d_{Fe} = 2.0$ ML gefundene Wert für das mittlere magnetische Grundzustandsmoment von 1.3 μ_B/Atom hin, welcher mit Literaturdaten für amorphes Fe übereinstimmt. Als Ursache kommt der erhebliche Fehlpaß zwischen den Gitterkonstanten von bcc-Fe und der *rekonstruierten* GaAs(001)-Oberfläche in Betracht.

Die Morphologie von Fe auf GaAs(001)-(4x2) bei Zimmertemperatur konnte mit dem Rastertunnelmikroskop abgebildet werden. Für $d_{Fe} = 1.0$ ML erkennt man, daß das Fe Inseln bildet, welche entlang der Streifen der Oberflächenrekonstruktion des GaAs angeordnet sind. Die Dichte der Inseln von ca. 1 / $(1.6\ nm)^2$ ist wesentlich höher als beim Wachstum von Fe auf Metall-Einkristallen bei derselben Wachstumstemperatur.

Das epitaktische Wachstum des Fe sorgt für charakteristische magnetische Anisotropien. Unter anderem gibt es eine uniaxiale Grenzflächenanisotropiekomponente mit leichter Achse senkrecht zur Schichtebene. Diese ist jedoch schwächer als die Formanisotropie. Somit orientiert sich die Magnetisierung spontan parallel zur Schichtebene. Durch den Einfluß des GaAs-Substrates, dessen Kristallstruktur eine uniaxiale Anisotropie aufweist, kommt es zu einer starken uniaxialen magnetischen Grenzflächenanisotropie mit leichter Achse in der Schichtebene parallel zur [110]-Richtung. Sie sorgt dafür, daß sich die Spontanmagnetisierung in dieser Richtung einstellt. Auch eine vierzählige Anisotropiekomponente innerhalb der Schichtebene ist vorhanden. Sie hat bei den hier betrachteten nominellen Schichtdicken von $d_{Fe} < 3.6$ ML ebenfalls eine leichte Achse parallel zur [110]-Richtung. Die [110]-Richtung ist somit eine leichte Richtung *aller* Anisotropiebeiträge. Die experimentelle Bestimmung der *Spontan*magnetisierung wird durch diese Tatsache sehr erleichtert, denn durch eine Messung der Komponente des Magnetisierungsvektors parallel zur [110]-Richtung kann unmittelbar der *Betrag* der Magnetisierung erfaßt werden. Dies ist sehr wichtig, da mit üblichen magnetischen Meßverfahren wie MOKE oder SQUID-Magnetometrie nur *eine* Vektorkomponente der Magnetisierung parallel zu einer bestimmten Richtung gemessen werden kann. Da die Magnetisierung innerhalb der Schichtebene liegt, ist die magnetische Streufeldenergie gering und es kommt im remanenten Zustand nicht zu einer Domänenaufspaltung.

Für Fe-Lagen mit nomineller Dicke $d_{Fe} \geq 2.8$ ML auf GaAs(001) wurde mit Hilfe des magneto-optischen Kerr-Effekts (MOKE) ein *sehr scharfer* magnetischer Phasenübergang als Funktion der Temperatur beobachtet. Dieser äußert sich in einem sehr abrupten Verschwinden der Spontanmagnetisierung und einem sehr schmalen Maximum der magnetischen Suszeptibilität χ bei einer bestimmten Curietemperatur T_C, welche von d_{Fe} abhängt. Fe/GaAs(001) zeigt sogar einen schärferen Phasenübergang als das Schichtsystem Fe/W(110), welches bisher als die beste experimentelle Realisierung eines zweidimensionalen Ferromagneten betrachtet wurde. Dies ist ein sehr überraschendes Ergebnis, da man lange Zeit überzeugt war, daß Fe auf GaAs wegen Interdiffusion weit von einem idealen magnetischen Verhalten entfernt ist.

Für die besondere Schärfe des magnetischen Phasenübergangs dürfte entscheidend sein, daß Fe auf GaAs(001) im Gegensatz zu Fe auf Metall-Einkristallen bei Zimmertemperatur mit einer be-

sonders hohen Inseldichte nukleiert. Die nach der Koaleszenz vorliegenden Schichtdickenschwankungen beschränken sich daher auf eine sehr kurze laterale Längenskala. Die mit den zufälligen Schichtdickenschwankungen verbundenen Schwankungen der Stärke der Austauschkopplung mitteln sich offenbar weg. Die beobachtete Breite des Phasenüberganges auf der Temperaturskala konnte vollständig auf einen bei der Probenpräparation unbeabsichtigt entstandenen sehr kleinen Schichtdickengradienten und damit auf eine systematische Variation der Curietemperatur über der Probenfläche zurückgeführt werden.

Für 3.4 ML Fe auf GaAs(001) wurde gefunden, daß die Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung nicht mit kritischen Exponenten dreidimensionaler magnetischer Systeme verträglich ist und außerdem im Temperaturbereich $T < 0.99 \cdot T_C$ erheblich von der exakten Lösung des 2D-Ising-Modells abweicht. Daher sollte das magnetische System in diesem Temperaturbereich der Universalitätsklasse mit Raumdimension zwei und Spindimension zwei angehören (vgl. Seite 12). Tatsächlich liefert das kritische Potenzgesetz $M(T) \propto (1-T/T_C)^{\beta}$ eine gute Beschreibung des Verlaufes, wenn für den kritischen Exponenten β der Wert 0.26 eingesetzt wird, welcher nahe bei dem für das 2D-XY-Modell gültigen effektiven kritischen Exponenten von 0.23 liegt.

Mittels SQUID-Magnetometrie wurde für 3.1 ML Fe auf GaAs(001) gezeigt, daß die uniaxiale magnetische Anisotropie in der Schichtebene bei $T = T_C$ nicht verschwindet, sondern die Anisotropieenergiedichte mit 2.3 µeV/Atom immerhin 30 % des auf Temperatur $T \rightarrow 0$ extrapolierten Wertes beträgt. Daher ist damit zu rechnen, daß bei Annäherung an T_C ein Übergang zu 2D-Ising-Verhalten auftritt. Eine kritische Analyse der vorliegenden Meßdaten zeigt allerdings, daß trotz der hohen Qualität der Meßdaten nicht entschieden werden kann, in welchem Abstand von T_C ein solcher Übergang tatsächlich auftritt.

In der Literatur wurde das Einsetzen des Ferromagnetismus für Fe/GaAs(001) als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung bisher nur bei Zimmertemperatur betrachtet. Von wesentlich fundamentalerer Bedeutung ist jedoch die Frage, ab welcher Fe-Bedeckung ein ferromagnetischer Grundzustand auftritt. Um diese Frage zu klären, wurde die Curietemperatur T_C als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe} bestimmt. Dazu wurde eine stufenkeilförmig präparierte Probe untersucht, da bei einer solchen Probe der relative Fehler der einzelnen nominellen Schichtdicken besonders gering ist. $T_C(d_{Fe})$ weist im untersuchten Schichtdickenbereich von $d_{Fe} = 2.8 \ldots 3.6$ ML eine Steigung von ungefähr 270 K/ML auf, wobei eine leichte Krümmung im Verlauf zu erkennen ist. Für $d_{Fe} = 3.6$ ML liegt T_C bei Zimmertemperatur (vgl. Abb. 5.1 a). Es macht dabei keinen Unterschied, ob das Fe auf einer (4x2)- oder einer (6x6)-rekonstruierten GaAs(001)-Oberfläche aufgewachsen ist.

Die Abhängigkeit der Curietemperatur von der Fe-Bedeckung wird im Rahmen eines Perkolationsmodells gedeutet. Bis zu einer bestimmten kritischen Fe-Bedeckung $d_{Fe,C}$ liegt offenbar ein System von Fe-Inseln vor, welches auch bei tiefen Temperaturen (10 K) nicht ferromagnetisch ist. Mit zunehmender Fe-Bedeckung berühren immer mehr Fe-Inseln die benachbarten Inseln, so daß zwischen diesen Inseln direkte Austauschkopplungen wirksam werden. Beim Überschreiten von $d_{Fe,C}$ entsteht ein Netzwerk von makroskopischer Ausdehnung, welches sich ferromagnetisch verhält. Mit weiter zunehmender Fe-Bedeckung bilden sich in diesem Netzwerk immer mehr Brücken, wodurch die mittlere Austauschkopplungsenergie pro Fe-Atom und damit T_C ansteigt. Für die Abhängigkeit der Curietemperatur T_C von einem „Perkolationsparameter“ p, der das Verhältnis der Zahl von existierenden Brücken zur Gesamtzahl möglicher Brücken repräsentiert, sollte ein Potenzgesetz gelten. Leider ist der Zusammenhang zwischen dem Perkolationsparameter p und der nominellen Schichtdicke d_{Fe} nicht genau bekannt. Dieser Zusammenhang könnte vielleicht in Zukunft durch umfangreiche Rastertunnelmikroskopie-Untersuchungen bestimmt werden. Im Rahmen einer ersten Näherung wird angenommen, daß p proportional zu d_{Fe} ist. In diesem Fall sollte für $T_C(d_{Fe})$ ein Potenzgesetz zutreffen. Tatsächlich läßt sich der $T_C(d_{Fe})$-Verlauf sehr gut mit einem Potenzgesetz anpassen. Dies ermöglicht eine Extrapolation über das Intervall $d_{Fe} = 2.8 \ldots 3.6$ ML hinaus. Nach dieser Extrapolation geht T_C gegen Null bei $d_{Fe,C} = 2.5$ ML, d.h. das „Einsetzen des Ferromagnetismus“ im Grundzustand findet bei einer kritischen Fe-Bedeckung von 2.5 ML statt.

Dies bedeutet nicht, daß 2.5 „magnetisch tote“ Fe-Lagen vorliegen. Experimente zeigen, daß zwar für $d_{Fe} = 2.5$ ML bei einer Temperatur von T = 10 K keine spontane ferromagnetische Ordnung existiert, man erhält aber in einem angelegten Magnetfeld eine Magnetisierung, die dem Massivmaterialwert nahe kommt.

Für nominelle Fe-Bedeckungen $d_{Fe} > 2.5$ ML und Temperaturen $T < T_C$ ist nicht das gesamte Fe ferromagnetisch. Vielmehr steigt der Prozentsatz des ferromagnetischen Fe mit zunehmender nomineller Schichtdicke stetig an, beginnend mit dem Wert Null bei $d_{Fe} = 2.5$ ML (vgl. Abb. 5.1 b).

Dieser Befund stützt das vorgeschlagene Perkolationsmodell. Im Rahmen dieses Modells wird der ferromagnetische Anteil gedeutet als Prozentsatz der Fe-Inseln, welche zu dem makroskopisch ausgedehnten Netzwerk zusammengewachsen sind und dieser Prozentsatz sollte mit dem Perkolationsparameter zunehmen.

Die uniaxiale magnetische Anisotropie innerhalb der Schichtebene wird bei derselben nominellen Schichtdicke von Null verschieden, bei welcher auch der Ferromagnetismus einsetzt (vgl. Abb. 5.1 c). Angesichts des Mermin-Wagner-Theorems könnte man sich vorstellen, daß zwar die magnetische Perkolation schon bei Schichtdicken $d_{Fe} < 2.5$ ML stattfindet, aber der Ferromagnetismus erst einsetzt, sobald die magnetische Anisotropie auftritt. Es liegt jedoch nahe, daß die magnetische Anisotropie bei $d_{Fe} = 2.5$ ML unmittelbar im Zuge der magnetischen Perkolation auftritt und zwar durch einen Umkristallisationsprozeß, welcher mit der Koaleszenz der Fe-Inseln verbunden ist.

Für $d_{Fe} \geq 2.5$ ML besitzt das atomare magnetische Grundzustandsmoment mit 2.0 μ_B näherungsweise den Wert von massivem bcc-kristallinen Fe (vgl. Abb. 5.1 d). Es ist daher nicht anzunehmen, daß das Fe erst bei $d_{Fe} = 2.5$ ML von einer amorphen in die kristalline Struktur übergeht. Die strukturelle Umwandlung, welche zum Einsetzen der magnetischen Anisotropie bei $d_{Fe} = 2.5$ ML führt, scheint also nicht im Fe stattzufinden. Vermutlich erfolgt sie in den Grenzflächen-Atomlagen des GaAs.

Weder im Hinblick auf den magnetischen Phasenübergang noch bezüglich der magnetischen Anisotropie oder der magnetischen Momente ergaben sich bei nominellen Bedeckungen von $d_{Fe} \geq 2.5$ ML Unterschiede zwischen Fe-Lagen, die auf (4x2)-rekonstruiertem oder auf (6x6)-rekonstruiertem GaAs(001) gewachsen sind. Dies spricht dafür, daß sich in beiden Fällen ein und dieselbe Struktur an der Grenzfläche zwischen Fe und GaAs einstellt. Die Bildung einer einheitlichen Grenzfläche setzt Umordnungsprozesse voraus, bei welchen die ursprüngliche Oberflächenrekonstruktion des GaAs aufgelöst wird. Berichte, wonach „überschüssiges“ Halbleitermaterial an die Oberfläche der wachsenden Fe-Schicht verdrängt wird, unterstützen diese Interpretation. Das Einsetzen der magnetischen Anisotropie bei $d_{Fe} = 2.5$ ML könnte im Zusammenhang mit diesen Umordnungsprozessen stehen.

Vor dem Einsetzen des Ferromagnetismus, d.h. für $d_{Fe} < 2.5$ ML, wurde angesichts der Inselmorphologie zunächst ein superparamagnetisches Verhalten vermutet. Tatsächlich läßt sich der Verlauf der Magnetisierung als Funktion eines externen Magnetfeldes bei einer festen Temperatur recht gut mit einer Langevin-Funktion anpassen. Allerdings sollte bei superparamagnetischen Systemen das zum Erreichen eines bestimmten Prozentsatzes der Sättigungsmagnetisierung erforderliche Magnetfeld proportional zur Temperatur ansteigen. Im Experiment wird jedoch ein temperaturunabhängiges Sättigungsverhalten gefunden. Diese Abweichung vom reinen Superparamagnetismus legt nahe, daß magnetische Kopplungen zwischen den Fe-Inseln existieren. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung alleine liefert jedoch keine plausible Interpretation der experimentellen Daten. Es scheinen vielmehr indirekte Austauschkopplungen zwischen den Fe-Inseln entscheidend zu sein, welche durch Leitungselektronen in der Au-Abdeckschicht vermittelt werden und einen antiferromagnetischen Charakter aufweisen, wodurch eine superantiferromagnetische Ordnung im System von Fe-Inseln entsteht. Nach dieser Interpretation ergibt sich das Einsetzen des Ferromagnetismus bei $d_{Fe} \approx 2.5$ ML als Übergang von einem superantiferromagnetischen zu einem ferromagnetischen Zustand auf Grund des Wechsels des Kopplungstyps von „indirekt antiferromagnetisch“ zu „direkt ferromagnetisch“ bei der Koaleszenz der Fe-Inseln.

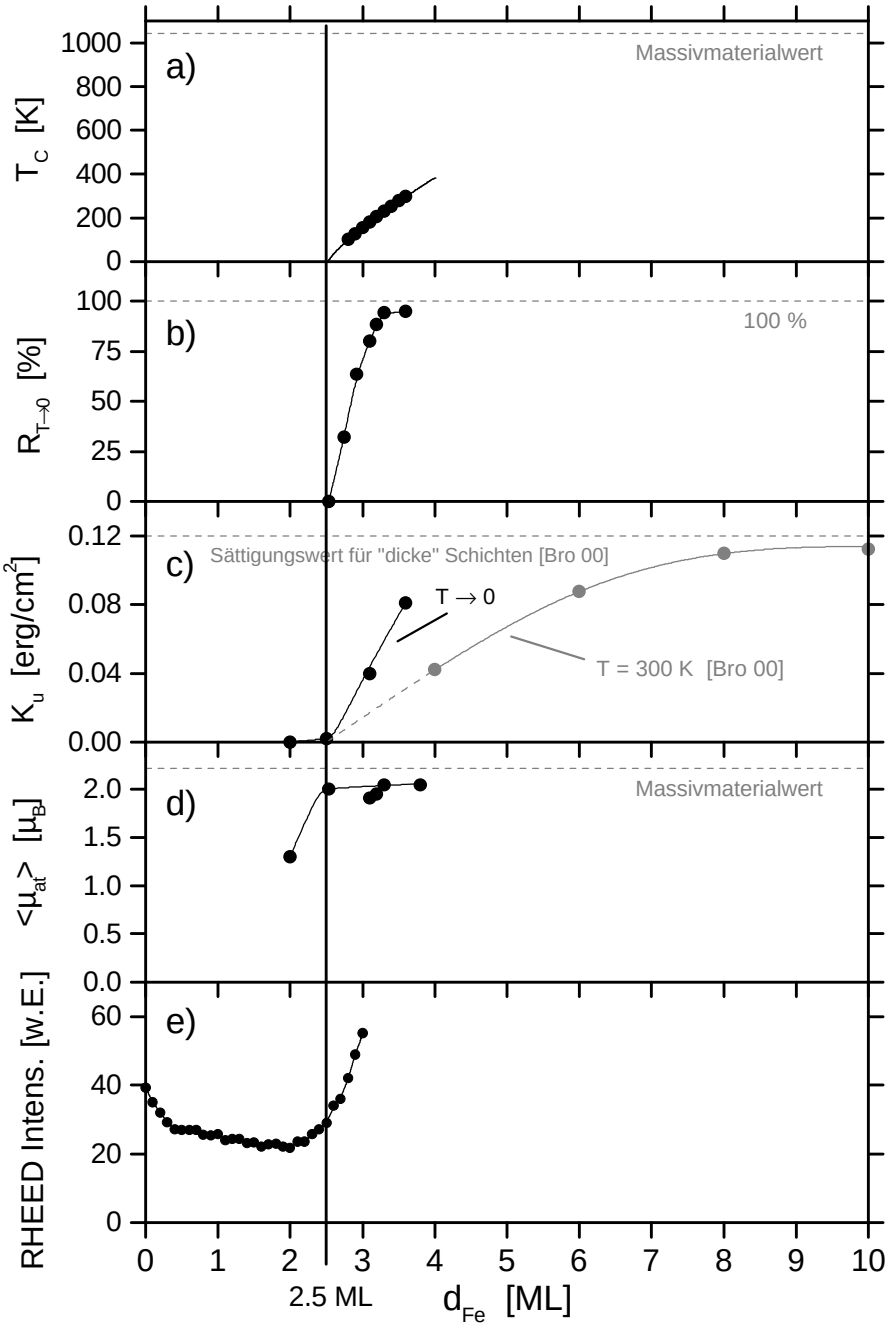

Abb. 5.1 : a) Curietemperatur, b) ferromagnetischer Anteil, c) uniaxiale magnetische Anisotropie, d) atomares magnetisches Grundzustandsmoment, e) spekulare RHEED-Intensität, für Fe auf GaAs(001) als Funktion der nominellen Fe-Bedeckung d_{Fe}

6 Anhang

Die Wahl der Wechselfeldamplitude bei „analog-ac-MOKE“

Abb. 6.1 zeigt Meßdaten der magnetischen Suszeptibilität als Funktion der Temperatur, welche an einer Probe von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) mit dem „analog-ac-MOKE“-Meßverfahren (vgl. Seite 42) gewonnen wurden. Wie auf den Seiten 72 f. und 77 ff. näher diskutiert, ergibt sich in der Nähe der Curietemperatur $T_C \approx 255.4$ K ein scharfes Maximum. Um den Einfluß der Wechselfeldamplitude zu erfassen, wurde diese im Bereich $H_{ac} = 0.2 \ldots 0.02$ Oe systematisch variiert. Mit abnehmender Wechselfeldamplitude verschiebt sich das Suszeptibilitätsmaximum zu geringfügig höheren Temperaturen und die Halbwertsbreite nimmt tendentiell ab.

Die für den magnetischen Phasenübergang besonders interessante *differentielle Nullfeldsuszeptibilität* wird eigentlich nur im Grenzfall $H_{ac} \rightarrow 0$ erfaßt. Eine Extrapolation auf $H_{ac} \rightarrow 0$ zeigt allerdings, daß die Werte für die Temperatur des Suszeptibilitätsmaximums, die Höhe dieses Maximums und die Halbwertsbreite im Rahmen der Fehlergrenzen mit den für $H_{ac} = 0.04$ Oe beobachteten Werten übereinstimmen. Daher wurde bei den im Hauptteil dieser Arbeit diskutierten Messungen $H_{ac} = 0.04$ Oe gewählt und auf eine solche Extrapolation verzichtet. Die Wahl eines noch geringeren Wertes hätte das Rauschen drastisch erhöht, wie Abb. 6.1 zeigt.

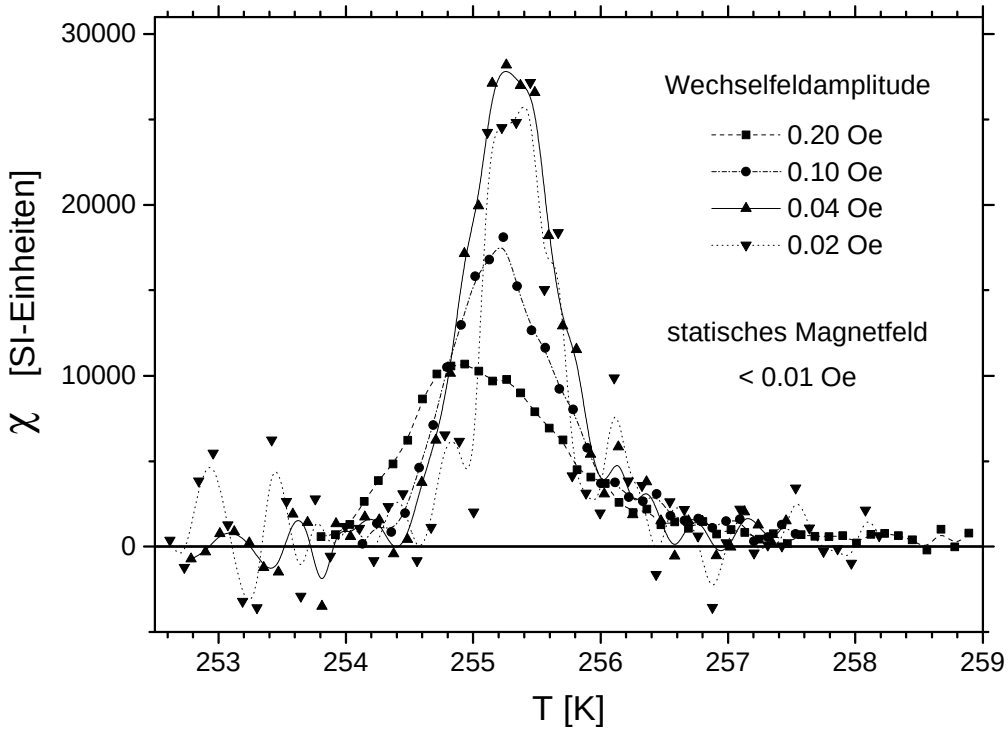

Abb. 6.1 : Magnetische Suszeptibilität c von 3.4 ML Fe auf GaAs(001)-(4x2) als Funktion der Temperatur T in einer Umgebung der Curietemperatur T_C » 255.4 K, gemessen mit dem „analog-ac-MOKE“-Meßverfahren bei verschiedenen Wechselfeldamplituden

7 Literaturverzeichnis

Die Zahlen hinter dem Pfeil beziehen sich auf die Seiten im Text, wo auf die betreffende Literaturstelle Bezug genommen wird.

[Allan 70] G.A.T. ALLAN
Phys. Rev. B 1 (1970) 352 → 90, 91
Critical Temperatures of Ising Lattice Films

[Allenspach 94] R. ALLENSPACH
J. Magn. Magn. Mater. 129 (1994) 160 → 12, 75
Ultrathin films: magnetism on the microscopic scale

[Andrieu 01] S. ANDRIEU, C. CHATELAIN, M. LEMINE, B. BERCHE, AND PH. BAUER
Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 3883 → 79
Size Effect on Magnetism of Fe Thin Films in Fe/Ir Superlattices

[Arenholz 92] E. ARENHOLZ
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1992) → 16, 98
Struktur und magnetische Eigenschaften von Y/Fe- und Tb/Fe-Viellagenschichten

[Azzam 77] R.M.A. AZZAM, N.M. BASHARA
North-Holland (1977) → 37
Ellipsometry and Polarized Light

[Back 94] C.H. BACK, C. WÜRSCH, D. KERKMANN AND D. PESCIA
Z. Phys. B 96 (1994) 1 → 81
Giant magnetic susceptibility in Fe and Co epitaxial films

[Back 95] C.H. BACK, C. WÜRSCH, A. VATERLAUS, U. RAMSPERGER, U. MAIER AND D. PESCIA
Nature 378 (1995) 597 → 12
Experimental confirmation of universality for a phase transition in two dimensions

[Baibich 88] M.N. BAIBICH, J.M. BROTO, A. FERT, F. NGUYENVANDAU, F. PETROFF, P. ETIENNE, G. CREUZET, A. FRIEDERICH, J. CHAZELAS
Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472 → 1
Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices

[Ballentine 90] C.A. BALLENTINE, R.L. FINK, J. ARAYA-POCHET AND J.L. ERSKINE
Phys. Rev. B 41 (1990) 2631 → 78, 83
Magnetic phase transition in a two-dimensional system: p(1x1)-Ni on Cu(111)

[Balzers] Informationsschrift der Firma Balzers → 20
Partialdruckmessung in der Vakuumtechnik

[Bammes 99] F. BAMMES
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1999) → 35
Polarer magneto-optischer Kerr-Effekt: Aufbau einer Meßapparatur und Untersuchung ultradünner Eisenschichten

[Bander 88] M. BANDER AND D.L. MILLS
Phys. Rev. B 38 (1988) 12015 → 83
Ferromagnetism of ultrathin films

[Barber 83] M.N. BARBER
in: C. Domb and J.L. Lebowitz, Phase Transitions and Critical Phenomena, Academic Press, New York 1983, Vol. 8, Chap. 2 → 78
Finite-size Scaling

[Bean 59] C.P. BEAN AND J.D. LIVINGSTONE
J. Appl. Phys. 30 (1959) 120 → 15
Superparamagnetism

[Berezinski 71] V.L. BEREZINSKI
Sov. Phys. JETP 32 (1971) 493 → 12
Destruction of Long-Range Order in One-Dimensional and Two-Dimensional Systems Having a Continuous Symmetry Group I. Classical Systems

[Biegelsen 90] D.K. BIEGELSEN, R.D. BRINGANS, J.E. NORTHRUP, AND L.E.SWARTZ
Phys. Rev. B 41 (1990) 5701 → 59
Surface reconstructions of GaAs(100) observed by scanning tunneling microscopy

[Bierner 96] J. BIERNER
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1995) → 71
Growth of Fe on the reconstructed Au(100) surface

[Binasch 89] G. BINASCH, P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH, W. ZINN
Phys. Rev. B 39 (1989) 4828 → 1
Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange

[Binder 74] K. BINDER AND P.C. HOHENBERG
Phys. Rev. B 9 (1974) 2194 → 83
Surface effects on magnetic phase transitions

[Blügel 99] S. BLÜGEL
30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich 1999, Kap. C1 → 7
Magnetische Anisotropie und Magnetostriktion (Theorie)

[Bovensiepen 99] U. BOVENSIEPEN, P. POULOPOULOS, W. PLATOW, M. FARLE, K. BABERSCHKE
J. Magn. Magn. Mater. 192 (1999) L386 → 15, 92
Sudden jump of the Curie temperature at the coalescence of Co islands on Cu(001)

[Bramwell 93] S.T. BRAMWELL AND P.C.W. HOLDSWORTH
J. Phys. Cond. Matt. 5 (1993) L53 → 12, 83
Magnetization and universal sub-critical behaviour in two-dimensional XY magnets

[Bramwell 94] S.T. BRAMWELL AND P.C.W. HOLDSWORTH
Phys. Rev. B 49 (1994) 8811 → 12, 83
Magnetization: A characteristic of the Kosterlitz-Thouless-Berezinskii transition

[Brockmann 99] M. BROCKMANN, M. ZÖLFL, S. MIETHANER, G. BAYREUTHER
J. Magn. Magn. Mater. 198-199 (1999) 384 → 3, 83
In-plane volume and interface magnetic anisotropies in epitaxial Fe films on GaAs(001)

[Brockmann 00] M. BROCKMANN
Dissertation, Universität Regensburg (2000) → 3, 7, 53, 54, 55, 84, 95
Epitaxie und magnetische in-plane-Anisotropie dünner Fe(001)-Schichten auf Au(001) und GaAs(001)

[Brune 94] H. BRUNE, H. RÖDER, C. BORAGNO AND K. KERN
Phys. Rev. Lett. 73 (1994) 1955 → 91
Microscopic View of Nucleation on Surfaces

[Bruno 91] P. BRUNO AND C. CHAPPERT
Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 1602 → 104
Oscillatory Coupling between Ferromagnetic Layers Separated by a Nonmagnetic Metal Spacer

[Bruno 92] P. BRUNO
MRS Symp. Proc. 231 (1992) 299 → 13, 75, 97
Magnetization and Curie Temperature of Ferromagnetic Ultrathin Films: The Influence of Magnetic Anisotropy and Dipolar Interactions

[Bruno 93a] P. BRUNO
24. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich 1993, Kap. 24 → 7
Physical origins and theoretical models of magnetic anisotropy

[Bruno 93b] P. BRUNO
J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 248 → 6
Interlayer exchange coupling: a unified physical picture

[Buckley 95] M.E. BUCKLEY, F.O. SCHUMANN, J.A.C. BLAND
Phys. Rev. B 52 (1995) 6596 → 71
Strong changes in the magnetic properties of ultrathin Co/Cu(001) films due to submonolayer quantities of a nonmagnetic overlayer

[Bychkov 84] YU.A. BYCHKOV AND E.I. RASHBA
Sov. Phys. JETP Lett. 39 (1984) 78 → 2
Properties of a 2D electron gas with lifted spectral degeneracy

[Chizhov 98] I. CHIZHOV, G. LEE, R.F. WILLIS, D. LUBYSHEV, D.L. MILLER
Surf. Sci. 419 (1998) 1 → 54
Evolution of the GaAs(001) surface structure during the transition from the As-rich (2´4) to the Ga-rich (4´2) reconstruction

[Datta 90] S. DATTA AND B. DAS
Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 665 → 1
Electronic analog of the electro-optic modulator

[Dürr 89] W. DÜRR, M. TABORELLI, O. PAUL, R. GERMAR, W. GUDAT, D. PESCIA AND M. LANDOLT
Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 206 → 78, 78, 83, 88
Magnetic Phase Transition in Two-Dimensional Ultrathin Fe Films on Au(100)

[Ebert 99] H. EBERT UND YA. PERLOV
30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich 1999, Kap. C5 → 32
Magneto-optische Effekte (Theorie)

[Elmers 94a] H.J. ELMERS, J. HAUSCHILD, H. HÖCHE AND U. GRADMANN, H. BETHGE, D. HEUER AND U. KÖHLER
Phys. Rev. Lett. 73 (1994) 898 → 71
Submonolayer Magnetism of Fe(110) on W(110): Finite Width Scaling of Stripes and Percolation between Islands

[Elmers 95] H.J. ELMERS, J. HAUSCHILD, U. GRADMANN
J. Magn. Magn. Mater. 140-144 (1995) 1559 → 83
Coincidence of susceptibility maximum and T_C ?

[Elmers 96a] H.J. ELMERS, J. HAUSCHILD, G.H. LIU AND U. GRADMANN
J. Appl. Phys. 79 (1996) 4984 → 74, 78, 78, 83
Critical phenomena in the two-dimensional XY magnet Fe(100) on W(100)

[Elmers 96b] H.J. ELMERS, J. HAUSCHILD AND U. GRADMANN
Phys. Rev. B 54 (1996) 15224 → 6 ,74, 78, 79, 81, 88, 88
Critical behavior of the uniaxial ferromagnetic monolayer Fe(110) on W(110)

[Elmers 99] H.J. ELMERS
30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich 1999, Kapitel B1, Abschnitt 1.3 → 14, 85, 85
Magnetismus dünner Filme

[Ernst 99] M. ERNST
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1999) → 76
Substrateinfluß auf Struktur und Magnetismus ultradünner Eisenschichten untersucht mit Mössbauer-Spektroskopie

[Filipe 97] A. FILIPE, A. SCHUHL, AND P. GALTIER
Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 129 → 2, 97
Structure and magnetism of the Fe/GaAs interface

[Freeland 99] D.J. FREELAND, Y.B. XU, E.T.M. KERNOHAN, M. TSELEPI, J.A.C. BLAND
Thin Solid Films 343-344 (1999) 210 → 3, 4, 88, 89, 92
Scaling behaviour and evolution of ferromagnetism in epitaxial Fe/GaAs(100) and Fe/InAs(100)

[Garreau 97a] G. GARREAU, M. FARLE, E. BEAUREPAIRE, K. BABERSCHKE
Phys. Rev. B 55 (1997) 330 → 88
Curie temperature and morphology in ultrathin Co/W(110) films

[Garreau 97b] G. GARREAU
Dissertation, Université Louis Pasteur, Strasbourg, France (1997) → 37
Propriétés magnétiques de films ultra-minces a base de cobalt et de terres-rares

[Garreau 00] G. GARREAU
persönliche Mitteilung → 17

[Gebhardt 80] W. GEBHARDT, U. KREY
Vieweg (1980) → 10
Phasenübergänge

[Griffiths 70] R.B. GRIFFITHS
Phys. Rev. Lett. 24 (1970) 1479 → 12
Dependence of Critical Indices on a Parameter

[Hägele 98] D. HÄGELE, M. OESTREICH, W.W. RÜHLE, N. NESTLE, K. EBERL
Appl. Phys. Lett. 73 (1998) 1580 → 2
Spintransport in GaAs

[Hauschild 98a] J. HAUSCHILD, H.J. ELMERS, U. GRADMANN
Phys. Rev. B 57 (1998) R677 → 15, 103, 103
Dipolar superferromagnetism in monolayer nanostripes of Fe(110) on vicinal W(110) surfaces

[Hauschild 98b] J. HAUSCHILD, U. GRADMANN, H.J. ELMERS
Appl. Phys. Lett. 72 (1998) 3211 → 15, 103, 103
Perpendicular magnetization and dipolar antiferromagnetism in double layer nanostripe arrays of Fe(110) on W(110)

[Heim 95] K.R. HEIM, G.G. HEMBREE, K.E. SCHMIDT, AND M.R. SCHEINFEIN
Appl. Phys. Lett. 67 (1995) 2878 → 71
Enhanced superparamagnetism in two-dimensional arrays of nanometer-sized Fe islands

[Hope 00] S. HOPE, B.-CH. CHOI, P.J. BODE, AND J.A.C. BLAND
Phys. Rev. B 61 (2000) 5876 → 16
Direct observation of the stabilization of ferromagnetic order by magnetic anisotropy

[Höpfl 96] T. HÖPFL
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1996) → 7
Atomare magnetische Momente ultradünner magnetischer Schichten

[Huang 93] F. HUANG, G.J. MANKEY, M.T. KIEF, AND R.F. WILLIS
J. Appl. Phys. 73 (1993) 6760 → 83
Finite-size scaling behavior of ferromagnetic thin films

[Hubert 98] A. HUBERT
Springer-Verlag (1998) → 9
Magnetic domains

[Hwang 92] R.Q. HWANG, C. GÜNTHER, J. SCHRÖDER, S. GÜNTHER, E. KOPATZKI AND R.J. BEHM
J. Vac. Sci. Technol. A 10 (1992) 1970 → 91
Nucleation and growth of thin metal films on clean and modified metal substrates studied by scanning tunneling microscopy

[Jullière 75] M. JULLIÈRE
Phys. Lett. 54A (1975) 225 → 1
Tunneling between ferromagnetic films

[Kerkmann 92] D. KERKMANN, D. PESCIA, R. ALLENSPACH
Phys.Rev.Lett. 68 (1992) 686 → 75
Two-Dimensional Magnet at Curie Temperature: Epitaxial Layers of Co on Cu(100)

[Kisters 94] G. KISTERS
Dissertation, Universität Köln, veröffentlicht vom Forschungszentrum Jülich, Jül 2919 (1994) → 27, 28
Strukturelle und magnetische in-situ Untersuchung an Pd/Fe(100)-Schichtsystemen auf MgO

[Kneedler 97] E.M. KNEEDLER, B.T. JONKER, P.M. THIBADO, R.J. WAGNER, B.V. SHANABROOK AND L.J. WHITMAN
PHYS. REV. B 56 (1997) 8163 → 70, 88, 89, 99
Influence of substrate surface reconstruction on the growth and magnetic properties of Fe on GaAs(001)

[Kohlhepp 92] J. KOHLHEPP, H.J. ELMERS, S. CORDES AND U. GRADMANN
Phys. Rev. B 45 (1992) 12287 → 72, 83
Power laws of magnetization in ferromagnetic monolayers and the two-dimensional Ising model

[Kohlhepp 93] J. KOHLHEPP, H.J. ELMERS, U. GRADMANN
J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 487 → 85
Magnetic interface anisotropies of Co/Cu(111) and Co/Au(111) interfaces from ultrathin Co films on Cu(111)

[Kosterlitz 73] J.M. KOSTERLITZ AND D.J. THOULESS
J. Phys. C 6 (1973) 1181 → 12
Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems

[Kosterlitz 74] J.M. KOSTERLITZ
J. PHYS. C 7 (1974) 1046 → 12
The critical properties of the two-dimensional xy model

[Krams 92] P. KRAMS, L. LAUKS, R.L. STAMPS, B. HILLEBRANDS AND G. GÜNTHERODT
Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 3674 → 16
Magnetic Anisotropies of Ultrathin Co(001) Films on Cu(001)

[Krebs 87] J.J. KREBS, B.T. JONKER, AND G.A. PRINZ
J. Appl. Phys. 61 (1987) 2596 → 2
Properties of Fe single-crystal films grown on (100) GaAs by molecular-beam epitaxy

[Lagally 93] M.G. LAGALLY
Physics Today, November 1993, 24 → 91
Atom motion on surfaces

[Landau 76] D.P. LANDAU
Phys. Rev. B 13 (1976) 2997 → 78
Finite-size behavior of the Ising square lattice

[Landolt-Börnstein 82] LANDOLT-BÖRNSTEIN
Band 17a, Springer-Verlag 1982 → 35, 48
Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik

[Lugert 92] G. LUGERT
Dissertation, Universität Regensburg (1992) → 6, 7, 22, 72
Magnetische Momente von Fe(110)-Schichten in Monolagenbereich

[May 98] F. MAY, P. SRIVASTAVA, M. FARLE, U. BOVENSIEPEN, H. WENDE, R. CHAUVISTRÉ, K. BABERSCHKE
J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998) 1220 → 71
Element-specific Curie temperatures of Ni/Cu/Co trilayers

[McLean 99] J.G. MCLEAN, P. KRUSE, A.C. KUMMEL
Surf. Sci. 424 (1999) 206 → 59, 64
Atomic structure determination for GaAs(001)-(6´6)

[Mermin 66] N.D. MERMIN AND H. WAGNER
Phys. Rev. Lett. 17 (1966) 1133 → 11, 97
Absence of ferromagnetism or antiferromagnetism in one- or two-dimensional isotropic Heisenberg models

[Monchesky 99] T.L. MONCHESKY, B. HEINRICH, R. URBAN, K. MYRTLE, M. KLAUA, J. KIRSCHNER
Phys. Rev. B 60 (1999) 10242 → 69
Magnetoresistance and magnetic properties of Fe/Cu/Fe/GaAs(100)

[Moosbühler 01a] R. MOOSBÜHLER AND G. BAYREUTHER
zur Veröffentlichung vorgesehen → 59, 60, 60, 60, 60, 62, 63
Preparation and structural characterization of GaAs(001) surfaces

[Moosbühler 01b] R. MOOSBÜHLER AND G. BAYREUTHER
zur Veröffentlichung vorgesehen → 70, 70, 80
Epitaxial growth of Fe on GaAs(001) with different surface reconstructions

[Onsager 44] L. ONSAGER
Phys. Rev. 65 (1944) 117 → 11
Crystal Statistics. I. A Two-Dimensional Model with an Order-Disorder Transition

[Pappas 92] D.P. PAPPAS, C.R. BRUNDLE, H. HOPSTER
Phys. Rev. B 45 (1992) R8169 → 12
Reduction of macroscopic moments in ultrathin Fe films as the magnetic orientation changes

[Park 95] Y. PARK, S. ADENWALLA, G.P. FELCHER, AND S.D. BADER
Phys. Rev. B 52 (1995) 12779 → 15
Superparamagnetic relaxation of Fe deposited on MgO(001)

[Parkin 91] S.S.P. PARKIN
Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 3598 → 104
Systematic Variation of the Strength and Oscillation Period of Indirect Magnetic Exchange Coupling through the 3d, 4d, and 5d Transition Metals

[Pokrovsky 79] V.L. POKROVSKY
Adv. Phys. 28 (1979) 595 → 75, 81
Properties of ordered continuously degenerate systems

[Poulopoulos 97] P. POULOPOULOS, M. FARLE, U. BOVENSIEPEN AND K. BABERSCHKE
Phys. Rev. B 55 (1997) 11961 → 76
Evidence for domain formation near the Curie temperature in ultrathin Ni/Cu(001) films with perpendicular anisotropy

[Prinz 82] G.A. PRINZ, G.T. RADO, AND J.J. KREBS
J. Appl Phys. 53 (1982) 2087 → 2
Magnetic properties of single-crystal (110) iron films grown on GaAs by molecular beam epitaxy

[Prinz 90] G.A. PRINZ
Science 250 (1990) 1092 → 1
Hybrid Ferromagnetic-Semiconductor Structures

[Prinz 95] G.A. PRINZ AND K. HATHAWAY (EDS.)
Physics Today 48 (1995) 24 → 1
Magnetoelectronics

[Prinz 98] G.A. PRINZ
Science 282 (1998) 1660 → 1
Magnetoelectronics

[Prinz 99] G.A. PRINZ
J. Magn. Magn. Mater. 200 (1999) 57 → 1
Magnetoelectronics applications

[Qiu 91] Z.Q. QIU, J. PEARSON, AND S.D. BADER
Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 1646 → 78, 78, 88
Magnetic Phase Transition of Ultrathin Fe Films on Ag(111)

[Qiu 94] Z.Q. QIU, J. PEARSON, AND S.D. BADER
Phys. Rev. B 49 (1994) 8797 → 3, 76, 78, 78, 88, 90, 93
Two-dimensional Ising transition of epitaxial Fe films grown on Ag(100)

[Rau 96] C. RAU, M. ROBERT
IEEE Trans. Magn. 32 (1996) 4553 → 83
Magnetic Phase Transitions of Ultra-Thin Fe Films

[Richardsen 97] T. RICHARDSEN
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1997) → 82
Mössbaueruntersuchungen an ultradünnen epitaktischen Fe-Schichten

[Röder 93] H. RÖDER, E. HAHN, H. BRUNE, J.P. BUCHER AND K. KERN
Nature 366 (1993) 141 → 91
Building one- and two-dimensional nanostructures by diffusion-controlled aggregation at surfaces

[Röder 95] H. RÖDER, K. BROMANN, H. BRUNE AND K. KERN
Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 3217 → 91
Diffusion-Limited Aggregation with Active Edge Diffusion

[Scheinfein 96] M.R. SCHEINFEIN, K.E. SCHMIDT, K.R. HEIM, AND G.G. HEMBREE
Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 1541 → 103
Magnetic Order in Two-Dimensional Arrays of Nanometer-Sized Superparamagnets

[Schumann 94] F.O. SCHUMANN, M.E. BUCKLEY, J.A.C. BLAND
Phys. Rev. B 50 (1994) 16424 → 16
Paramagnetic-ferromagnetic phase transition during growth of ultrathin Co/Cu(001) films

[Stauffer 95] D. STAUFFER, A. AHARONY
VCH (1995) → 15
Perkolationstheorie

[Stinchcombe 83] R.B. STINCHCOMBE
in: C. Domb and J.L. Lebowitz, Phase Transitions and Critical Phenomena, Academic Press, New York, Vol. 7 (1983) 152 → 16, 15, 92
Dilute Magnetism

[Stroscio 93] J.A. STROSCIO, D.T. PIERCE AND R.A. DRAGOSET
Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 3616 → 29, 69
Homoepitaxial Growth of Iron and a Real Space View of Reflection-High-Energy-Electron Diffraction

[Tsymbal 94] E. TSYMBAL
J. Magn. Magn. Mater. 130 (1994) L6 → 103
Evaluation of the magnetic dipolar fields from layered systems on atomic scale

[Wilson 79] K.G. WILSON
Sci. Am. 241/2 (1979) 140 → 11, 12
Problems in Physics with Many Scales of Length

[Würsch 97] CH. WÜRSCH, C. STAMM, S. EGGER, D. PESCIA, W. BALTENSPERGER, J.S. HELMAN
Nature 389 (1997) 937 → 71
Quantum oscillations in a confined electron gas

[Xu 98] Y.B. XU, E.T.M. KERNOHAN, D.J. FREELAND, A. ERCOLE, M. TSELEPI AND J.A.C. BLAND
Phys. Rev. B 58 (1998) 890 → 4, 88, 89
Evolution of the ferromagnetic phase of ultrathin Fe films grown on GaAs(100)-4x6

[Xu 00] Y.B. XU, D.J. FREELAND, M. TSELEPI, AND J.A.C. BLAND
J. Appl. Phys. 87 (2000) 6110 → 88
Uniaxial magnetic anisotropy of epitaxial Fe films on InAs(100)-4´2 and GaAs(100)-4´2

[Xue 95] Q. XUE, T. HASHIZUME, J.M. ZHOU, T. SAKATA, T. OHNO, AND T. SAKURAI
Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 3177 → 54
Structures of the Ga-Rich 4´2 and 4´6 Reconstructions of the GaAs(001) Surface

[Xue 99] Q. XUE, T. HASHIZUME, T. SAKURAI
Appl. Surf. Sci. 141 (1999) 244 → 59, 54, 59, 59
Scanning tunneling microscopy study of GaAs(001) surfaces

[Yang 52] C.N. YANG
Phys. Rev 85 (1952) 808 → 11
The Spontaneous Magnetization of a Two-Dimensional Ising Model

[Zak 91] J. ZAK, E.R. MOOG, C. LIU AND S.D. BADER
Phys. Rev. B 43 (1991) 6423 → 32
Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions

[Zhu 00] J.G. ZHU, Y. ZHENG AND G.A. PRINZ
J. Appl. Phys. 87 (2000) 6668 → 1
Ultrahigh density vertical magnetoresistive random access memory

[Zölfl 97a] M. ZÖLFL
Diplomarbeit, Universität Regensburg (1997) → 2, 98, 98
Epitaktische Fe(001) Schichten auf GaAs(001) ohne „magnetisch tote“ Lagen

[Zölfl 97b] M. ZÖLFL, M. BROCKMANN, M. KÖHLER, S. KREUZER, T. SCHWEINBÖCK, S. MIETHANER, F. BENSCH, G. BAYREUTHER
J. Magn. Magn. Mater. 175 (1997) 16 → 2, 7, 98, 98
Magnetic films epitaxially grown on semiconductors

Danke !

Mein Dank gilt an erster Stelle dem Betreuer dieser Arbeit, Herrn Prof. Dr. GÜNTHER BAYREUTHER, der mir durch seine wissenschaftliche Kompetenz und sein angenehmes persönliches Wesen immer ein großes Vorbild war. Seine wertvollen Ratschläge trugen sehr zum Gelingen dieser Arbeit bei.

Herrn Prof. Dr. HORST HOFFMANN, an dessen Lehrstuhl diese Arbeit entstanden ist, danke ich für die Bereitstellung der notwendigen Basis-Infrastruktur.

Besonderer Dank gilt Herrn Dr. GUILLAUME GARREAU, ohne dessen tatkräftige Unterstützung, insbesondere während unserer gemeinsamen Forschungsaufenthalte am Institut de la Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, wesentliche Teile der vorliegenden Arbeit nicht in dieser Form entstanden wären. Mein Dank richtet sich dabei auch an Herrn Dr. ERIC BEAUREPAIRE, der seine experimentelle Ausrüstung über mehrere Wochen uneingeschränkt zur Verfügung gestellt hat. Bei Herrn RICHARD POINSOT möchte ich mich für die Durchführung von Messungen mit dem Straßburger SQUID-Magnetometer bedanken. Herrn Dr. PIERRE PANISSOD sei gedankt für Diskussionen über die wissenschaftlichen Ergebnisse.

Vielen Dank auch an meinen Doktoranden-Kollegen Herrn RUPERT MOOSBÜHLER für die zum Teil sehr enge Kooperation bei der Untersuchung von GaAs-Oberflächen und der schrittweisen Interpretation der Beobachtungen.

Herrn Prof. Dr. UWE KREY und Herrn Dr. GRZEGORZ WIATROWSKI möchte ich danken für Diskussionen über Perkolationstheorie.

Keinesfalls unerwähnt bleiben darf Herr Dr. MATTHIAS BROCKMANN, an dessen langjährige Vorarbeiten und Erfahrungen beim Aufbau der Molekularstrahlepitaxie-Anlage und der Untersuchung von Fe-Schichten auf GaAs sich diese Arbeit anschließt. Vielen Dank für die vielfältige freundschaftliche Unterstützung.

Dank gilt auch meinem ehemaligen Zimmerkollegen, Herrn Dr. FRANZ KREUPL, von dessen umfangreichen Kenntnissen ich bei der Konstruktion von Apparaturen immer wieder profitieren konnte

Durch die herausragende handwerkliche Kompetenz von Herrn GÜNTER RÖDL konnte eine Vielzahl von Detailkonstruktionen an den Apparaturen außerordentlich schnell und präzise realisiert werden. Mein Dank gilt auch Herrn DIETER SCHIERL, der immer zur Stelle war, wenn es um die Versorgung mit Verbrauchsmaterial ging.

Viel beansprucht wurde im Laufe dieser Arbeit auch die mechanische Zentralwerkstatt der Fakultät für Physik. Mehrere „Großaufträge“ wurden mit viel Engagement und Geschick ausgeführt.

Den Mitarbeitern der Elektronik-Werkstatt, sowie Herrn Dipl.-Ing. RAINER STEMP sei gedankt für Ratschläge bei elektronischen Problemen

Danke an die Herren WEIGERT, WALLING und ROTHER von der Tieftemperatur-Anlage, welche die permanente Versorgung des Regensburger SQUID-Magnetometers mit flüssigem Helium sichergestellt haben.

Eine große Bereicherung waren die vielfältigen Kontakte zu den Doktoranden-Kollegen VALENTIN KOTTLER, JÖRG WUNDERLICH, STEFAN MIETHANER, KLEMENS PRÜGL, BAKURI LANCHAVA, MARKUS HAIDL, ARTUR BECHERT, MATTHIAS KÖHLER, MICHAEL ZÖLFL, MARTIN DUMM, THOMAS HAGLER, WOLFGANG KIPFERL, STEFAN GANZER, FLORIAN STEINBAUER, THOMAS SCHMIDT und HERBERT GRAF. Außerdem hat es viel Spaß gemacht, die Diplomarbeiten von RALF SELLMANN, THOMAS SCHWEINBÖCK, TOBIAS LEEB, RAINER HÖLLINGER, STEFAN WILLKOFER, ELISABETH REIGER, ELISABETH REINWALD, ROLAND MEIER und MONIKA ROSE, sowie das Praktikum von ANDREAS STETTER zu begleiten.

Schließlich möchte ich es nicht versäumen, auch allen weiteren Lehrstuhlmitgliedern zu danken, die z.B. durch die vielen perfekt organisierten „Seminar-Nachfeiern“ das soziale Leben am Lehrstuhl bereichert haben.