

Laboratorium voor
Vaste-Stoffysika en
Magnetisme

Katholieke
Universiteit
Leuven

Departement
Natuurkunde



De invloed van bestraling en uitgloeïing op de eigenschappen van een Fe/Ag superrooster.

Eddy Kunnen

Promotor:
Prof. Dr. Y. Bruynseraede

Eindverhandeling ingediend tot
het behalen van de graad van
Licentiaat in de Natuurkunde

Faculteit Wetenschappen
1995

*Danken, als kind blijf je er niet bij stilstaan,
als grote mens besef je wat het is.*

Daarom dank ik

Prof. Dr. Y. Bruynseraede en al zijn voorgangers voor het neerzetten van de hardware waarop ik me heb kunnen uitleven en het aannemen en opleiden van z'n fantastische crew, Dr. K. Temst en Dr. G. Gladyszewski voor de dagelijkse begeleiding, het werk aan deze thesis en het onvermoeid verslinden van m'n vragen op welk moment dan ook, drs. C. Bruynseraede voor de hulp bij de AGM metingen en drs. G. Verbanck voor de magnetoweerstandsmetingen, Dr. V. Metlusko voor de SQUID-metingen en Dr. A. Vantomme voor de RTS metingen, Prof. Dr. V. Moshchalkov voor zijn supervisie en het lezen van deze thesis, Prof. Dr. C. Van Haesendonck voor de hulp bij het doorgronden van het Kondoeffect, Prof. Dr. G. Langouche voor het lezen van deze thesis, de ganse crew voor de toffe sfeer.

Ik dank ook van harte mijn ouders en Sandra voor ... tja hier kan ik een boek over schrijven.

Danken, het is meer dan een woord.

INHOUD

Inleiding	3
1. Preparatie van het superrooster	5
1.1. Moleculaire Bundel Epitaxie (MBE)	5
1.2 Epitaxiale multilagen en hun grenslaag	6
1.2.1 Epitaxie	6
1.2.2 De grenslaag	7
2. Karakterisatietechnieken en elektrische en magnetische eigenschappen	9
2.1 Bestraling	9
2.2 Uitgloeïing	9
2.3 Reflectie Hoge Energie Elektronen Diffractie (RHEED)	11
2.4 Atomic Force Microscopy (AFM)	12
2.5 Rutherfordterugverstrooiing (RTS)	13
2.6 X-stralen diffractie (XRD)	15
2.6.1 Een enkelvoudige kristallijne laag	16
2.6.2 Lage hoek en hoge hoek	17
2.6.3 Het ideale geval	18
2.6.4 Computerprogramma's	20
2.6.5 De invloed van imperfecties op het diffractiepatroon	22
a. De invloed van korrelgrenzen	22
b. De invloed van ruwheid	24
c. De invloed van interdiffusie	24
d. De invloed van spanningen	25
2.7 Alternating Gradient Magnetometry (AGM)	26
2.8 Het Kondo-effect	28
2.9 Giant Magnetoresistance (GMR)	30
2.9.1 Kwalitatieve beschrijving	31
3. Resultaten	33
3.1 Karakterisatie van het gegroeide Ag/Fe superrooster	33
3.1.1 Reflectie Hoge Energie Elektronen Diffractie	33
3.1.2 Atomic Force Microscopy	34
3.1.3 Rutherfordterugverstrooiing	36
3.1.4 X-stralen diffractie	39
3.1.5 De elektrische en magnetische eigenschappen	46
3.2 Bestraling	47
3.2.1 De structuurveranderingen	47

3.2.2 De elektrische en magnetische eigenschappen.....	51
3.3 Uitgloeïng.....	54
3.3.1 De structuurveranderingen.....	54
3.3.2 De elektrische en magnetische eigenschappen.....	58
4. Besluiten	62
Referenties	64

Inleiding

In het voorbije decennium is men van start gegaan met het onderzoek op magnetische multilagen in de hoop hier nieuwe effecten te ontdekken die gerelateerd zijn aan het transport van elektronen doorheen deze multilagen. Nieuwe effecten kunnen verwacht worden wanneer de periode van de artificiële gelaagdheid van dezelfde grootte-orde is als de magnetische interactielengte. In 1986 werd door de groep van Peter Grünberg in het Duitse nationaal onderzoekscentrum te Jülich in een Fe/Cr/Fe drielaag, *zie fig. 1*, een antiferromagnetische koppeling van de magnetische momenten van de twee ijzerlagen ontdekt [1]. Een superrooster bestaande uit deze materialen Fe en Cr waarin de Fe lagen antiferromagnetisch gekoppeld zijn toonde in 1988 in de Université Paris-Sud een weerstandsval van een factor twee bij aanlegging van een voldoende groot magneetveld [1]. Giant Magnetoresistance (GMR) was geboren. Tot slot werd hier in 1990 door Stuart Parkin en zijn medewerkers in het IBM Almaden onderzoekscentrum te California nog aan toegevoegd dat de antiferromagnetische koppeling afwisselt met een ferromagnetische koppeling naarmate men de dikte van de niet-magnetische laag verandert [1].

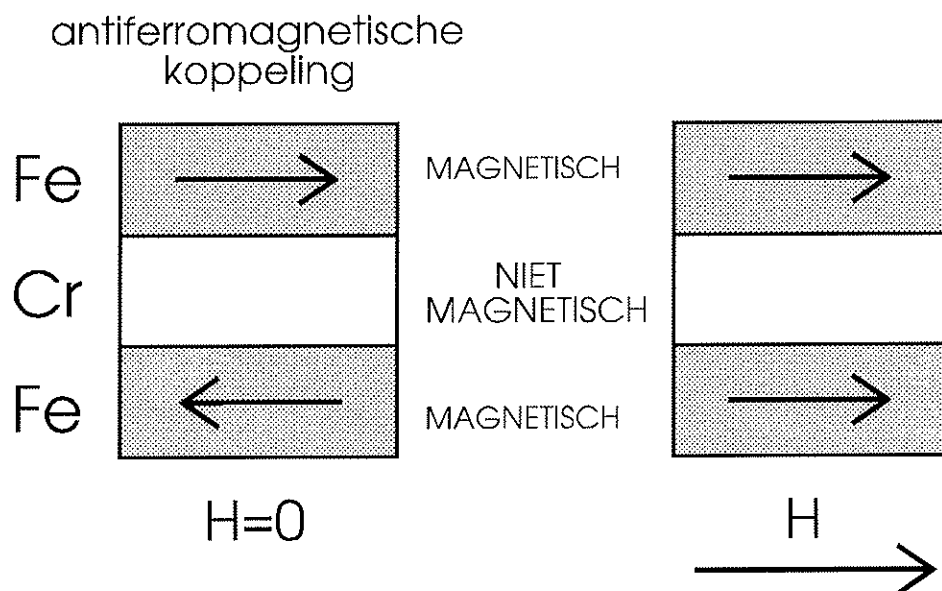


Fig. 1 Antiferromagnetische koppeling van de magnetisatie in de ijzerlagen doorheen de chroomlaag.

Deze magnetische multilagen kennen tal van toepassingen zoals o.a. in de leeskop van een disc-drive waar IBM een kop ontwikkelt die 10 Gigabits per vierkante inch aankan of om in hetzelfde toepassingsdomein te blijven, de ontwikkeling van een permanent magnetisch geheugen dat willekeurig toegankelijk is (MRAM) en een heel hoge densiteit kent. Andere topics zijn bv. het gebruik om de rotatiesnelheid van een motor

of wiel op te meten. Deze toepassing kan in de toekomst gebruikt worden door de boordcomputer van een auto voor de navigatie i.p.v. satellietcommunicatie of gebruik te maken van gyroscopen [1].

De dwarsboom die hier vaak de weg verspert, is dat de weerstandsdaling niet voldoende groot is bij een laag magneetveld. Dit vereist dus een optimalisatie in de keuze van materialen, dikten, lagen of clusters, Zoals zal worden aangetoond, kan de structuur hier ook een invloed op uitoefenen. Om dit te bestuderen werd voor de groei van een superrooster¹ gekozen voor een combinatie van een magnetisch en een niet-magnetisch materiaal welke epitaxiaal groeien en bovendien een goede karakterisatie van de structuur en de grenslaag toelaten. Ag en Fe voldoen hieraan daar de horizontale roostermisfit klein is (0.8%) hetgeen epitaxiale groei mogelijk maakt en er verticaal een misfit van 42.5% is (t.o.v. 0.65% voor Cr/Fe) hetgeen een groot contrast voor X-stralendiffractie (XRD) meebrengt. De initiële GMR voor de bestudeerde monsters daarentegen is laag, maar zoals zal worden aangetoond, zal uitglouing of bestraling hierin verandering brengen en worden er tevens nog een aantal andere interessante effecten tijdens deze behandelingen waargenomen.

De groei van de Fe/Ag multilagen gebeurde met Moleculaire Bundel Epitaxie (MBE) (hoofdstuk 1) en de structuur werd onderzocht m.b.v. Reflectie Hoge Energie Elektron Diffractie (RHEED), Atomic Force Microscopy (AFM), Rutherfordterugverstrooiing (RTS) en XRD terwijl voor de elektrische en magnetische eigenschappen beroep werd gedaan op een Alternating Gradient Magnetometer (AGM) en het opmeten van de resistiviteit en de GMR (hoofdstuk 2). De resultaten hiervan komen aan bod in hoofdstuk 3. Tot slot zullen de conclusies behandeld worden die uit deze experimenten volgen.

¹Een superrooster bestaat uit een opeenstapeling van identieke bilagen. Eén bilaag bestaat uit twee lagen van een welbepaalde dikte van verschillende materialen. Het is gekenmerkt door zijn hoge kristallijne kwaliteit.

1 Preparatie van het superrooster

1.1 Moleculaire Bundel Epitaxie (MBE)

MBE laat toe epitaxiale films van hoge zuiverheid en excellente kristallografische kwaliteit te groeien [2], en biedt tevens ook de mogelijkheid om in-situ analyses zoals in dit geval RHEED te doen. Het principe is dat men materiaal verdamppt d.m.v. verwarming, een zgn. Knudsen-cel, of door er een elektronenstraal op te laten invallen, zie fig 1.1. De losgeslagen atomen vliegen dan in een bundel naar het substraat waar ze zich vastzetten. Dit hele proces vindt plaats in een ultrahoog vacuüm (UHV) van $10^{-9} - 10^{-11}$ Torr (1 Torr = 133,322 Pa) en door van materiaal te veranderen kan men also een multilaag verkrijgen. Voor meer details over MBE technieken zie [3,4].

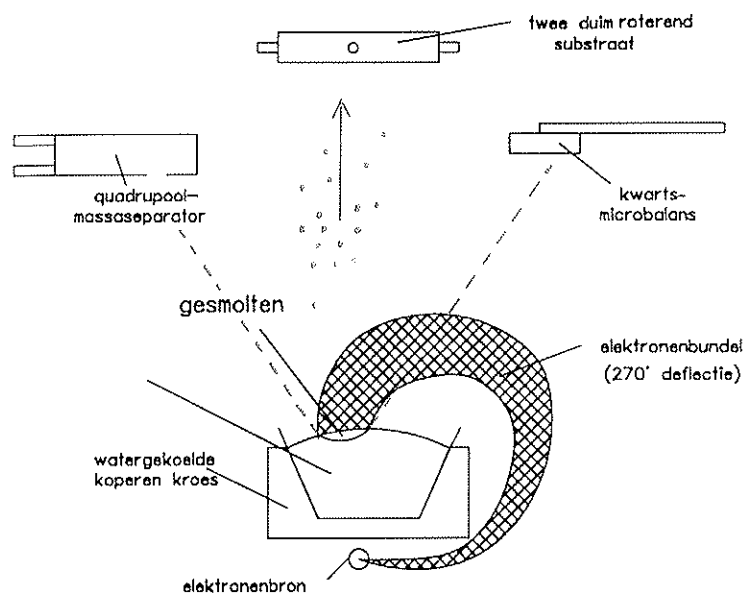


Fig. 1.1 Het principe van MBE.

De in dit werk bestudeerde Fe/Ag multilagen werden vervaardigd in een Riber UHV MBE-systeem. De ijzerlagen werden opgedampt vanuit een elektronenbundelkanon, terwijl de zilverlagen verdamppt werden vanuit een Knudsen-cel waarvan de temperatuur zeer stabiel gehouden wordt. De controle van de Fe verdamping gebeurt

d.m.v. een kwadрупoolmassaspectrometer. Typische verdampingsnelheden waren $1\text{\AA}/\text{s}$ voor Fe en $0.5\text{\AA}/\text{s}$ voor Ag.

1.2 Epitaxiale multilagen en hun grenslaag

1.2.1 Epitaxie

Epitaxiale groei betekent dat de atomen van het groeiende kristal (epilaag) de schikking van de atomen van het substraat, d.i. de laag waarop gegroeid wordt, overnemen. De twee belangrijkste voorwaarden opdat twee materialen epitaxiaal kunnen groeien zijn, dat er vooreerst een overeenkomst moet zijn tussen de kristalvlakken van het substraat en de overlaag die contact maken. Anderzijds moet de misfit m van de roosterparameters kleiner zijn dan een bepaalde kritische waarde [4]. De misfit m wordt gegeven door :

$$m(\%) = 100 \frac{|a(S) - a(O)|}{a(S)}, \quad (1)$$

met $a(S,O)$ de roosterparameter van resp. het substraat en de overlaag. Voor superroosters is de misfit tussen de verschillende materialen van belang daar de misfit met substraat (MgO, GaAs,...) overbrugd kan worden door het groeien van een voldoende dikke gerelaxeerde bufferlaag.

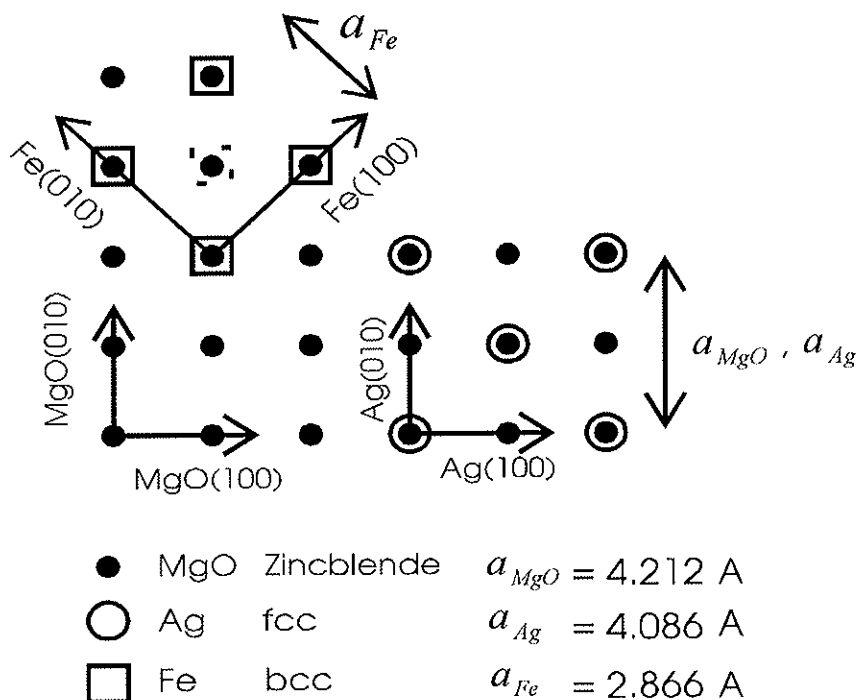


Fig. 1.2 De structurele relaties tussen Fe, Ag en MgO.

Figuur 1.2 toont de roosterparameters en de oriëntaties van het hier beschouwde op MgO gegroeide Fe/Ag superrooster. De misfit tussen Fe en Ag bedraagt 0.8%. De eenheidsceel van Ag en MgO bezitten dezelfde oriëntatie terwijl die van Fe over 45° is gedraaid hetgeen conventioneel wordt uitgedrukt als Ag fcc (001) [100] // Fe bcc (001) [110]. Andere voorbeelden van epitaxiale structuren zijn Cr bcc (001) [100] // Fe bcc (001) [100] met een misfit van 0.65%, Cu fcc (001) [100] // Co fcc (001) [100] met een misfit van 1.7 %.

1.2.2 De grenslaag

Buiten de kwaliteit van de totale structuur heeft ook de ruwheid en het scherp gedefinieerd zijn van de grenslaag een invloed op de eigenschappen zoals de GMR van het systeem. In dit opzicht maakt men onderscheid tussen drie mogelijke manieren van groeien, zie *fig. 1.3*.

- De Volmer-Weber (VW) groei waar er eilandjes of terrasjes van meerdere atoomlagen dik gevormd worden die groter worden, zie *fig. 1.3a*. Deze groei ontstaat wanneer er meer energie vrijkomt bij het binden van een nieuw atoom aan zijn soortgenoten dan aan het substraat, of anders geformuleerd, dat de oppervlakte energie van de groeiende atomen groter is dan die van het substraat waarop de groei gebeurt [5].
- De Frank-van der Merwe (FM) groei waar het materiaal laag per laag groeit en er geen aanzet tot een nieuwe laag gemaakt wordt vooraleer de huidige laag volgroeid is, zie *fig. 1.3b*. Dit verloop is gekend voor de omgekeerde situatie als bij de Volmer-Weber groei nl. wanneer het energetisch gunstiger is de nieuwe atomen met het substraat te koppelen dan onderling. Bij een kleine misfit zullen de eerste atoomlagen de substraatatomen perfect volgen. Dit resulteert in het ontstaan van spanningen (pseudomorfe structuur) hetgeen een verhoging t.o.v. de bulk vrije energie met zich meebrengt die groter is naarmate er meer van dit soort gespannen lagen groeien. Bij een bepaalde kritische dikte wordt het echter energetisch gunstiger dislokaties in te voeren waardoor het systeem kan relaxeren [3].
- De Stranski-Krastanov (SK) groei waar de groei eerst laag per laag gebeurt om daarna over te gaan naar terrasgroei, zie *fig. 1.3c*. Voor een bepaalde dikte zal het energetisch gunstiger zijn over te gaan naar terrasgroei dan de energie te verhogen door de laag per laag groei te volgen en extra spanningen te introduceren [5].

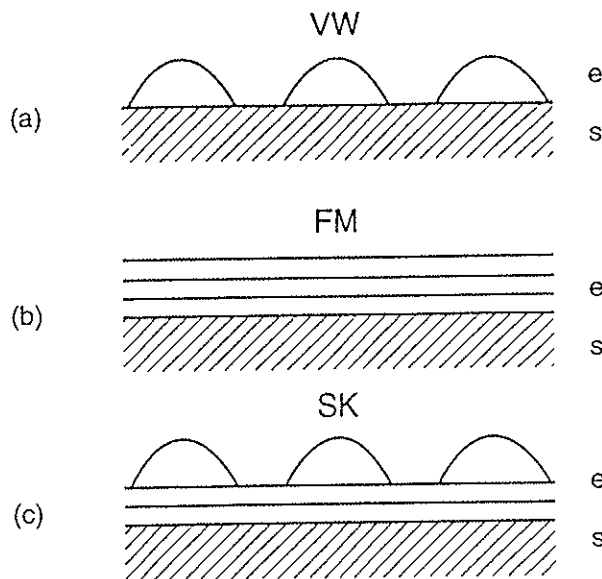


Fig. 1.3 De verschillende manieren van kristallijne groei van de epilaag (e) op het substraat (s).

In het hier bestudeerde geval vindt men een oppervlakte energie van $2.939 \cdot 10^{-4} \text{ Joule/cm}^2$ voor Fe en $1.302 \cdot 10^{-4} \text{ Joule/cm}^2$ voor Ag. Dit voorspelt een ruwere groei van Fe op Ag en een vlakke groei andersom, zie fig. 1.4, zoals ook door de verschillende experimenten zal worden bevestigd. Hierbij is wel de goede set van groeiparameters verondersteld, een te lage substraattemperatuur bv. remt de oppervlaktediffusie welke van essentieel belang is voor epitaxiale groei en een te hoge temperatuur introduceert interdiffusie hetgeen niet bevorderlijk is voor epitaxiale groei [5].

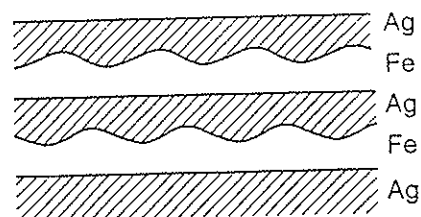


Fig. 1.4 Groei van Fe op Ag en andersom [5].

2 Karakterisatietechnieken en elektrische en magnetische eigenschappen

In dit onderdeel worden bondig de verschillende karakterisatietechnieken behandeld welke aangewend werden om de Fe/Ag multilagen te onderzoeken onmiddellijk na de groei en bij latere behandelingen. Deze latere behandelingen hadden tot doel op een gecontroleerde wijze de structuur en/of kwaliteit van de grensvlakken te modificeren. Hiertoe werd gebruik gemaakt van ionenbestraling en thermische uitgloeijing, welke eerst toegelicht zullen worden.

2.1 Bestraling

Bij bestraling geven de invallende ionen stapsgewijs hun energie af aan het rooster. In de eerste stappen van deze cascade gebeurt de energieoverdracht door botsing met de roosteratomen die hierdoor weggeschoten kunnen worden en dan voor een secundaire bestraling zorgen. Als vervolgens de energie hierdoor gedaald is tot het thermisch (<1keV) regime, worden de fononen aangeslagen en ontstaat er plaatselijk een piektemperatuur [6]. Het effect van deze thermalisatie op intermixing aan een grenslaag is groter dan het mixen door het botsen in de eerste stappen van de cascade. Het is ook vanwege deze reden dat de eerste atoomlagen minder invloed ondervinden van de bestraling dan de dieper gelegen lagen. De drie belangrijkste parameters die het mengproces aan een grenslaag t.g.v. deze thermalisatie beschrijven zijn achtereenvolgens de door het ion overgedragen energie, de roosterenergie en de energie die vrijkomt door het mengen [7,8,9]. Zo verbetert bv. de structuur van een Cu-W multilaag [10] ($\Delta H_f = +36$ kJ/g.mol) hetgeen een sterk niet mengbaar systeem is, voor een lage dosis 300 keV Ar^{2+} ionen terwijl er voor een hoge dosis een beperkt gemengde nanokristallijne structuur ontstaat. Andere reeds bestudeerde bestralingen van multilagen zijn Au-Ni systemen [11] ($\Delta H_f = 11$ kJ/g.mol). XRD toonde aan dat bestraling met dezelfde ionenbundel als hierboven een volledig gemengd kristallijn systeem opleverde. Als laatste voorbeeld hier geven we een Mo-Ni [12] multilaag ($\Delta H_f = -11$ kJ/g.mol) welk na bestraling volledig amorf is. Voor het hier bestudeerde Fe/Ag systeem vindt men een vormingsenthalpie van 39kJ/g.mol en het binaire fazediagram vertoont geen vaste legering [13].

2.2 Uitgloeijing

Bij uitgloeijing wordt het monster gedurende een bepaalde tijd op een hoge temperatuur gebracht. Dit gebeurt in vacuüm om contaminatie zoals oxidatie te beperken. Het verhogen van de temperatuur heeft tot gevolg dat diffusie gestimuleerd

wordt. Voor een beschrijving van dit fenomeen wordt een onderscheid gemaakt tussen verschillende diffusiemechanismen, zie fig. 2.1, zoals oppervlakediffusie (B), diffusie langs korrelgrenzen (A) of dislokatielijnen (C) en zeker niet te vergeten diffusie via interstitiële en onbezette roosterplaatsen (D) (volumediffusie). Elk mechanisme kent zijn eigen diffusiecoëfficiënt die sterk afhankelijk is van de temperatuur [14].

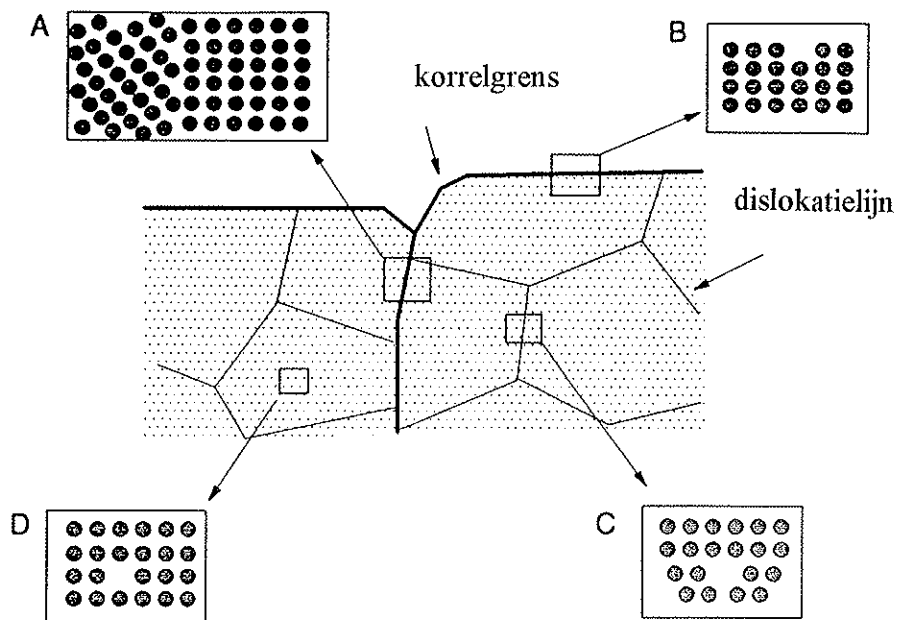


Fig. 2.1 De verschillende diffusiemechanismen.

In systemen met verschillende componenten (interdiffusie) moet men andere factoren zoals o.a. mengbaarheid in rekening brengen. Het effect van uitgløeiing op de structuur van een Fe/Ag multilaag is hier bestudeerd d.m.v. XRD. Een ander reeds bestudeerd voorbeeld is een Ag/Pd multilaag waarvan de componenten een continue serie vaste legeringen vormen. Uitgløeiing (200°C) leidt hier tot het verlies van de gelaagde structuur en er ontstaat een legering naast clusters van Ag en Pd[39]. Bestraling van een multilaag bestaande uit deze componenten gaf een verschillend eindresultaat [14]. Uitgløeiing van Au/Ni multilagen (400°C) gaf enkel clustering van de materialen zonder het vormen van een legering [14]. Tot slot gaf uitgløeiing van een Mo-Ni multilaag een gedeeltelijke maar voor beide materialen verschillende interdiffusie [14]. We zullen nu overgaan tot het bespreken van de verschillende karakterisatietechnieken.

2.2 Reflectie Hoge Energie Elektronen Diffractie (RHEED)

RHEED is een techniek waarbij men onder een lage hoek ($< 5^\circ$) een mono-energetische elektronenstraal laat invallen op het oppervlak van het monster, zie fig. 2.2. Deze bundel wordt gediffracteerd en de uittrede bundel wordt waargenomen op een fluorescerend scherm waar ze verschijnt als verschillende oplichtende vlekken. De energie van de bundel bedraagt 5-50 keV wat overeenkomt met een golflengte van 0.17-0.05 Å voor de elektronen. Daar de elektronen in deze lage hoek geometrie niet ver indringen, kan men uit de intensiteiten en de ligging van de verschillende vlekken informatie halen over de bovenste atoomlagen van het monster. Het is daarom een techniek die in-situ gebruikt wordt om de groei van het monster in de MBE te controleren.

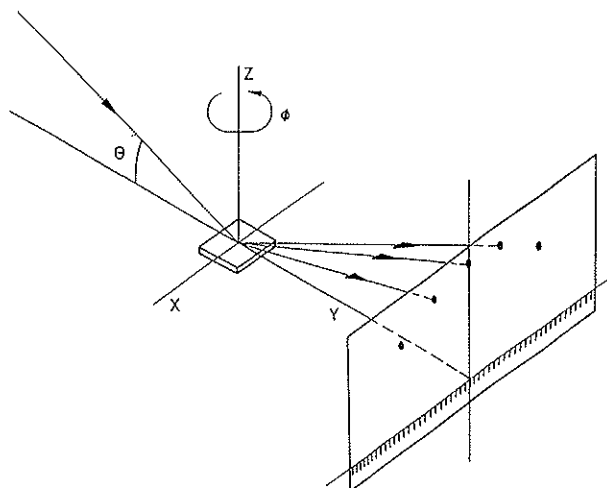


Fig 2.2. Schematische voorstelling van de RHEED opstelling.

Een goede kwalitatieve analyse van het diffractiepatroon wordt bekomen door de kinematische beschrijving, d.w.z. men veronderstelt een éénmalige elastische verstrooiing voor elk elektron. Voor een kwantitatieve analyse daarentegen moet men een dynamische theorie met inelastische effecten introduceren. Deze is complex en het is zo dat er zelfs heden ten dage nog geen goed ontwikkelde microscopische beschrijving van dit fenomeen is. Het principe van de diffractie is hetzelfde als voor X-stralen met enkele aanpassingen vanwege het gedeeltelijke 2D-karakter van het diffractieproces waardoor de vlekken een langgerekte vorm krijgen [3].

De meest toegepaste manier waarop men met R.H.E.E.D. informatie haalt over de laatst gegroeide lagen bestaat eruit dat er een correlatie is tussen de oppervlakteruwheid en de intensiteitsdistributie van de vlek. Zo neemt men bijvoorbeeld oscillaties waar in de intensiteit van één speculaire vlek tijdens een Frank

van der Merwe groei. De periode van de oscillatie komt overeen met het groeien van één monolaag. Men moet hier wel de opmerking maken dat een materiaal niet altijd laag per laag moet groeien. Andere groeiwijzen eisen hun eigen interpretatie van de intensiteitsvariaties [15,16]. Indien men dan over de nodige randapparatuur beschikt, kunnen er meerdere vlekken in rekening worden gebracht.

Recent werd er het gebruik van een azimuthale meting naar voor geschoven [17] om de groei te controleren. Bij zo'n meting wordt de intensiteit van een vlek gevolgd terwijl het monster roteert. De intensiteit vertoont dan pieken en dalen die het gevolg zijn van het dynamisch en inelastisch karakter van de verstrooiing. Deze variaties zijn zeer gevoelig aan de kwaliteit van het monster. Tot slot kan net zoals bij X-stralendiffractie een θ - 2θ geometrie gebruikt worden om op dezelfde wijze informatie te verkrijgen over de toplaag. Dit is net zoals de azimuthale meting evenwel nog geen standaardtechniek.

2.2 Atomic Force Microscopy (AFM)

AFM is een techniek om het oppervlak van een monster in kaart te brengen en is een variant van de beter gekende Scanning Tunneling Microscopy (STM). Het belangrijkste voordeel van AFM vergeleken met STM is dat het oppervlak niet geleidend moet zijn. De resolutie bij AFM (< 1 nm) is daarentegen wel iets lager dan bij STM (< 1 Å). Het principe wordt aan de hand van *fig. 2.3* uitgelegd.

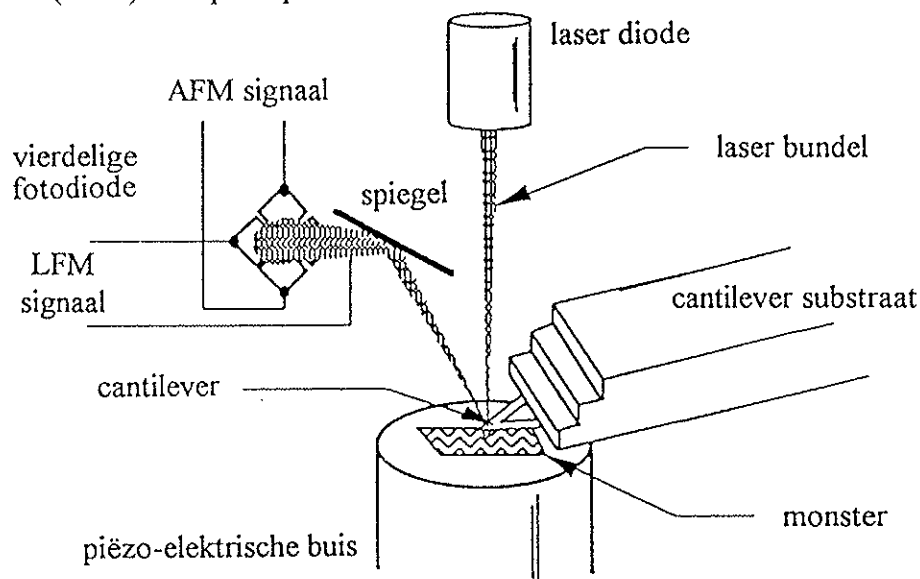


Fig.2.3 Het principe van AFM

Een pyramide-vormige tip die bevestigd is aan een zeer flexibele cantilever beweegt over het oppervlak van het monster. De hoogte van de tip boven het monster wordt geregeld d.m.v. een piëzokristal. Op de cantilever valt een laserstraal in die door de tip

gereflecteerd wordt en via een spiegel naar een split-diode-foto-detector geleid wordt. Door de krachten tussen de tip en de atomen in het oppervlak van het monster zal de tip een buiging ondergaan. Als de kracht verandert door bv. een oneffenheid op het oppervlak zal de laserstraal hierdoor op een andere plaats op de detector invallen. Dit signaal wordt als feedback gebruikt om de piëzo te sturen zodat de buiging constant blijft. Indien enkel de hoogteverschillen de kracht beïnvloeden, bekomt men alzo een nauwkeurig hoogteprofiel van het oppervlak. *Figuur 3.2* toont een scan van het zilveroppervlak van een Fe/Ag bilaag, gegroeid op MgO. Voor elke scan zijn er $256(x\text{-as}) \cdot 256(y\text{-as})$ punten opgemeten. Na het invoeren van een correctie t.g.v. de helling van het monster kan de ruwheid berekend worden volgens :

$$\sigma_{ms} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N}}. \quad (2)$$

Het aantal punten waarover de ruwheid berekend wordt, is gegeven door N . Voor een volledige scan is $N = 256^2$. De ruwheid kan ook berekend worden voor een bepaald vierkant gebied binnen het venster van één scan, N is dan het aantal punten binnen dit vierkant. Samen met de hoogte x_j voor deze punten kan dan de gemiddelde hoogte \bar{x} en de spreiding σ_{ms} hierop berekend worden, wat een maat is voor de ruwheid. Dit wordt vervolgens voor verschillende lengteschalen gedaan om te kijken hoe de ruwheid hierover varieert. De maximale scangrootte van de gebruikte opstelling is $12 \mu\text{m}$ en minimaal 1nm [14].

2.3 Rutherfordterugverstrooiing (RTS)

RTS is een niet destructieve meetmethode die toelaat een kwantitatieve analyse van de samenstelling versus diepte te maken. De techniek is als volgt : men laat een bundel mono-energetische α -deeltjes loodrecht invallen op het monster, zie *fig. 2.4*.

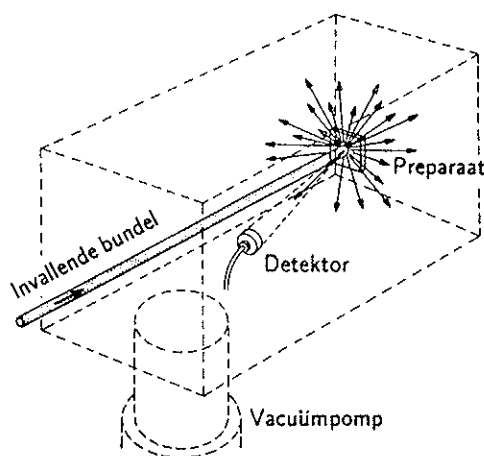


Fig. 2.4 Schematische voorstelling van Rutherfordterugverstrooiing.

Door de coulombinteractie met de kern van een doelwitatoom zal het α -deeltje verstrooid worden. Daar het monster meestal te dik is voor transmissiedetectie, wordt de detector voor het monster geplaatst om de terugverstrooiing waar te nemen. Zowel de energie als het aantal terugverstrooide deeltjes wordt geregistreerd. Zich baserend op een aantal fysische principes kan men dan een diepteprofiel van de samenstelling opstellen. Deze principes worden in het kort toegelicht. Voor meer uitleg zie [18].

Vooreerst draagt het α -deeltje energie over bij de botsing met het doelwitatoom. Dit energieverlies is mede door de massa van het doelwitatoom bepaald. Hoe groter de massa van het doelwitatoom hoe kleiner het energieverlies. Zodoende kan hieruit bepaald worden door welk soort atoom het deeltje verstrooid werd. Het verband tussen de invallende en de uittredende energie van het α -deeltje wordt gegeven door de kinematische factor K :

$$K = \frac{E_1}{E_0}, \quad (3)$$

welke naast de verstrooiingshoek afhankelijk is van de massa's van het doelwitatoom en het ion. Ten tweede staat het aantal gedetecteerde deeltjes van een bepaalde energie in relatie tot het aantal verstrooiende doelwitatomen. Hieruit kan de concentratie berekend worden. Het verband wordt gegeven door de Rutherfordformule, via de werkzame doorsnede in een centraal krachtenveld :

$$\sigma(\theta) = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right]^2 \frac{1}{\sin^4(\theta/2)}. \quad (4)$$

Hierin is θ de verstrooiingshoek, Z_1 en Z_2 de resp. atoomnummers van de botsende kernen en E de bundelenergie. Merk op dat de kans op verstrooiing kwadratisch toeneemt voor een lagere bundelenergie. Tot slot zal het α -deeltje vooral door excitatie en ionisatie van de elektronen van de doelwitatomen afremmen. Dit energieverlies is groter naarmate de verstrooiing dieper gebeurde en laat toe een diepteprofiel van de samenstelling te maken.

Naast deze principes wordt gebruik gemaakt van een ander fenomeen dat optreedt in goede kristallijne structuren indien de invallende bundel gealigneerd is volgens een kristalrichting, zie *fig. 2.5*. De pijlen stellen de inkomende α -deeltjes voor en de bolletjes stellen atomen volgens een kristalrichting voor. In deze geometrie worden de α -deeltjes gekanaliseerd volgens de structuur van het doelwit en men spreekt dan ook van kanalisatie. Het aantal terugverstrooide deeltjes (de opbrengst) zal hierdoor lager zijn dan voor een willekeurige richting. Met inbegrip van een aantal andere effecten kan dan vervolgens uit een gealigneerde meting en een willekeurige een maat voor de kwaliteit van het kristal worden bepaald. Hierop zal men later terugkomen bij het bespreken van de resultaten.

Tot slot kan men het bekomen spektrum simuleren met een computerprogramma RUMP om meer informatie te bekomen. De behaalde resolutie is naast de detector (de detectorresolutie bedraagt 15 keV) afhankelijk van andere factoren zoals het monster zelf en de oriëntatie waaronder de meting gebeurt. Ze is van de orde van 10\AA [18,19,20].

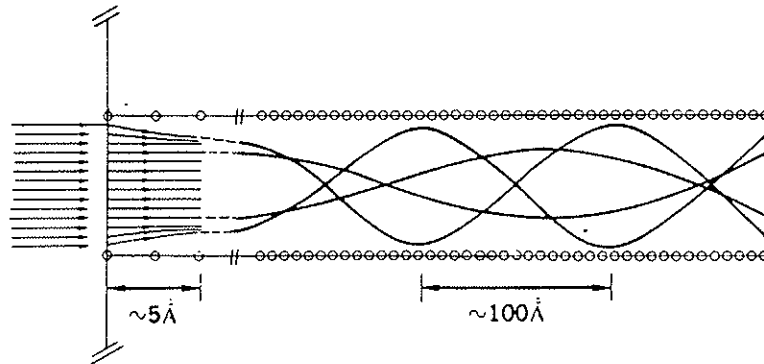


Fig. 2.5 Schematische voorstelling van kanalisatie.

2.6 X-stralen diffractie (XRD)

XRD is één van de meest gebruikte technieken voor karakterisatie. Het principe is dat een elektromagnetische golf ($\lambda = 0.1-10 \text{\AA}$) invalt op het monster en hierdoor gediffracteed wordt. Dit diffractiepatroon vertoont pieken in intensiteit die gekenmerkt worden door hun positie, breedte en hoogte.

Het welgekende fazeprobleem in XRD noodzaakt er toe andere bronnen van informatie aan te spreken voor een volledige structuurbepaling. In het bestudeerde geval is er voldoende informatie beschikbaar uit het groeien van het monster zoals o.a. de gebruikte materialen, de dikte (bij benadering), RHEED,...

De metingen zijn gedaan op een Rigaku DMax II Roterende Anode Diffractometer in de Bragg-Brentano configuratie. De gebruikte straling is de $\text{Cu}K_{\alpha}$ -straling met een golflengte van 1.541\AA . Voor de metingen zijn drie standaardconfiguraties gebruikt, nl. de $\theta-2\theta$ geometrie, de rocking curve of ω -scan en de offscan mode [14,21]. Voor de achtergrond van de diffractievoorwaarden zoals de Braggwet :

$$2d\sin\theta = n\lambda, \quad (5)$$

de Lauevoorwaarden, de Ewaldsfeer en de relatie tussen fotonen en vlakke golven verwijs ik naar de volgende werken [14,21,22,23]. In de volgende hoofdstukken zal gebaseerd op deze kennis het diffractiepatroon van een superrooster stapsgewijs worden opgebouwd. Er is hiervoor altijd een $\theta-2\theta$ configuratie aangenomen.

2.6.1 Een enkelvoudige kristallijne laag.

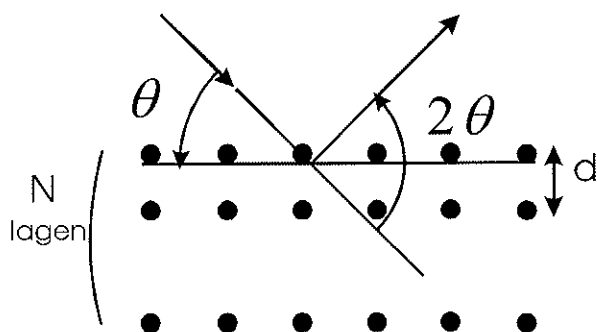


Fig.2.6 Een enkelvoudige kristallijne laag.

Men beschouwt een kristallijne film opgebouwd uit N atoomlagen, zie fig 2.6. De intensiteit in een bepaalde richting 2θ wordt gegeven door :

$$I(q) = \frac{\sin^2(Nqd/2)}{\sin^2(qd/2)} \quad \text{met} \quad q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta. \quad (6)$$

Voor N lagen vindt men dat de hoogte van de hoofdmaxima evenredig is met N^2 en de breedte omgekeerd evenredig is met N [22]. Figuren 2.7a,b,c tonen het diffractiepatroon van een enkelvoudige kristallijne laag bestaande uit resp. ∞ , 5, 20 atoomlagen.

Tussen twee opeenvolgende hoofdmaxima ontstaan er $N-2$ nevenmaxima en $N-1$ minima. De posities van de secundaire maxima worden gegeven door $2d\sin\theta = ((2h+1)/2N)\lambda$ en voor de minima door $2d\sin\theta = (h/N)\lambda$ met h een natuurlijk getal. Indien men zich verwijderd van het hoofdmaxima neemt hun hoogte in benadering af volgens $1/20$, $1/60$, $1/120$, $1/200$ van de intensiteit van de hoofdmaxima hetgeen omgekeerd evenredig is met de opeenvolgende oneven getallen 1, 3, 5, 7, Het verloop van deze secundaire maxima in de figuren 2.7a,b,c toont aan dat ze het gevolg zijn van een eindig aantal atoomlagen. Daarom spreekt men van een finite size effect. De tussenliggende pieken worden dan ook finite size pieken of Kiessigfranjes genoemd.

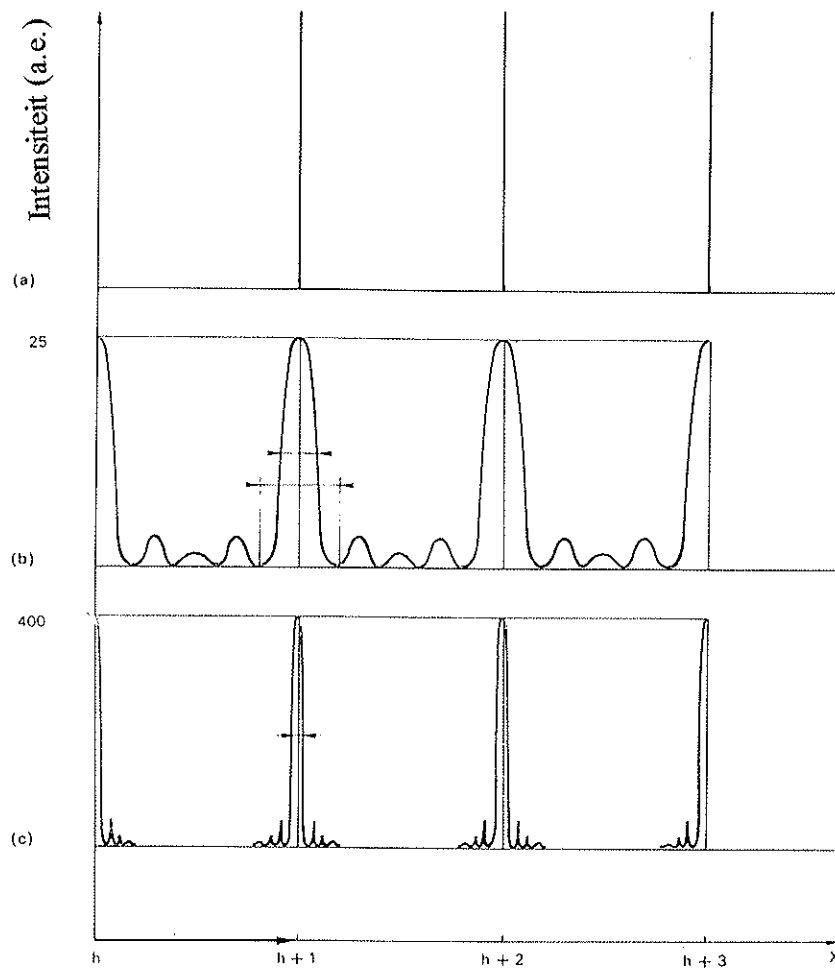


Fig. 2.7 Het diffractiepatroon van een enkelvoudige kristallijne laag met resp. a) ∞ , b) 5, c) 20 atoomlagen

2.6.2 Lage hoek en hoge hoek.

In het spectrum van het superrooster moet men het onderscheid maken tussen het lage hoek (L.H.) en het hoge hoek (H.H.) gedeelte, zie fig. 3.6. De getallen bij de pieken duiden de orde aan in L.H. en de relatieve positie t.o.v. de nulde orde piek in H.H. (hoofdstuk 2.3.4). Het hoge hoek gedeelte kan beschreven worden door de kinematische theorie. De intensiteiten kunnen dan berekend worden gebruik makende van de volgende formule [24] :

$$I(\theta) = C \cdot P(\theta) \cdot L(\theta) \cdot G(\theta) \cdot |F(\theta)|^2, \quad (7)$$

waarin $P(\theta) = [1 + \cos^2(2\theta)]/2$ de polarisatiefactor, $L(\theta) = 1/\sin(2\theta)$ de

Lorentzfactor, $G(\theta) = 1/\sin(\theta)$ de geometrische factor, en C een schaalfactor is. $|F(\theta)|^2$ is de structuurfactor die de interferentie t.g.v de periodische structuur onder een bepaalde hoek vertolkt. Om lage hoek te beschrijven is het nodig gebruik te maken van een dynamische theorie. De reden hiervoor is enerzijds dat X-stralen die invallen onder een hoek die kleiner is dan $\theta_c = (2\delta)^{1/2}$, met δ de brekingsindex die gegeven wordt door $n = 1 - \delta - i\beta$ (het imaginaire gedeelte beschrijft de absorptie), totaal gereflecteerd worden. En anderzijds worden de fotonen, indien de invalshoek groter is dan θ_c , meerdere malen verstrooid. Parratt [25] gaf een recursief formalisme dat buiten de diffractievoorwaarden gebruik maakt van de brekingsindex om het diffractiepatroon van een dunne laag bestaande uit meerdere lagen te bereken, welk hier ook gebruikt is in de computersimulaties voor L.H. (hoofdstuk 2.6.4). In de volgende hoofdstukken zal men het vooral over het hoge hoekspectrum hebben.

2.6.3 Het ideale geval

Een ideaal superrooster wordt beschreven door het stapmodel, zie fig. 2.8. Het stapmodel veronderstelt een oneindig dunne grenslaag en geen variatie op de bilaagdikte Λ . Tevens zijn de lagen perfect kristallijn en zonder spanningen.

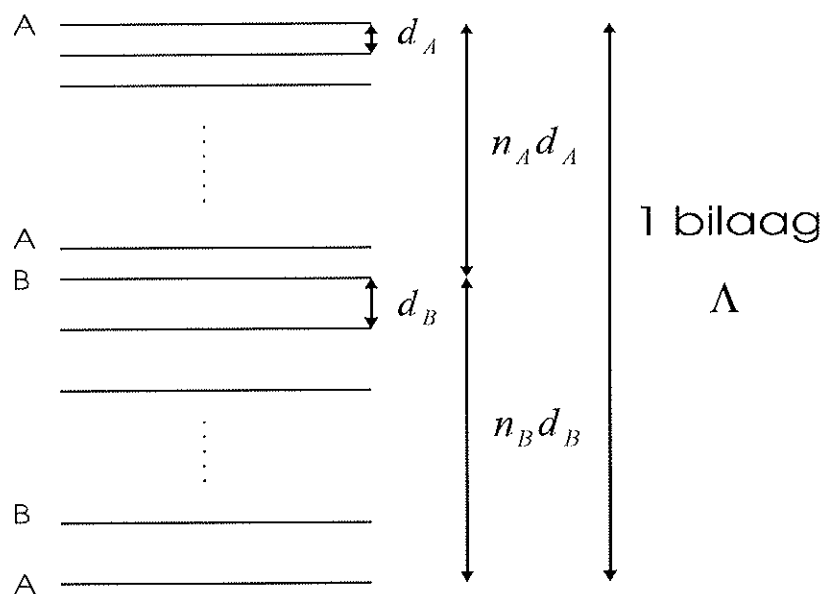


Fig. 2.8 Een bilaag in het stapmodel.

De intensiteit in de richting 2θ wordt gegeven door onderstaande formule :

$$I(\theta) = C \cdot P(\theta) \cdot L(\theta) \cdot G(\theta) \cdot \left| \sum_{k=0}^{N-1} \exp(ik\Lambda s) \right|^2 \cdot \left| \sum_{j=1}^{n_A+n_B} f_j \sigma_j \exp(ix_j s) \right|^2, \text{ met } s = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} \quad (8)$$

De eerste vier factoren samen zorgen buiten de absolute grootte ook voor een intensiteitsdaling bij toenemende θ , zie *fig. 2.9a* waar de opbouw van het diffractiepatroon gebeurt aan de hand van een Fe/Ag superrooster bestaande uit 5 bilagen. Merk op dat de nadruk op de kwalitatieve interpretatie ligt in deze figuur en niet op de kwantitatieve. De tweede factor geeft de modulatie weer van de bilaagperiodiciteit Λ , zie *fig. 2.9b*. (zie ook hoofdstuk 2.6.1 en Fig. 2.7). Deze modulatie is zowel in hoge hoek als in lage hoek te zien. De derde factor is de diffractie ten gevolge van 1 bilaag. Deze zorgt voor een intensiteit rondom de twee materiaalpieken waaruit de bilaag bestaat, zie *fig. 2.9c*.

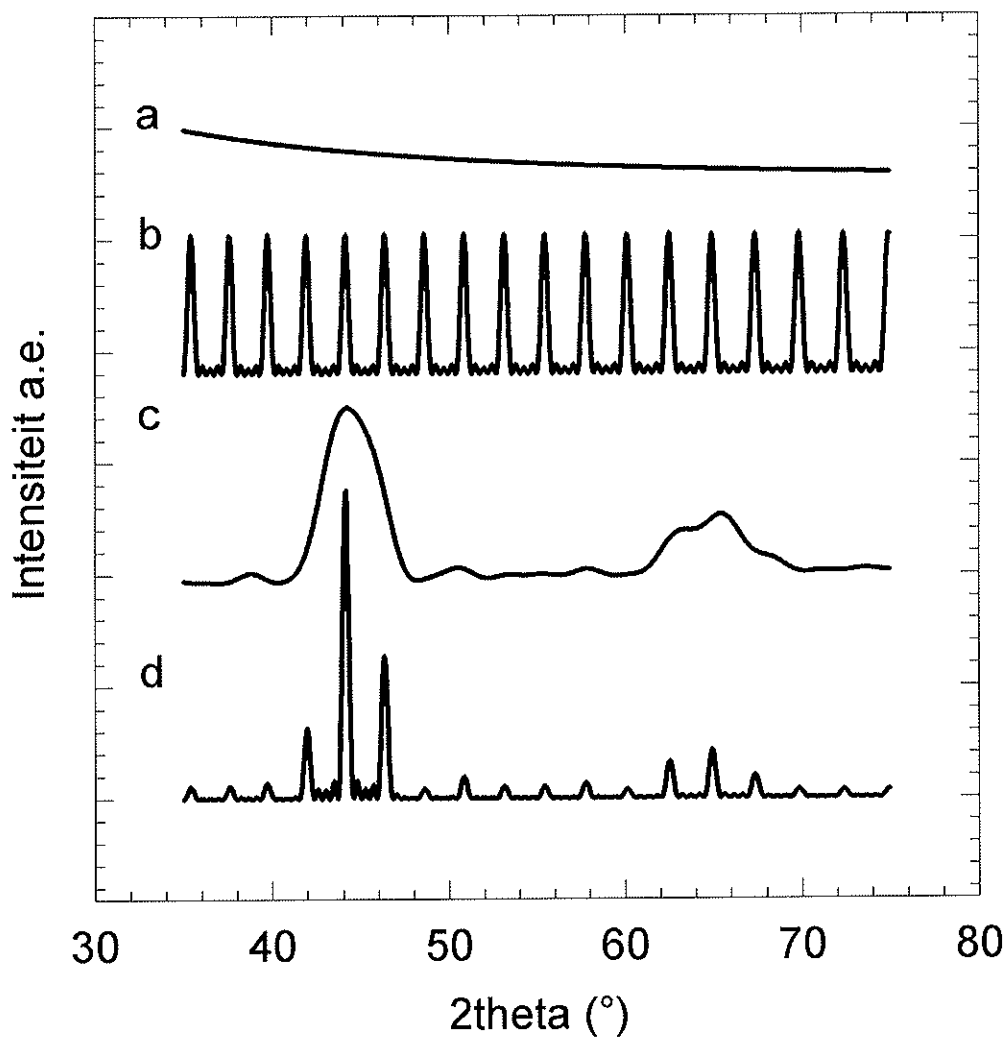


Fig.2.9 Opbouw van het H.H. diffractiepatroon van een superrooster.

Er is een intensiteit rond de Fe(001) en Ag(001) reflectie voor resp. $2\theta = 44.3^\circ$ en 65° . Het relatief hoogte verschil van deze pieken wordt bepaald door het verschil in verstrooiend vermogen tussen de twee lagen. Het is niet correct deze factor te zien als een superpositie van twee maal een enkelvoudige kristallijne laag vanwege interferentieverschijnselen tussen de lagen. Het is wel interessant zoals *fig. 3.9* aantoonde eens verder in te gaan op deze interferentieverschijnselen.

Tot slot toont *fig. 2.9d* het product van de drie factoren. De modulatielengte Λ kan dan rechtstreeks berekend worden via de Braggwett. Voor lage hoek moet men tot $2\theta \cong 6^\circ$ een correctie t.g.v de refractie invoeren : $(2\Lambda \sin \theta_n)^2 = (n\lambda)^2 + 2\delta$. Voor superroosters moet een gewogen gemiddelde genomen worden. Deze correctie kan geëlimineerd worden door de vergelijking op te schrijven voor twee hoeken. Men bekomt dan voor $n > m$:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2} \left[\frac{n^2 - m^2}{\sin^2 \theta_n - \sin^2 \theta_m} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (9)$$

Indien de orde niet gekend is zoals o.a. in hoge hoek kan de modulatielengte berekend worden uit twee hoeken, voor $n > m$:

$$\Lambda = \frac{\lambda(n-m)}{2(\sin \theta_n - \sin \theta_m)}. \quad (10)$$

In beide gevallen is het natuurlijk beter n, m niet vlak na mekaar te nemen en bij het tellen van het verschil $n-m$ moet gelet worden op eventueel niet zichtbare pieken.

2.6.4 Computerprogramma's

Wil men meer kwantitatieve informatie bekomen, dan moet men gebruik maken van computerprogramma's om het spectrum te simuleren of te fitten. Zo kan men d.m.v simulatie n_A en n_B bepalen, of correcter \bar{n}_A en \bar{n}_B (zie verder 2.6.5) daar de structuur niet perfect is. Dit kan door de nulde-orde piek in hoge hoek te zoeken. Voor deze piek geldt :

$$2 \left(\frac{\bar{n}_A d_A + \bar{n}_B d_B}{n_A + n_B} \right) \sin \theta = n\lambda. \quad (11)$$

Hierin is 'd' dus de gemiddelde roosterafstand in een bilaag. Tevens geldt $\Lambda = \bar{n}_A d_A + \bar{n}_B d_B$. Λ is gekend (zie 2.6.3) en voor θ zijn de mogelijkheden beperkt. Dit stelsel van twee vergelijkingen en twee onbekenden \bar{n}_A en \bar{n}_B , kan opgelost worden

voor de verschillende mogelijkheden. Daar het diffractiepatroon sterk verschilt voor de verscheidene resultaten kan men door simulatie de juiste \bar{n}_A en \bar{n}_B selekteren.

In *fig. 2.10a,b* wordt het experimenteel opgemeten diffractiepatroon van een $[\text{Fe}(18\text{\AA})/\text{Ag}(25\text{\AA})]_{20}$ multilaag vergeleken met het berekende ideale model. Het ideale model volstaat niet voor de interpretatie van het diffractiepatroon. Dit komt doordat het reële superrooster een aantal imperfecties vertoont die in het volgende hoofdstuk meer worden toegelicht. In dit geval is de interpretatie volledig gebaseerd op computersimulaties en -fittings. De gebruikte computerprogramma's zijn Suprex [26] en Slerf [27] welke onafhankelijk van mekaar zijn ontwikkeld. De imperfecties kunnen d.m.v. een aantal parameters beschreven worden, *zie fig. 2.11*. Het verschil tussen de twee programma's zit in de manier waarop ze deze parameters gebruiken. Suprex maakt gebruik van analytische formules waarin deze parameters zijn opgenomen.

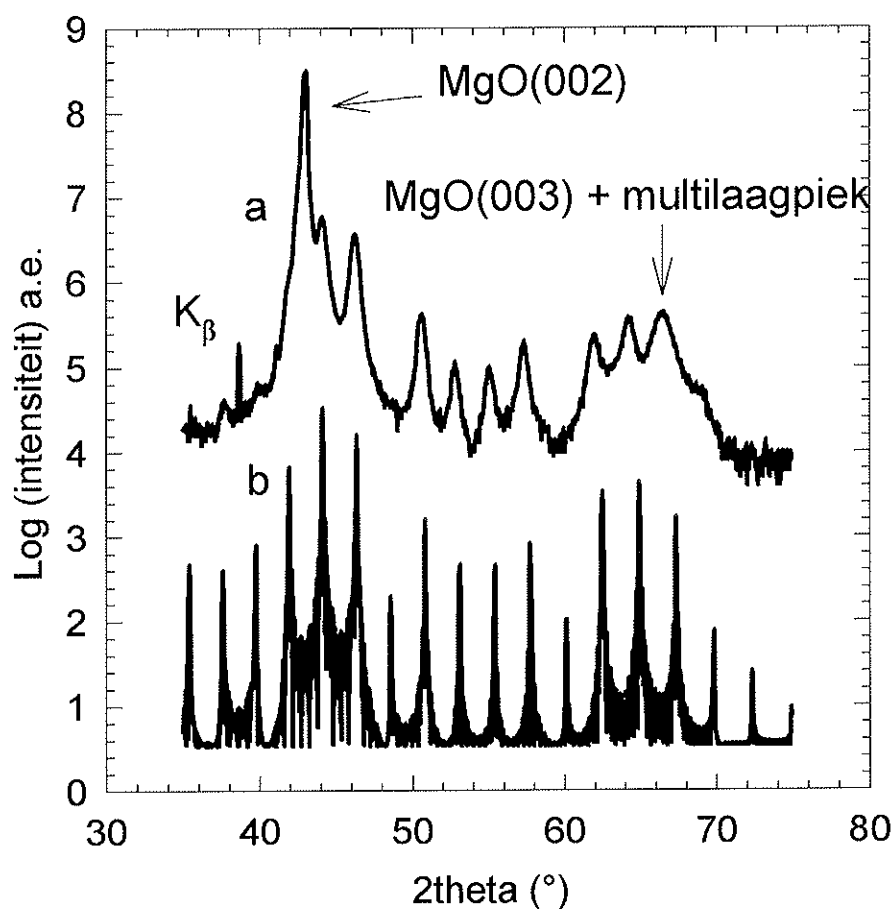


Fig. 2.10 a) experimenteel, b) ideaal.

Parameters die een statistisch fenomeen vertolken zoals \bar{n}_A , \bar{n}_B worden in een analytische formule gebracht d.m.v. een genormeerde integraal te nemen over de verschillende mogelijkheden met elk hun waarschijnlijkheid. Vanwege deze statistische aard van sommige parameters kan men deze ook in het diffractiepatroon inbrengen door Monte-Carlo simulatie, dit gebeurt in Slerf. Suprex behandelt H.H en L.H., laat simulaties voor beide toe en fittingen in hoge hoek. Slerf daarentegen simuleert enkel H.H. maar is gebruiksvriendelijker.

2.6.5 De invloed van imperfecties op de structuur.

Een aantal imperfecties zoals interdiffusie, korrels en hun grenzen, grenslaagruwheid en spanningen zijn de oorzaak van het verschil tussen het experimentele en het ideale diffractiepatroon, zie fig. 2.11.

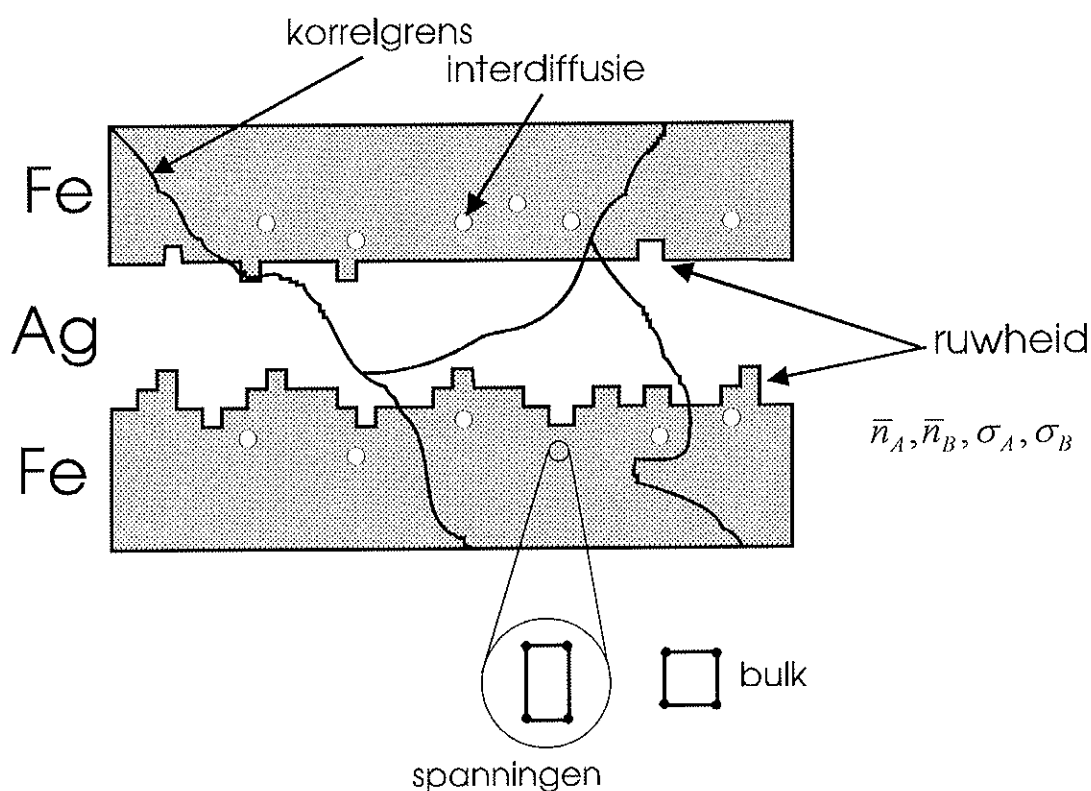


Fig. 2.11 Schematische voorstelling van de imperfecties in een multilaag.

a) De invloed van de korrelgrenzen.

Allereerst bespreekt men de invloed van korrels, zie fig. 2.11. Door een korrelgrens te introduceren, ontstaat er een extra weglengteverschil tussen de elektromagnetische golven. Dit fazeverschil is willekeurig vanwege de structuur van een korrelgrens.

Indien men aanneemt dat er voldoende korrels zijn om een statistische benadering mogelijk te maken, dan toont onderstaande berekening aan dat de waargenomen intensiteit afhankelijk is van de structuur binnen één korrel, zie fig. 2.12 :

Voor de verstrooiing aan een structuur bestaande uit N punten geldt in het algemeen :

$$F(\vec{q}) = \sum_{j=1}^N f_j(\vec{q}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_j}, \quad \vec{q} = \vec{k}' - \vec{k}. \quad (12)$$

Stel ter vereenvoudiging de atomaire verstrooiingsfactor $f_j(\vec{q}) = A_j = A$. Voor de geometrie in fig. 2.12a vindt men $i\vec{q} \cdot \vec{r}_j \rightarrow iqx_j$ met $q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta$ en $x_j = kd$ met k natuurlijk en $0 < k < N+1$. Beschouw nu de richting voor constructieve interferentie $\sin \theta = \frac{n\lambda}{2d}$.

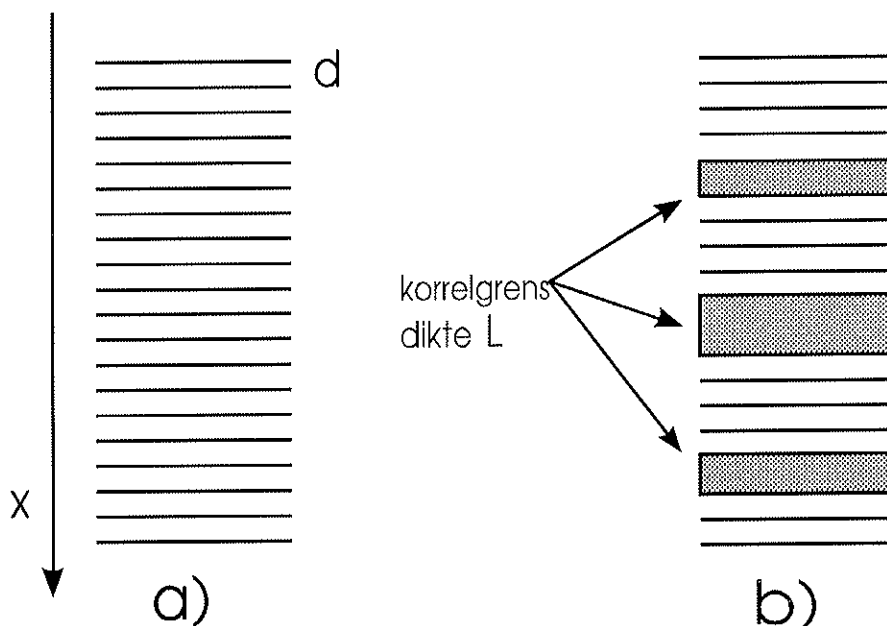


Fig. 2.12 Schematische voorstelling van de korrelgrenzen.

Men vindt dat

$$F(\vec{q}) = \sum_{j=1}^N A_j, \quad (13)$$

hetgeen betekent dat voor constructieve interferentie de waargenomen amplitude de som is van de amplitudes van de interfererende golven. Introduceer nu een aantal korrels G van dezelfde grootte N/G en aanleiding gevend tot een willekeurig fazeverschil φ_j , veroorzaakt door de dikte van de korrelgrens zie fig. 2.12b:

$$F = \sum_{j=1}^G K_j e^{i\varphi_j} \quad \text{met} \quad K_j = K = \sum_{p=1}^{N/G} A_p. \quad (14)$$

De waargenomen intensiteit is dan :

$$I = |F|^2 = GK^2 + \sum_{j \neq p} K^2 e^{i(\varphi_j - \varphi_p)}. \quad (15)$$

Vanwege het willekeurige fazeverschil blijft alleen de eerste term over. De waargenomen intensiteit bestaat dus uit G maal de intensiteit verstrooid door één korrel. Dit impliceert een verlaging : $G(NA/G)^2 < (NA)^2$ en een verbreding (zie 2.6.1) van de piek. Het effect is vooral waarneembaar in hoge hoek. In lage hoek is $|\vec{q}|$ klein en het fazeverschil $L^*|\vec{q}|$ dus ook. Dezelfde theorie kan ook toegepast worden op andere objecten die dezelfde periodiciteit bezitten en niet noodzakelijk coherent verstrooien. Een voorbeeld kan gezocht worden in de lagen van éénzelfde materiaal. Voor een perfect epitaxiale laag van een voldoende verstrooiend materiaal zijn enkele tientallen Angstrom nodig vooraleer de piek van de achtergrond te onderscheiden is [28].

b) De invloed van ruwheid.

Ruwheid is een andere afwijking die te wijten is aan fluctuaties in het aantal gegroeide monolagen van het laatst gegroeide materiaal. De vlakheid van de groei is o.a. materiaalafhankelijk (hoofdstuk 1.2.2) en noodzaakt daartoe twee soorten ruwheid te introduceren, *fig 2.11*. Hierin zijn \bar{n}_A, \bar{n}_B het gemiddeld aantal gegroeide monolagen van resp. materiaal A,B. De ruwheid na het groeien van een laag A,B wordt gegeven door σ_A, σ_B welke verwijzen naar de breedte van een discrete gaussische spreiding. Wat de invloed op het diffractiepatroon is wordt door *fig. 2.13 a,b,c* verduidelijkt. De figuren zijn gemaakt d.m.v. computersimulatie. Een verhoging van de ruwheid van materiaal A doet de multilaagpieken rond B verbreden en andersom. Voor de verklaring verwijs ik naar [21]. Voor verhoging van beide ruwheden neemt men beide effecten waar. Merk op dat deze ruwheid vooral de pieken aantast die zich verder van de nulde-orde piek bevinden. Dit is net zoals in L.H. waar ook de hogere orde pieken eerder zullen worden aangetast. Intuïtief kan in beide gevallen de invloed van ruwheid gezien worden als een superpositie van diffractiepatronen met een verschillende dikte Λ voor de bilaag. Het is juist de grootte van Λ die de positie van de hogere orde pieken in L.H. en in de pieken rond de nulde-orde piek in H.H. bepaalt. Fluctuaties op Λ zullen deze pieken doen verschuiven waardoor een verbreding ontstaat.

c) De invloed van interdiffusie.

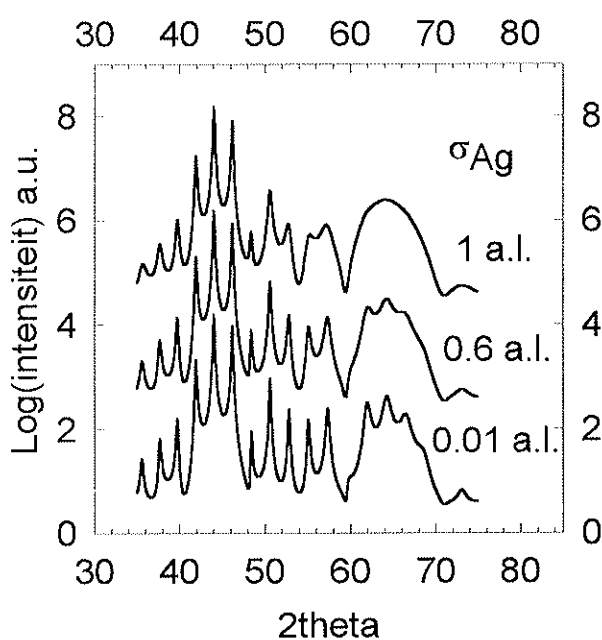
Een ander proces is interdiffusie aan de grenslaag, *zie fig. 2.11*. Het effect van interdiffusie op het diffractiepatroon is voornamelijk het veranderen van de relatieve intensiteiten van de pieken. De computersimulaties, *fig. 2.13d*, tonen aan dat de

intensiteit uiteindelijk verschoven wordt (totale intensiteit is constant) naar de reeds eerder vernoemde nul-de-orde piek. Dit kan begrepen worden door het limietgeval te bestuderen. Bij volledige interdiffusie heeft men een homogene legering met een gemiddelde roosterafstand. Volgens formule (11) geeft diffractie van deze afstand de positie van de nulde-orde multilaagpiek.

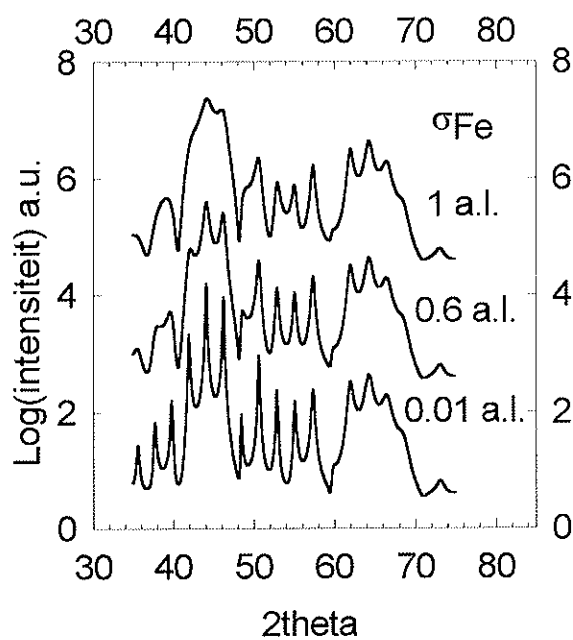
d) De invloed van spanningen.

Een laatste punt zijn spanningen. Daar er een horizontale roostermisfit is kunnen de materialen niet de bulkwaarden aannemen. Dit resulteert in een aanpassing van de verticale interatomaire afstand opdat het volume van een eenheidscel niet sterk zou veranderen. De pieken in het diffractiepatroon kunnen hierdoor verschoven worden. De horizontale misfit vindt vooral plaats aan de grenslagen. Naarmate men meer groeit van een materiaal kan het systeem relaxeren.

De invloed van dit effect is meestal klein op het diffractiepatroon.



a)



b)

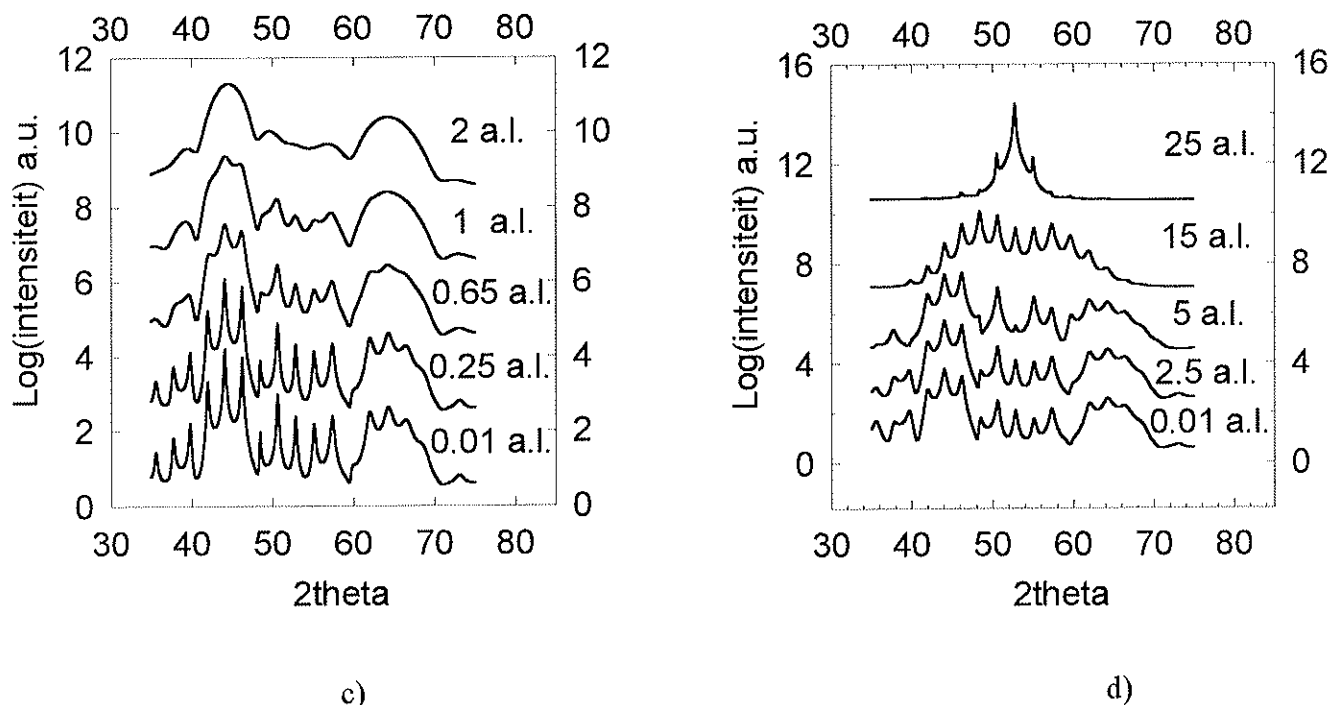


Fig. 2.13 Invloed van de ruwheid van a) zilver, b) ijzer, c) zilver en ijzer op het diffractiepatroon. In figuur d wordt het effect van interdiffusie gesimuleerd. De hoeveelheid wordt in atoomlagen (a.l.) uitgedrukt.

2.7 Alternating Gradient Magnetometry (AGM)

Voor het opmeten van de magnetisatiecurve heeft men gebruik gemaakt van de wisselende gradiënt magnetometrie, beter gekend als AGM. Deze magnetisatiecurve is interessant om de ferromagnetische en de antiferromagnetische gekoppelde fractie te bepalen waarvan de magnetoweerstand (zie verderop 2.9) sterk afhankelijk is. Ook kan men de evolutie van andere parameters die deze curve karakteriseren volgen tijdens uitgløeiing en bestraling.

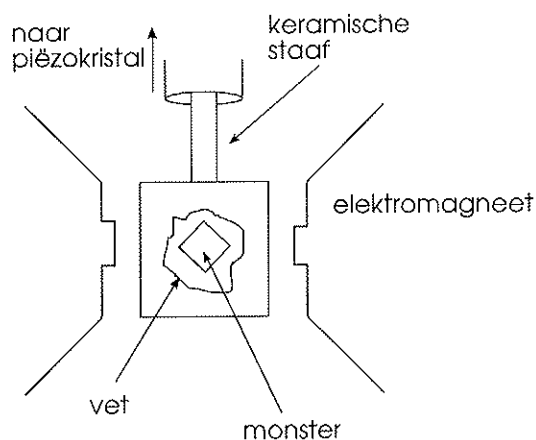


Fig. 2.14 Schematische voorstelling van de AGM opstelling.

Het principe is analoog aan een klassieke schommel. Het monster ($1 - 4 \text{ mm}^2$) bevindt zich tussen de poolschoenen van een elektromagneet, zie fig. 2.14. Het is met een magnetisch neutraal vet gekleefd op een keramische staaf die zelf gemonteerd is aan een elektrisch element dat een piëzokristal bevat. Met een d.c. veld wordt het monster gemagnetiseerd. Bovenop dit d.c. veld legt men een wisselend (a.c.) gradiëntveld (15 Oe/mm) aan met dezelfde frequentie als de resonantiefrequentie ($300 - 600 \text{ Hz}$) van het systeem dat zowel staaf als het monster bevat. Het gemagnetiseerde monster ondervindt hierdoor een wisselkracht waardoor het heen en weer beweegt, zie berekening :

\vec{M} , \vec{H} , \vec{F} zijn resp. de magnetisatie, het uitwendig veld en de kracht.

$$\frac{d\vec{F}}{dt} = \frac{d}{dt}(\nabla(\vec{M} \cdot \vec{H}_{tot})) \text{ daer } \vec{F} = -grad(-\vec{M} \cdot \vec{H}_{tot}) \quad (16)$$

$$= \frac{d}{dt}(\nabla(\vec{M} \cdot (\vec{H}_{dc} + \vec{H}_{ac}))) \quad (17)$$

$$= \frac{d}{dt}(\nabla(\vec{M} \cdot \vec{H}_{dc})) + \frac{d}{dt}(\nabla(\vec{M} \cdot \vec{H}_{ac})) \quad (18)$$

$$= \nabla\left(\vec{M} \cdot \frac{d\vec{H}_{ac}}{dt}\right) \quad (19)$$

Deze uitwijking wordt dan geregistreerd door het piëzokristal en verder verwerkt in een P.C.. Op deze wijze kan men de magnetisatie voor verschillende velden opmeten en ontstaat er een M(H) curve. De metingen zijn gebeurd bij kamertemperatuur.

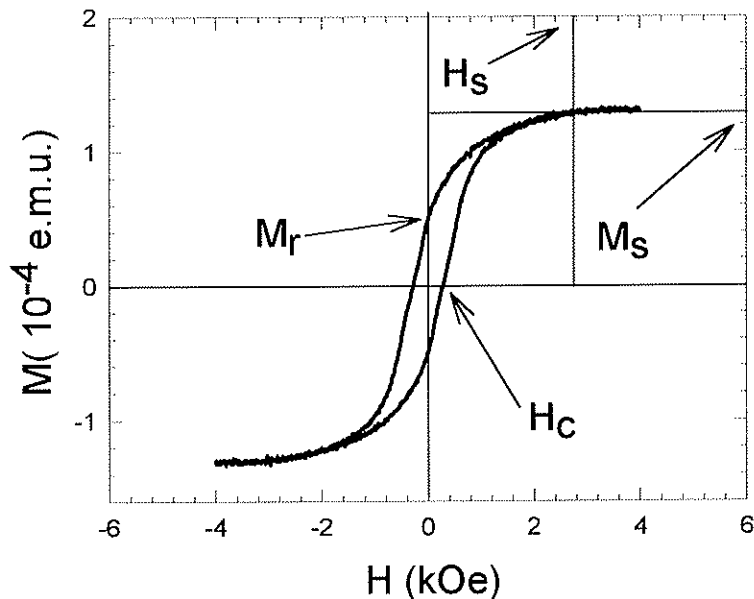


Fig. 2.15 De hysteresiscurve.

In *fig. 2.15* is er een magnetisatiecurve zichtbaar van een $[\text{Fe}(18\text{\AA})/\text{Ag}(25\text{\AA})]_{20}$ multilaag na uitgløeing op 400°C . Als karakteristieke parameters maakt men het onderscheid tussen het coërcitief veld H_c , de remanente magnetisatie M_r , het saturatieveld H_s , en de saturatiemagnetisatie M_s , die uitgedrukt wordt in elektromagnetische eenheden ($1 \text{ e.m.u.} = 1.078 \cdot 10^{20}$ Bohrmagnetons (μ_B)). Het is via deze saturatiewaarde dat het toestel geijkt wordt. Dit gebeurt door een vierkant Ni-monster op te meten waarvan de saturatiemagnetisatie gekend is ($471 \mu\text{e.m.u.}$). Indien men van verschillende monsters de saturatiemagnetisatie vergelijkt, dan moeten deze genormeerd worden door ze te delen door de hoeveelheid magnetisch materiaal in het monster. Dit geldt ook voor de remanente magnetisatie. Het coërcitief- en het saturatieveld zijn in theorie onafhankelijk van de hoeveelheid magnetisch materiaal. Het is echter niet nodig dit te doen voor het bepalen van de antiferromagnetische (A.F.F.) - en de ferromagnetische (F.F.) gekoppelde fraktie. *Formule 20* toont dit aan :

$$A.F.F. = 1 - F.F. = 1 - \frac{M_r}{M_s} \quad (20)$$

De betekenis van de A.F.F. en de F.F. kan eenvoudig op de volgende wijze begrepen worden. De lagen die ferromagnetisch gekoppeld zijn, hebben de neiging om samen gericht te worden volgens het aangelegde veld. Dit heeft als resultaat dat de saturatiemagnetisatie abrupt bereikt wordt. Het resultaat is een curve met een rechthoekig verloop en $M_r \cong M_s$. De antiferromagnetische koppeling geeft juist een weerstand tegen het richten van het magnetisch moment van sommige lagen volgens het aangelegde veld. Hierdoor zal het 'richten' dus geleidelijk gebeuren waardoor $M_r < M_s$. De curve zal gerekt worden in horizontale richting. Het saturatieveld is dan een maat voor de sterkte van de A.F.F. koppeling. Tot slot is er het hysteresiseffect dat ontstaat door de aanwezige defecten. Binnenin een magnetische laag zijn er verschillende magnetische domeinen die gescheiden zijn door een wand. Bij het magnetiseren van de laag groeien de goed geörienteerde domeinen doordat de wanden verschuiven. Dit gebeurt in sprongen (Barkhausen effect) doordat de wanden blijven haken aan de defecten . Het gevolg van deze plotse fluxveranderingen zijn elektrische wervelstromen in het materiaal en geluidsgolven vanwege magnetostrictie. De oppervlakte onder de curve komt overeen met de arbeid die besteed is aan het opwekken van deze energiedissipatie [29,30].

2.8 Het Kondo-effect.

Indien men in materialen zoals Cu, Ag of Au onzuiverheden zoals Cr, Mn of Fe inbrengt, dan vindt men voor kleine onzuiverheidsconcentraties (100 p.p.m.) een

minimum in de resistiviteit (grootte orde $n\Omega\text{cm/p.p.m.}$) voor een welbepaalde temperatuur rond 10 K. Voor $T \rightarrow 0$ K vlakt de resistiviteit af en satureert naar een constante waarde. Dit effect staat bekend als het Kondo effect.

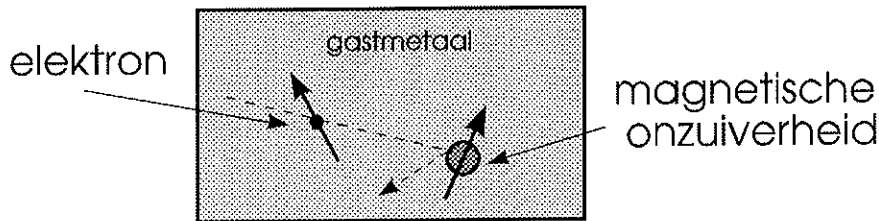


Fig. 2.16 De verstrooiing van een elektron aan een onzuiverheid bij het Kondo-effect.

Kondo [31] gaf de verklaring voor het optreden van dit minimum. Algemeen is de oorzaak van weerstand dat de geleidingselektronen verstrooid worden aan strooicentra. Dit kan elastisch zijn, gewone roosterdefecten zijn hier een voorbeeld van, of inelastisch zoals aan fononen. Om het minimum te verklaren, wordt verondersteld dat de onzuiverheid een magnetisch moment heeft in het gastmetaal, zie fig. 2.16.

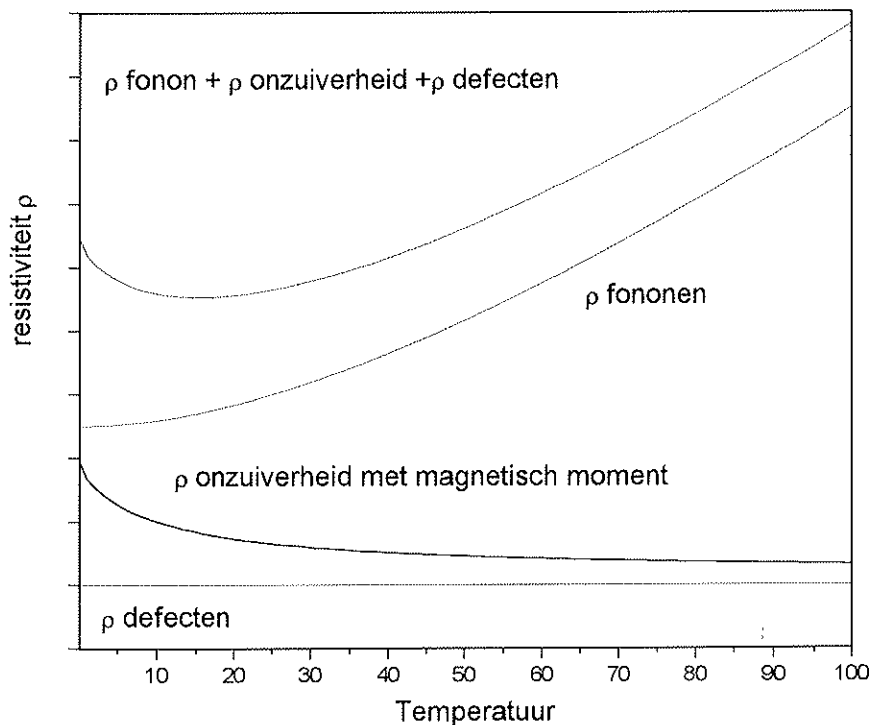


Fig. 2.17 De verschillende resistiviteiten in het Kondo-effect.

Daar het invallend elektron een spin heeft, zal deze interageren met de spin van de onzuiverheid. Het resultaat is dat de elastische verstrooiing van de \vec{k} -vector van het

elektron aan de onzuiverheid niet alleen beschreven wordt door de coulombwisselwerking maar ook beïnvloed wordt door de interactie van beide spins. Als gevolg zal er voor $T \rightarrow 0$ K een extra verstrooiing ontstaan die afvlakt naar een constante waarde. Indien men hier de verstrooiing aan fononen en aan defecten bijrekenet, vindt men een minimum in de resistiviteit, zie *fig. 2.17*. Tenslotte is tot nu toe verondersteld dat er geen interactie was tussen de spins van de verschillende onzuiverheden. Dit gebeurt bij hogere concentraties en dan treedt men het spin-glas regime binnen. Voor meer gedetailleerde uitleg over beide effecten verwijs ik naar [32,33].

2.9 Giant Magnetoresistance (GMR)

Voor de verdere studie beschouwt men het antiferromagnetisch gekoppeld superrooster welk getoond is in *fig. 1* en waarvan de magnetische lagen gelijkgericht kunnen worden door een magneetveld. Zoals reeds in de inleiding vermeld, wordt met G.M.R. de weerstandsdaling (Giant daar het effect groter is dan de klassieke magnetoweerstand) aangeduid die optreedt indien men een magnetisch veld aanlegt waardoor de lagen van een antiferromagnetische oriëntatie overgaan naar een ferromagnetische.

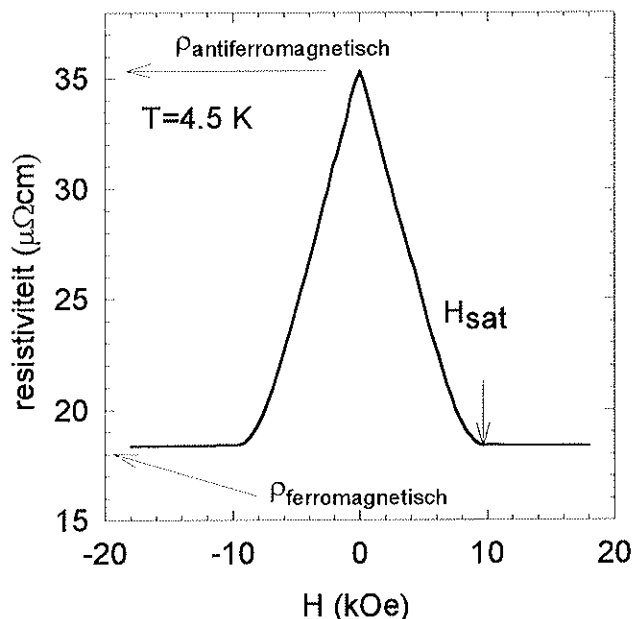


Fig. 2.18 De weerstandsdaling in een Fe/Cr superrooster.

In *fig. 2.18* wordt een typische curve van deze weerstandsvaling getoond voor een $[\text{Fe}(18\text{\AA})/\text{Cr}(12\text{\AA})]_{10}$ superrooster. De daling wordt uitgedrukt in de verhouding :

$$\text{magnetoweerstand (M.R.)} = \frac{\Delta\rho}{\rho_{\uparrow\uparrow}} = \frac{\rho_{\uparrow\downarrow} - \rho_{\uparrow\uparrow}}{\rho_{\uparrow\uparrow}}, \quad (21)$$

met $\rho_{\uparrow\downarrow}, \rho_{\uparrow\uparrow}$ de resistiviteit voor resp. de anti- en de ferromagnetische oriëntatie van de magnetisaties van de lagen. In *fig. 2.18* bedraagt dit 92%. Indien men dit deelt door het magneetveld waardoor dit verkregen wordt (H_{sat}) heeft men een rendement wat interessant is om de toepasbaarheid uit te drukken. Voor dit systeem bedraagt dit eveneens 92% bij 4.5K.

2.9.1 Kwalitatieve beschrijving

We gaan nu over tot de kwalitatieve beschrijving van dit fenomeen. Voor het hier bestudeerde geval is de weerstand gemeten voor een stroom die in de vlakken van het superrooster vloeit. Deze geometrie wordt C.I.P. (current in plane) genoemd. De C.P.P. (current perpendicular to plane) geometrie wordt hier niet behandeld.

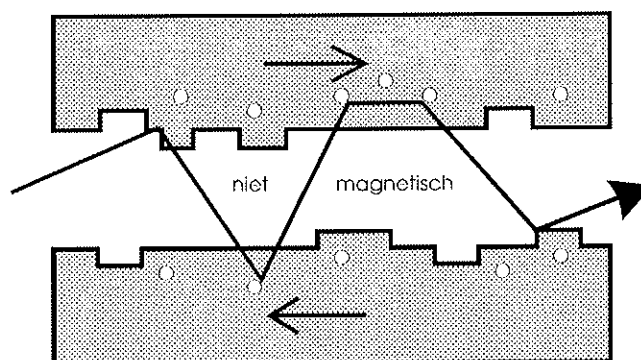


Fig. 2.19 Verstrooiing van een elektron tussen de verschillende magnetische lagen.

De elektronen die de stroom veroorzaken, worden verstrooid aan de onzuiverheden en aan de grenslaagruwheid, zie *fig. 2.19*. Hierdoor komen ze in beide magnetische lagen terecht. Het is hier dat de invloed van bestraling start : door de ruwheid te beïnvloeden kunnen de elektronen vaak in contact komen met beide of meerdere magnetische lagen.

Bij lage temperaturen kan een elektron vele malen verstrooid worden vooraleer zijn spin omflipt. Men spreekt van het bevriezen van de spinflipverstrooiing. Dit laat toe een model aan te nemen waarin de stroom door twee parallel geschakelde kanalen

gedragen wordt. Eén kanaal voor de spin-up - en een ander voor de spin-down elektronen.

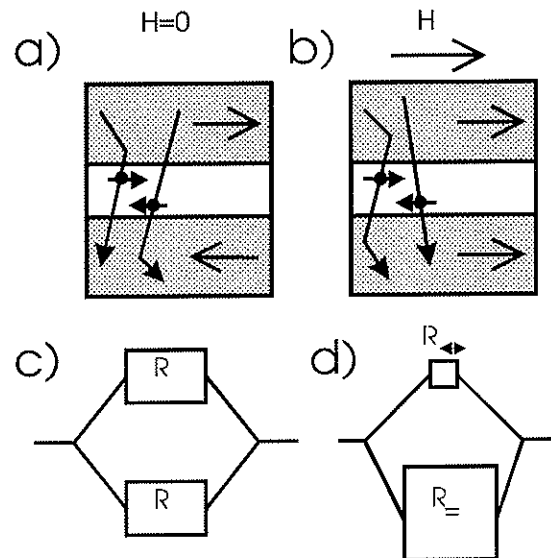


Fig. 2.20 De oorzaak van de weerstandsval.

De reden voor GMR is dat de verstrooiing afhankelijk is van de oriëntatie van de spin van het elektron t.o.v. de magnetisatie van de laag waarin de verstrooiing plaatsvindt. Voor éénzelfde zin van de spin en de magnetisatie-richting is de verstrooiing veel sterker dan voor tegengestelde zin, zie fig. 2.20 a,b. Beschouw dan eerst de situatie zonder uitwendig magneetveld waar de resp. lagen antiferromagnetisch gekoppeld zijn, zie fig. 2.20a. Deze configuratie is symmetrisch voor beide kanalen. Tevens is de geleiding niet ideaal daar beide spinoriëntaties via verstrooiing in contact komen met een laag waar ze sterk verstrooid worden, m.a.w. de totale weerstand is hoog, zie fig. 2.20c. Beschouw vervolgens de situatie met een voldoende sterk uitwendig magneetveld en dus een ferromagnetische oriëntatie, zie fig. 2.20b. In dit geval is één van de twee mogelijke spinoriëntaties altijd in dezelfde zin als de magnetisatie-richting van de magnetische lagen. Dit kanaal voelt een zwakke weerstand en is dus kortgesloten, zie fig. 2.20d. De elektronen van het andere kanaal worden steeds sterk verstrooid hetgeen een grote weerstand met zich mee brengt. Door de substitutieweerstand van beide parallelschakelingen uit te rekenen komt men tot de daling van de weerstand bij een aangelegd veld [34].

De experimentele toegepaste methode voor het bepalen van de resistiviteit is de Van der Pauw methode welke beschreven is in [3].

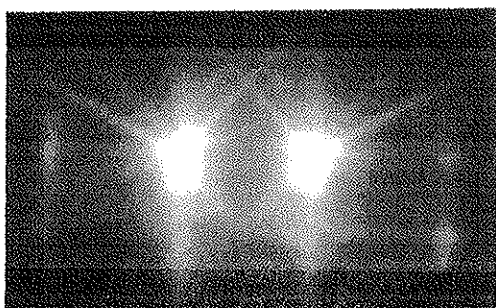
3. Resultaten

3.1 Karakterisatie van het gegroeide Ag/Fe superrooster

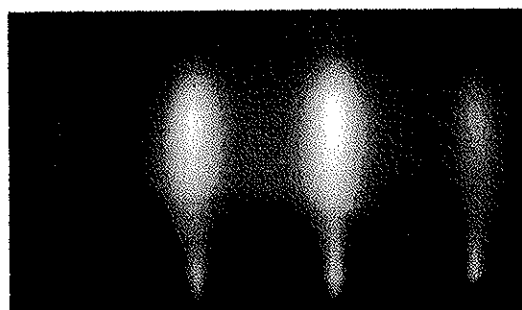
3.1.1. Reflectie Hoge Energie Elektron Diffractie

De eerste informatie over hoe Fe groeit op Ag en andersom werd bekomen door R.H.E.E.D.. In *fig. 3.1* worden de verschillende in-situ RHEED opnamen getoond. *Figuur 3.1a* laat het patroon van het MgO(001) substraat volgens de azimuth [100] zien. De lijnen die uit de spots vertrekken worden Kikuchi-lijnen genoemd en duiden op een zeer vlak oppervlak. Vertrekkende hiervan zijn dan afwisselend lagen van Fe (30 Å) en Ag (30 Å) gegroeid, zie *fig. 3.1 b,c,d,e* voor de overeenkomstige R.H.E.E.D. patronen. Men begint met Fe daar Ag op MgO aanleiding geeft tot een polykristallijne groei. Vanwege de epitaxiale groei van Fe op MgO zijn de patronen van Fe(001) volgens de [110] azimuth genomen.

Figuur 3.1b toont uitgesmeerde spots van het oppervlak van de eerst gegroeide Fe-laag wat staat voor een ruw oppervlak. Na het groeien van een laag Ag echter, zijn de spots terug scherper gedefinieerd, zie *fig. 3.1c*. Het oppervlak van de eerste Ag-laag is dus minder ruw dan de eerste Fe-laag. *Figuur 3.1d* toont terug aan dat het Fe ruwer groeit dan het zilver. *Figuur 3.1e* toont het R.H.E.E.D. patroon van zilver in de 20ste bilaag. De spot is duidelijk scherper dan in *fig. 3.1c*. We besluiten dat door de lagen heen het zilver in staat is de door het Fe geïnduceerde ruwheid te reduceren zoals reeds verwacht werd in hoofdstuk 1.2.2. Dat de ruwheid naar de top afneemt is hoogstwaarschijnlijk te wijten aan de roostermisfit van 3% tussen MgO en Fe hetgeen hoger is dan 0.8% voor Fe en Ag onderling [40,42].



a)



b)

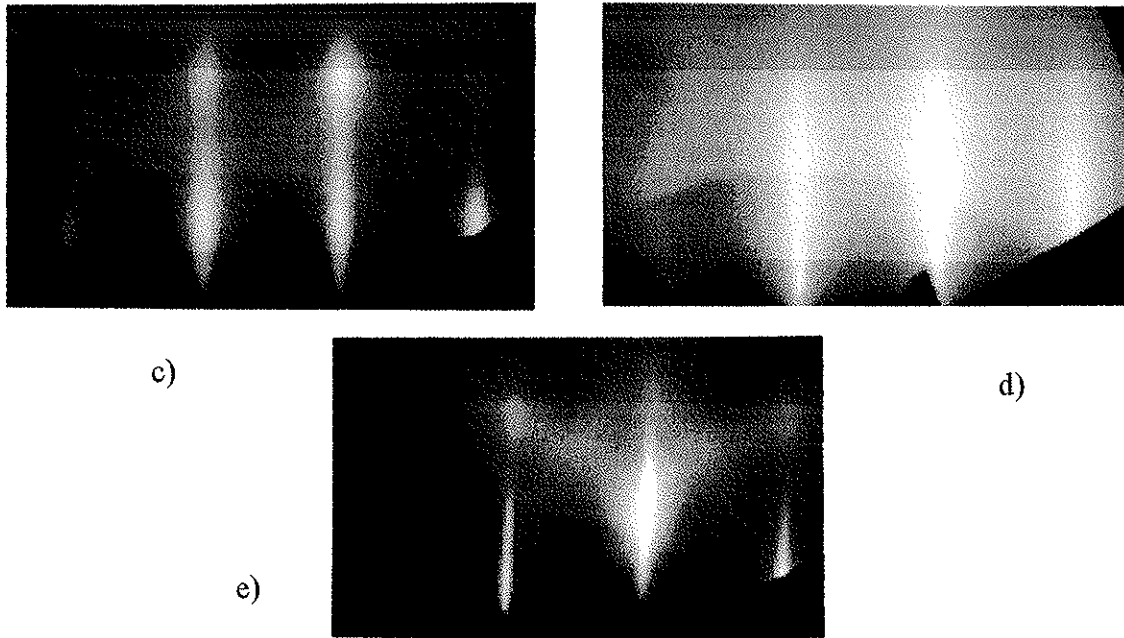


Fig. 3.1 a,b,c,d,e RHEED opnamen van Fe(30Å)/Ag(30Å) groei.

3.1.2 Atomic Force Microscopy

Vier monsters met resp. 1, 2, 10, 20 bilagen zijn onmiddellijk na het groeien opgemeten door de AFM, dit om oppervlakte contaminatie zoveel mogelijk te voorkomen. De laatst gegroeide laag is steeds een Ag-laag (Fe oxideert snel). *Figuur 3.2a* toont het oppervlak van het monster met één bilaag. Het meest in het oog springende kenmerk van dit oppervlak is de aanwezigheid van gelijkgerichte vierkantige korrelachtige structuren die in terrasvorm groeien en in hun centrum een putje vertonen. De grootte van deze korrels bedraagt ongeveer 600\AA en hun oriëntatie komt overeen met de $\text{MgO}[100]$ richting wat wijst op een epitaxiale groei van het Ag op het Fe. In *fig. 3.2b* zijn er twee bilagen gegroeid. De korrels en hun orientatie blijven duidelijk zichtbaar evenals de terrasstructuur maar het oppervlak van de korrels is nu vlakker en ze zijn minder vierkant. *Figuur 3.3* toont de ruwheid opgemeten over de verschillende lengteschalen voor de monsters. Voor alle monsters stijgt de ruwheid naar een saturatiewaarde voor grotere oppervlakken. Deze saturatiewaarde is 10\AA ($1\mu\text{m}^2$) na het groeien van 1 bilaag en stijgt tot 22\AA voor resp. 2 en 10 bilagen. Voor het monster met 20 bilagen is deze waarde nog niet bereikt bij de maximale scangrootte ($12\mu\text{m}$) en blijft de ruwheid tot 5000nm significant onder die van 1,2,10 bilagen. Dit duidt erop dat de in-vlak-correlatielengte voor het monster met 20 bilagen groter is dan voor de andere. Dit resultaat komt goed overeen met RHEED daar men hier vanwege de coherentie van de elektronenbundel op een kleinere schaal kijkt dan $12\mu\text{m}^2$. Het oppervlak dat RHEED bestrijkt is beperkt tot ongeveer 1000\AA in de richting evenwijdig aan de bundel en transversaal 200\AA [35] tegen variatie van 1nm^2 tot $12\mu\text{m}^2$ bij AFM [40,42].

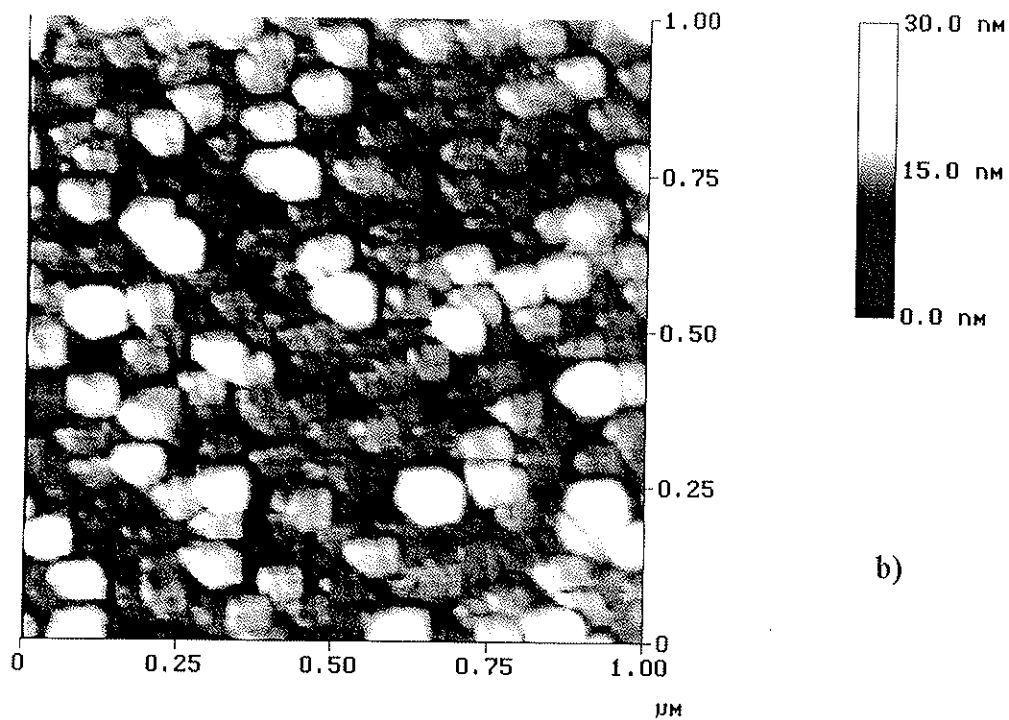
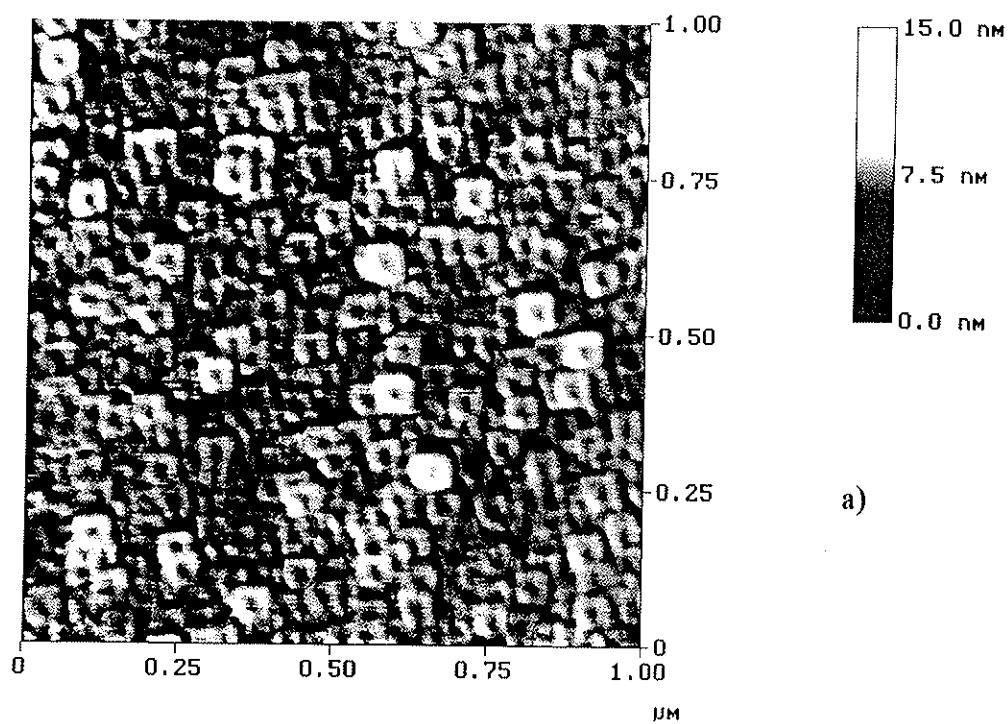


Fig 3.2 a,b Het zilveroppervlak na resp. één, twee bilagen [Fe(18Å)/Ag(25Å)]

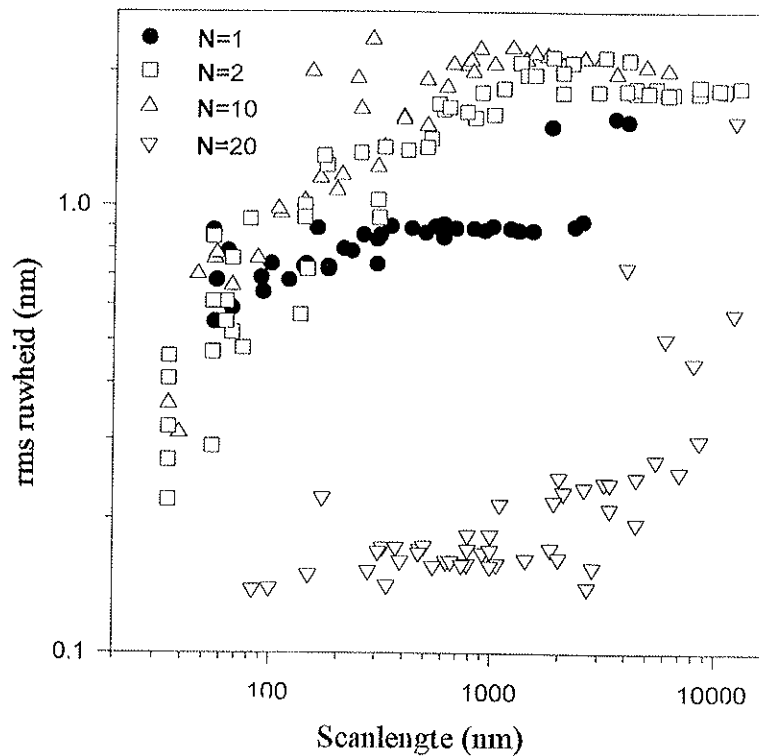


Fig. 3.3 De ruwheid als functie van de lengteschaal van het zilveroppervlak voor resp. 1,2,10,20 bilagen.

3.1.3 Rutherfordterugverstrooiing.

Figuur 3.4a toont het terugverstrooiingsspectrum van een $[\text{Fe}(145\text{\AA})/\text{Ag}(220\text{\AA})]_5$ multilaag. De puntlijn toont het spectrum waar de bundel α -deeltjes (1.97 MeV) invalt onder een hoek van 6° t.o.v. de $\text{MgO}[001]$ richting terwijl de streeplijn het spectrum is met de bundel georiënteerd volgens de $\text{MgO}[001]$ richting. De volle lijn is een RUMP simulatie. De hoek van 6° is genomen voor een willekeurige azimuthale orientatie van het monster en de waargenomen verstrooiingshoek die bepaald wordt door de positie van de detector is 155° .

Vanwege de zwaardere massa van $\text{Ag}(A=108)$ t.o.v. $\text{Fe}(A=56)$ zal de energie na botsing met Ag groter zijn dan na verstrooiing door Fe . De 5 pieken bij hogere energie in fig. 3.4a (1.5-1.7MeV) zijn hierdoor afkomstig van de 5 lagen Ag en analoog vindt men de 5 lagen Fe (1.3-1.5MeV) terug bij lagere energie. MgO vindt men terug in het laagste gedetecteerde energieinterval vanwege het relatief lichte $\text{Mg}(A=24)$, $\text{O}(A=16)$. De opsplitsing in verschillende pieken voor één materiaal ontstaat doordat de α -deeltjes remmen wanneer ze door het materiaal voortbewegen en dus energie verliezen, hoofdstuk 2.5. Vanwege dit effect behoren de pieken bij een lagere energie dus tot een dieper gelegen Fe - of Ag -laag. Ook is volgens dit principe de afstand tussen de opeenvolgende pieken van één materiaal afhankelijk van de dikte van het tussenliggende materiaal.

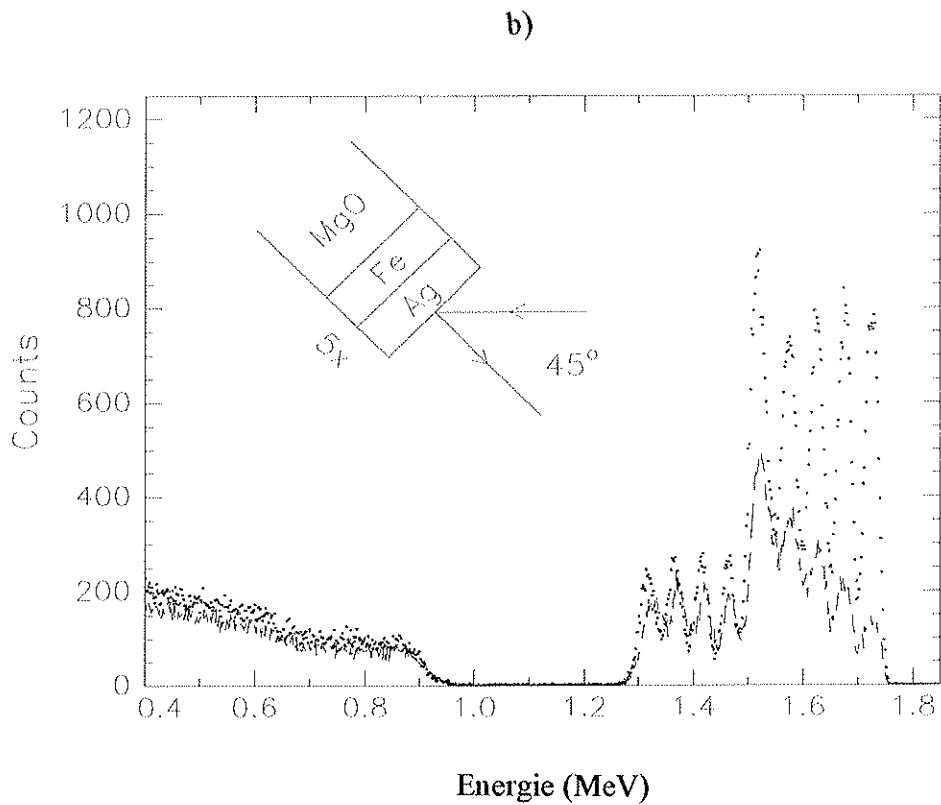
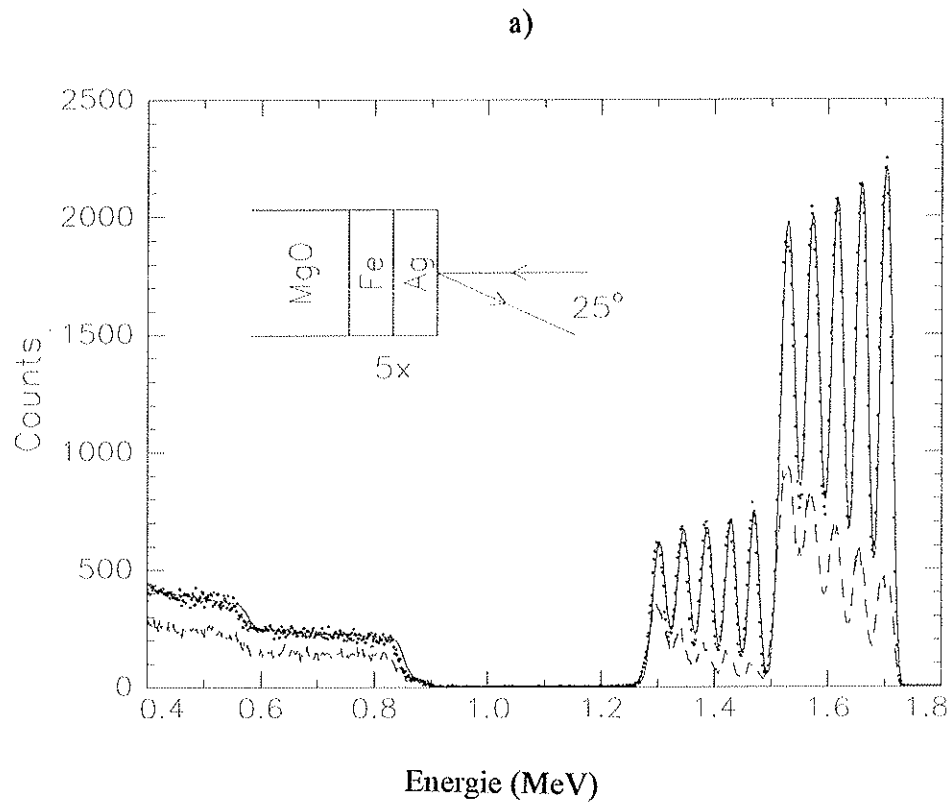


Fig. 3.4a,b De Rutherfordterugverstrooiingsspectra van een $[\text{Fe}(145\text{\AA})/\text{Ag}(220\text{\AA})]_5$ superrooster.

Een ander belangrijk effect dat meespeelt in de interpretatie van het spectrum in *fig. 3.4a* is een verlaging en een verbreding van de gaussische energieband van de invallende deeltjes naarmate men dieper in het materiaal komt door interactie met doelwitatomen onderweg. De verlaging van energie verhoogt de botsingskans, *zie formule (4)*. De verbreding zal verder met de Engelstalige term 'straggling' aangeduid worden, en leidt voor de hier bestudeerde dunne lagen tot een verbreding en een verlaging van de piek daar het totaal aantal verstrooide deeltjes in eerste benadering constant blijft. *Figuur 3.4a* toont dit effect voor beide materialen. Straggling leidt ertoe dat de overlap van de pieken stijgt naarmate men lager gelegen lagen beschouwt. In *fig. 3.4a* is dit duidelijk zichtbaar doordat de intensiteit waar de overlap begint, stijgt naarmate men dieper gelegen lagen bekijkt.

Figuur 3.4a toont dat voor de bundel georiënteerd volgens de MgO[001] richting (streeplijn) de intensiteit vooreerst sterk daalt. Hetzelfde wordt waargenomen voor het MgO substraat. De reden hiervoor is kanalisering. De α -deeltjes komen geen strooicentra meer tegen vanwege de epitaxiale groei. Dit is eveneens een bewijs van de kwaliteit van de laag. *Figuur 3.4a* toont dat de intensiteiten stijgen naarmate de lagen dieper gelegen zijn. De oorzaak hiervan kan zijn dat de lager gelegen lagen van een lagere kwaliteit zijn en daardoor meer strooicentra bevatten. Om dit te besluiten moet men wel het effect van de verbreding en verlaging van de energieband van de invallende α -deeltjes uitsluiten. Zoals reeds boven vermeld, betekent deze verlaging immers dat de botsingsdoorsnede toeneemt naarmate men naar diepere lagen kijkt. Eveneens moet de verbreding in rekening worden gebracht daar dit een verlaging van de intensiteit meebrengt en dus een positief effect heeft indien meegenomen in de uitspraak over de kwaliteit van de laag. Daar deze effecten in goede benadering kwalitatief hetzelfde zijn voor beide orientaties van de bundel kan de kwaliteit van een laag uitgedrukt worden door de opbrengst welke gedefinieerd is als de verhouding van de intensiteit (de integraal genomen over de volledige piek) bekomen in quasi-gealigneerde geometrie en de gealigneerde geometrie. Toegepast op *fig. 3.4a* is dan de conclusie dat naarmate men dieper komt de kwaliteit van de lagen slechter is hetgeen dezelfde conclusie is als voor R.H.E.E.D. en A.F.M. voor andere Fe/Ag multilagen. Tot slot van deze meting toont *fig. 3.4a* een simulatie van het spectrum met het computerprogramma Rump (volle lijn). In deze simulatie zijn er perfecte interfazen verondersteld. Het experimentele patroon is hier bijna gelijk aan. Rekening houdend met de resolutie kan men besluiten dat de interfazen dus scherp gedefinieerd zijn.

Eenzelfde experiment kan gedaan worden door de invallende bundel rond de Ag[101] richting te laten invallen en het monster continu azimuthaal te laten draaien, *zie fig. 3.4b*. De volle lijn staat terug voor de quasi-parallele mode en de stippellijn voor de oriëntatie volgens de Ag[101] richting. Voor deze oriëntatie zijn de lagen schijnbaar

dikker en is de afgelegde weg door het materiaal groter. De pieken liggen hierdoor ook iets verder uit mekaar waardoor er een overlapping ontstaat van de pieken t.g.v. de laatste Ag-laag en de eerste Fe-laag zodat er resulterend voor die energie een hogere intensiteit wordt waargenomen. Het feit dat de pieken van de twee verschillende metingen niet meer bij dezelfde energie vallen, is te wijten aan het feit dat een kleine verandering in oriëntatie gepaard gaat met een relatief grote verandering in weglengte door de multilaag, hetgeen niet opgaat voor de MgO[001] oriëntatie. Ook hier vindt men een daling in de intensiteit die te wijten is aan axiale [101] kanalisering in Ag lagen en aan [101] planaire kanalisering voor Fe lagen. Het kanaliseringseffect gaat minder goed op voor het diepergelegen MgO. De aanwezigheid van kanalisering duidt wederom op de goede kwaliteit van de epitaxiale gegroeide laag. In experimenten (hier niet getoond) uitgevoerd voor de invallende bundel rond de Fe[101] richting werd ook kanalisering waargenomen hetgeen vorige uitspraak kracht bijzet.

Het effect van de intensiteitsdaling t.g.v. kanalisering kan ook gebruikt worden om spanningen te onderzoeken. Indien de eenheidscel van Ag of Fe door spanning verandert waardoor ze bv. naar een meer balkvormige vorm overgaat zullen de roostervlakken ook een andere oriëntatie krijgen. Kanalisering zal hierdoor pas maximaal zijn voor een oriëntatie die lichtjes afwijkt van de situatie zonder spanningen. Dit effect is duidelijk waargenomen rond Ag[101] en voor de metingen rond Fe[101] binnen de foutgrens. Men vindt een afwijking van 0.15° wat duidt op een spanning die te wijten kan zijn aan de misfit tussen MgO en Fe [40].

3.1.4 X-stralen diffractie

Indien men start met het groeien van een nieuwe laag dan zullen de eerst gegroeide atoomlagen niet onmiddellijk een goed fundament vormen voor weer een volgende epitaxiale laag van het andere materiaal. Dit komt vanwege de horizontale en verticale misfit van de roosterparameters. Er is een minimumdikte van beide lagen vereist opdat het superrooster epitaxiaal zou zijn, de misfit moet kunnen relaxeren. Daarenboven is het voor de magnetische eigenschappen interessant dat de lagen niet te dik zijn. De reden hiervoor is dat de koppeling van de magnetische lagen veroorzaakt wordt door de elektronen die de informatie van de ene laag aan de andere doorgeven. De tussenliggende afstand mag dus niet groter zijn dan de vrije weglengte. In dit kader toont een semi-klassiek model dat voor Fe/Cr de magnetoweerstandsdaling exponentieel afneemt met de dikte van de koppelende Cr laag [3].

Het bepalen van deze optimale dikten gebeurt als volgt. Eerst werd de minimale Fe dikte gezocht door het groeien van Ag(50Å) / Fe(xÅ) multilagen. Voor een dunne Fe-laag werd een Ag(111)/Fe(011) groei waargenomen wat overeenstemt met een groei

volgens de dichtst mogelijke pakking in één laag. De roosterparameters van Ag en Fe laten echter niet toe dat deze groei epitaxiaal is. Een dikte van 20 Å Fe bleek voldoende te zijn voor een regelmatige scherp gedefinieerde interfase zodat de multilaagpieken uitgesproken zijn. Het resultaat voor de variatie $\text{Ag}(x\text{Å}) / \text{Fe}(20\text{Å})$ wordt weergegeven in *fig. 3.5*. Voor een Ag-dikte van 25 Å zijn de multilaagpieken terug goed gedefinieerd in het diffractiepatroon. Dat het superrooster niet polykristallijn is maar wel epitaxiaal werd aangetoond aan de hand van asymmetrische X-stralen diffractie.

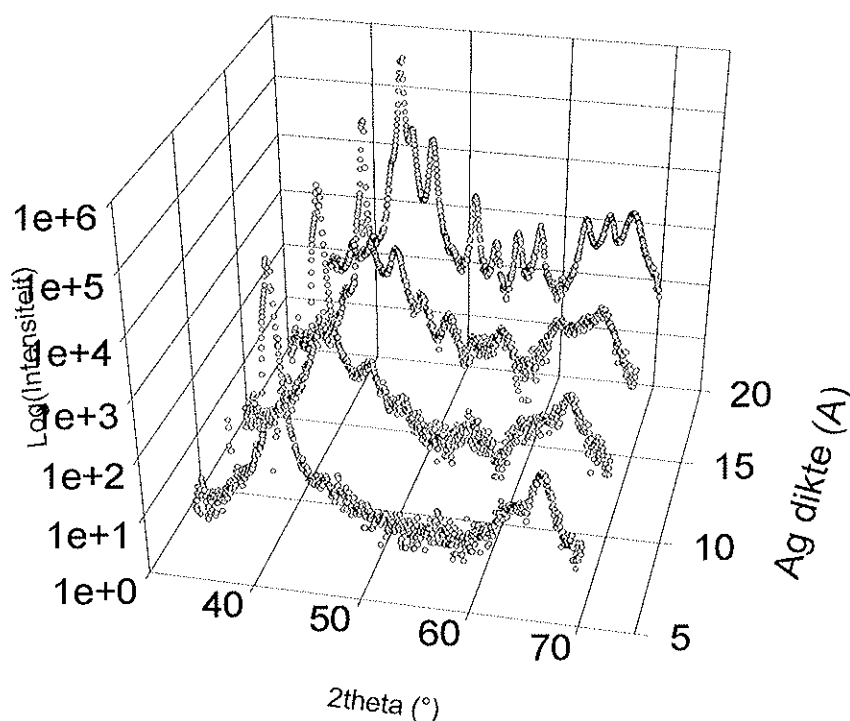


Fig. 3.5 XRD spectra voor $[\text{Ag}(x\text{Å})/\text{Fe}(20\text{Å})]_n$ multilagen.

Gebruikmakende van deze informatie werd dan het definitieve monster gegroeid : $[\text{Fe}(18.5\text{Å})/\text{Ag}(25.5\text{Å})]_{20}$. Dit monster wordt dan in stukken verdeeld. Uit XRD metingen werd aangetoond dat de kwaliteit van de verschillende stukken nagenoeg dezelfde is en dat de modulatielengte Λ binnen 1 Å varieert. Dit volstaat om de wijzigingen van de structuur t.g.v. verschillende behandelingen op verschillende delen te vergelijken. In *fig. 3.6* wordt het L.H. en het H.H. patroon getoond voor zo'n stuk. De getallen bij de pieken geven aan dat het om een multilaagpiek gaat. De waarde van het getal geeft in L.H. de orde weer en in H.H. de relatieve positie t.o.v. de nulde-orde piek.

De aanwezigheid van de Kiessigfranjies in L.H. (secundaire maxima van de Λ -modulatie, hoofdstuk 2.6.1) eist een constante dikte over het ganze monster hetgeen duidt op een oppervlak dat in goede conditie verkeert. Tevens is het effect van de voorfactoren in formule (8) duidelijk te zien in de afname van de intensiteit naarmate 2θ groter wordt. Het H.H. patroon in *fig. 3.6* toont ook nog andere pieken dan deze die te wijten zijn aan de bilaagperiodiciteit. Zo is er de MgO(002) piek die de 2-de orde piek is van MgO(4.212Å). Deze substraatpiek is zeer intens en scherp gedefinieerd vanwege de kwaliteit en de dikte van het substraat (hoofdstuk 2.6.1). Via de offscan-mode kan deze sterk gereduceerd worden.

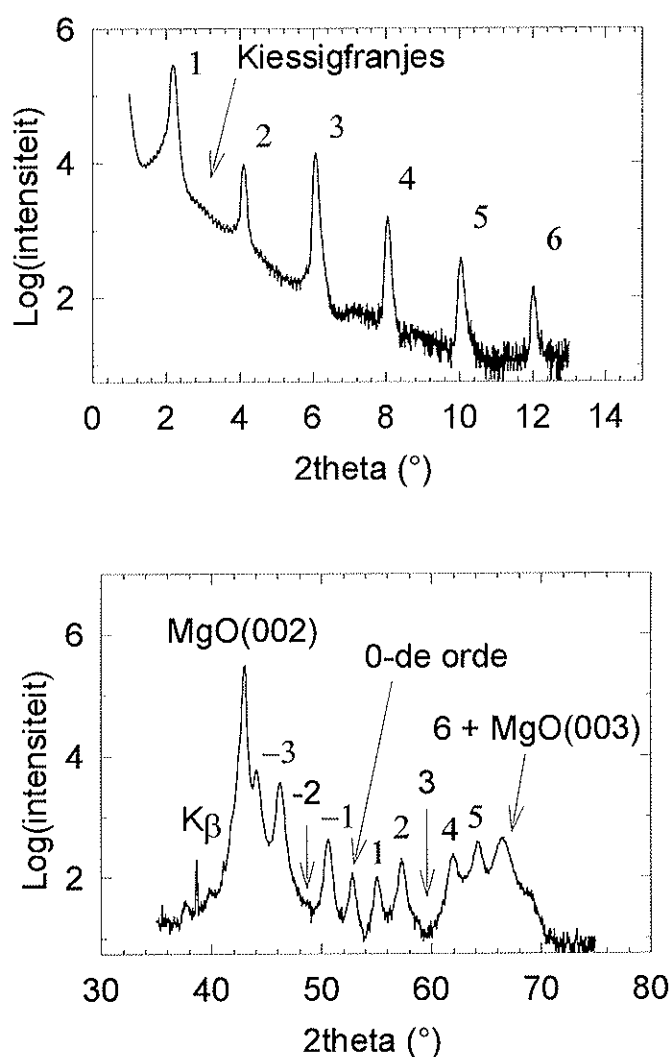


Fig. 3.6 L.H. en H.H diffraktiepatroon van een niet behandelde [Fe(18.5Å)/Ag(25.5Å)] multilaag.

De K_β -piek is de MgO(002) piek maar dan gegenereerd door de golflengte K_β met $\lambda_\beta=1.392\text{\AA}$. Dit komt doordat de monochromator de K_β -straling niet volledig uitfiltreert. De 6de orde multilaagpiek overlapt met de MgO(003) piek. Dat dit niet zuiver een multilaagpiek is, is te zien aan zijn verschil in breedte met de andere multilaagpieken en meer bewijs werd geleverd door de offscan-mode (hier niet getoond). In theorie zou vanwege de symmetrie van de MgO eenheidsceel deze (003)piek niet aanwezig mogen zijn. Het optreden ervan kan te wijten zijn aan defecten zoals vacatures en onzuiverheden die de symmetrie verbreken. Deze reden voor het ontstaan van verboden pieken is reeds aangetoond voor Si-kristallen [36]. De modulatiewaarde voor dit monster bedraagt $44,03\text{ \AA}$ volgens deze diffractiepatronen. Volgens de methode besproken in hoofdstuk 2.6.4 en met behulp van de simulaties van Slerf worden de volgende waarden bekomen voor het gemiddeld aantal atoomlagen : $\bar{n}_{Fe} = 13.10$ monolagen en $\bar{n}_{Ag} = 12.35$ monolagen. Voor de interatomaire afstanden werden de bulk-waarden genomen. Zoals ook vermeld in hoofdstuk 2.6.4 is verdere karakterisatie gebaseerd op simulatie of fitting. Een zekere omzichtigheid is geboden bij het fitten van een model met een groot aantal parameters. Er dient over gewaakt te worden dat slechts een strikt minimum aan relevante parameters wordt gebruikt. Vanwege deze redenen heeft men voor de volgende strategie gekozen. Vooreerst is het nodig de substraatpiek MgO(002) niet mee te nemen in de fitting. De meest efficiënte en eenvoudigste weg is te fitten over een interval waarin deze piek niet voorkomt. De MgO(003) piek kan nagenoeg geheel vermeden worden door de offscan mode te gebruiken. Dit gereduceerde offscan diffractiepatroon kan nu gefit worden. Het gebruiken van offscan voor de $\theta-2\theta$ H.H.-fit wordt gerechtvaardigd doordat het patroon kwalitatief hetzelfde blijft op een daling van de intensiteiten na. Dit is echter louter een schalingsfactor in de fitting die geen invloed heeft op het resultaat. Zoals dan ook het resultaat zal laten zien, zijn de bekomen parameters uit deze fit geldig voor de $\theta-2\theta$ mode. De volgorde in de uiteindelijke fitting is dat men start van het ideale geval, vervolgens de twee soorten ruwheid (hoofdstuk 2.6.5) fit, dan het aantal atoomlagen samen met de interplanaire afstand fit om eventuele spanningen te detecteren, en tot slot interdiffusie. Merk hierbij op dat reeds een zeer goede fit werd bekomen voor de bulkwaarden van Fe(1.433\AA) en Ag(2.043\AA). Een verdere interpretatie van deze en de R.T.S. resultaten i.v.m. spanningen kan nog gedaan worden. *Figuur 3.7 a, b* tonen de eindresultaten van resp. Suprex en Slerf voor H.H., de bolletjes zijn experimenteel en de volle lijn is door de computer gegenereerd. *Tabel 1* toont de vergelijking van de waarden van de parameters bekomen door de twee verschillende programma's uit het H.H. diffractiepatroon. Deze getallen zijn onafhankelijk van mekaar tot stand gekomen, er is dus geen uitwisseling van parameters tussen de twee programma's gebeurd.

Tabel 1

Parameter	Suprex	Slerf
Λ (Å)	44.01	44.01
\bar{n}_{Fe} (a.l.)	12.87	12.87
\bar{n}_{Ag} (a.l.)	12.54	12.60
σ_{Fe} (a.l.)	0.46	0.4
σ_{Ag} (a.l.)	0.34	0.3
$\sigma_{interdiffusie}$ (a.l.)	2.36*	2.1*
d_{Fe} (Å)	1.4311	1.4270
d_{Ag} (Å)	2.0407	2.0356
$D_{korrels}$ (Å)	880**	260
$\sigma_{korrels}$ (Å)	-	105
$d_{interfaze}$ (Å)***	2.36	1.7313

* In Suprex gebruikt men een grenslaag waar men op een lineaire manier overgaat van het ene materiaal tot het andere terwijl men in Slerf een errorfunctie gebruikt om de overgang in de grenslaag te beschrijven.

** Voor Suprex is deze parameter gefixeerd en duidt op een epitaxiale laag van bodem tot top. In Slerf is deze gebruikt hetgeen korrels introduceert van de getoonde grootte. Op deze korrels is er een spreiding die aangegeven wordt door de hierop volgende parameter.

*** Deze parameter is de interfaze afstand, berekend volgens $(d_{Fe} + d_{Ag})/2$. Het is een vaste parameter.

De simulatie van het L.H. spektrum wordt getoond in *fig.3.8*. Zowel de fitting als de simulaties van H.H. en L.H. bevestigen dat Fe ruwer groeit dan Ag.

De simulatie gaat niet op voor de lagere hoeken ($2\theta < 2^\circ$). De experimentele gevonden intensiteit ligt duidelijk lager. De verklaring hiervoor moet gezocht worden in experimentele tekortkomingen. Bij lage hoeken valt er een deel van de bundel buiten het monster. Indien men de hoek vergroot, zal er t.g.v. de geometrie meer intensiteit op het monster vallen. In ideale omstandigheden zoals aan een reflectometrie opstelling heeft men de nodige apparatuur om de bundel beter te definiëren en kan men dit probleem voorkomen. Een andere factor die meespeelt voor lage hoeken is dat de detector verzadigd raakt als de intensiteit de 80 000 cps overschrijdt. Niet alle inkomende fotonen worden dan nog gedetecteerd waardoor het gedrag niet meer lineair is. Voor hoge piekintensiteiten (> 200000 cps) kan het output signaal zelfs terugvallen zodat deze piek zich schijbaar opsplijst in twee pieken.

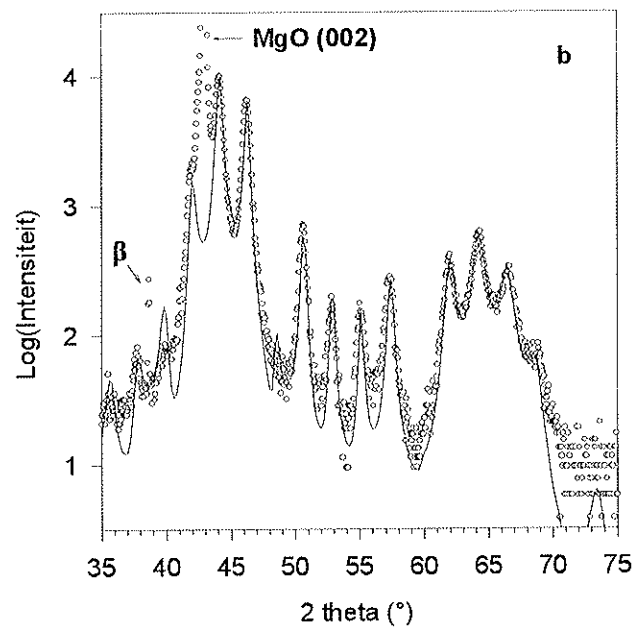
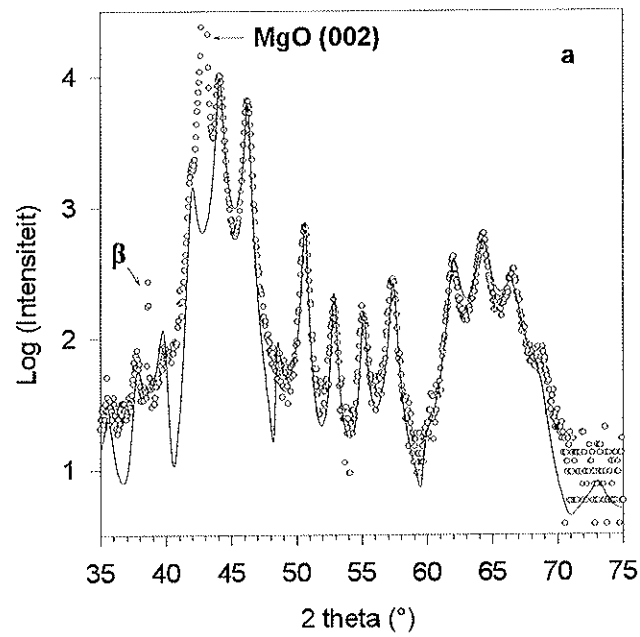


Fig. 3.7 a) Fitting Suprex, b) Simulatie Slerf

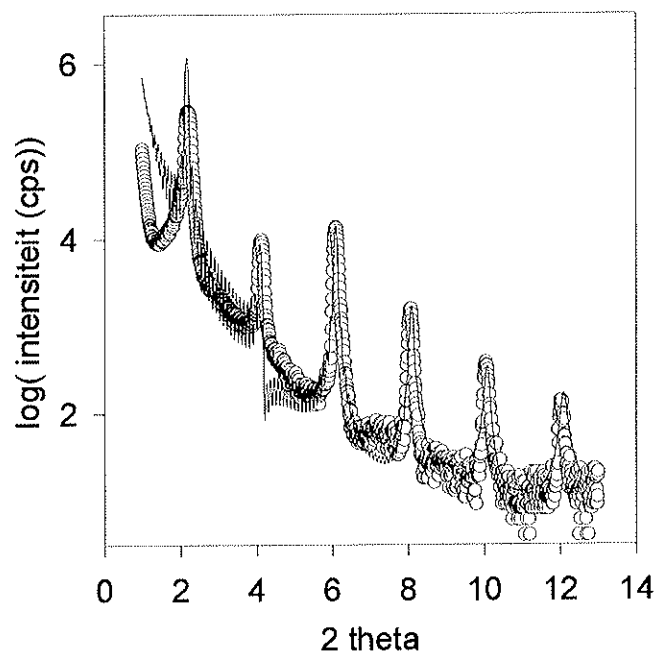


Fig. 3.8 L.H. simulatie Suprex

Als afsluiting van dit hoofdstuk over de X-stralen karakterisatie van het nog niet behandelde monster wordt *fig. 3.9* getoond waar het H.H. diffractiepatroon zichtbaar is van een $[\text{Ag}(500\text{\AA})/\text{Fe}(70\text{\AA})]_{10}$ superrooster.

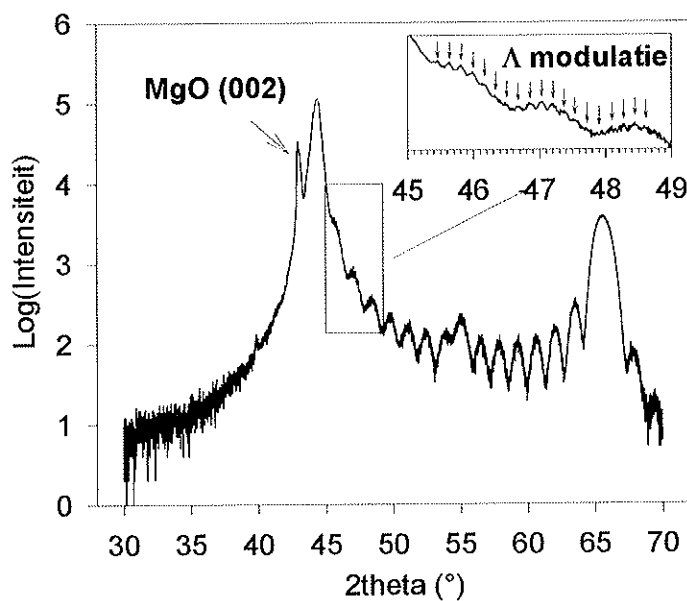


Fig. 3.9 Het H.H. patroon van een $[\text{Ag}(500\text{\AA})/\text{Fe}(70\text{\AA})]_{10}$ superrooster.

De multilaagpieken, die zeer dicht bij mekaar staan vanwege de grote bilaagdikte, getoond in de inset duiden op een goed gedefinieerde bilaagdikte hetgeen ongewoon is voor dikke superroosters [40,42].

3.1.5 De elektrische en de magnetische eigenschappen

Figuur 3.10 laat de AGM hysteresiscurve zien van het niet behandelde monster bij kamertemperatuur. De A.F.F. bedraagt 0.89 en het saturatieveld $H_s \cong 32$ Oe hetgeen de aanwezigheid van een zwakke A.F. koppeling vertegenwoordigt bij deze temperatuur.

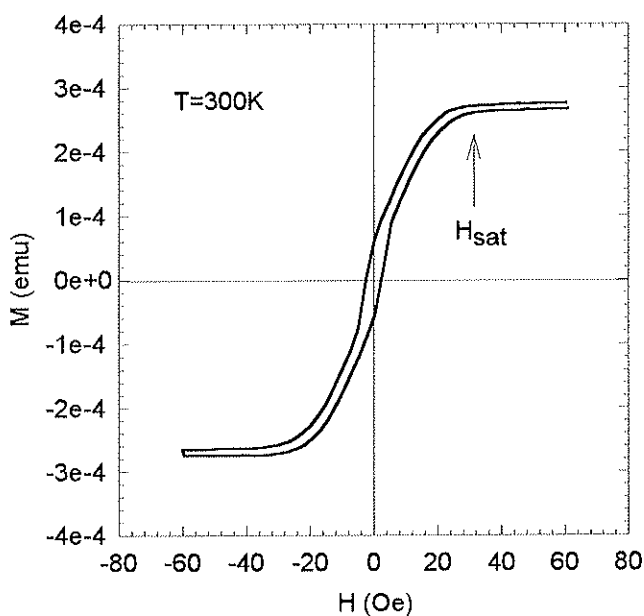


Fig. 3.10 De hysteresiscurve van het niet behandelde $[\text{Fe}(18.5\text{\AA})/\text{Ag}(25.5\text{\AA})]_{20}$ monster.

Voor het coërcitief veld H_c vindt men 2.4Oe. De magnetoweerstandscurve wordt getoond in fig. 3.11. De weerstandsdaling is $\cong 1\%$. Het opmeten van de resistiviteit versus temperatuur gaf een normaal verloop weer van defecten en fononen, zie ook fig. 2.17.

De resultaten tonen aan dat men voor de behandelingen vertrekt van een goede epitaxiale Fe/Ag multilaag met een scherp gedefinieerde grenslaag en een magnetoweerstandeffect van slechts 1% bij 4.2K.

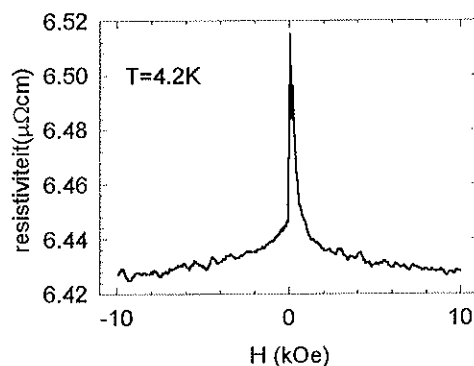


Fig. 3.11 De magnetoweerstand van het niet behandelde $[\text{Fe}(18.5\text{\AA})/\text{Ag}(25.5\text{\AA})]_{20}$ monster.

3.2. Bestraling

3.2.1 De structuurveranderingen

Vijf monsters werden bestraald met een verschillende dosis Ne^+ -ionen. De bestraling gebeurde in een vacuüm van $10^{-6} - 5 \cdot 10^{-7}$ Torr bij een temperatuur van 77K. De energie van de Ne^+ -ionen bedroeg 230KeV en ze vormden een stroom van 600 nA/cm^2 . De respectievelijke dosissen zijn 1.7, 5, 10, 28, $60 \cdot 10^{14}$ ionen/ cm^2 . *Figuur 3.12* toont het lage hoek $\theta - 2\theta$ diffractiepatroon. De eerste orde piek van het niet behandelde monster vertoont een inzakking die te wijten is aan een verzadiging van de detector. Duidelijk te zien is het verdwijnen van de multilaagpieken voor de hogere dosissen. De oorzaak hiervan ligt erin dat de bestraling de scherp gedefinieerde grenslaag vernietigt, waardoor ook de bilaagperiodiciteit vernietigd wordt. Opmerkelijk is dat de Kiessigfranjes nog steeds duidelijk zichtbaar zijn, wat duidt op een goed gedefinieerde dikte. *Figuur. 3.13* toont het hoge hoek patroon. Ook hier verdwijnen de multilaagpieken en dit vanwege dezelfde reden. De twee substraatpieken blijven echter duidelijk zichtbaar. Met simulatie werd aangetoond dat de verandering van de relatieve intensiteiten van de multilaagpieken met orde 0,1 in H.H voor lage dosissen overeenkomt met het mengen van Ag en Fe aan de grenslaag. Voor een kwantitatieve uitspraak hieromtrent moet men voorzichtig zijn daar ten eerste er andere structuren zoals kleine korrels, andere fazen, ... kunnen gevormd worden die niet in het programma zijn opgenomen. Anderzijds is menging door ionenbestraling afhankelijk van de laagdiepte. De programma's daarentegen veronderstellen éénzelfde interdiffusie aan elke grenslaag. Interessant is dat bij andere studies van bestraling van een Fe/Ag systeem [37] een kubische fase gevonden werd die niet werd verkregen

door uitgloeijing (tot 30' op 900°C). De sterkste reflectie van deze fase in een poederopname was (440) (1.49 Å). De zwakke piek die verschijnt rond 62° in *fig. 3.13* komt exact met deze afstand overeen.

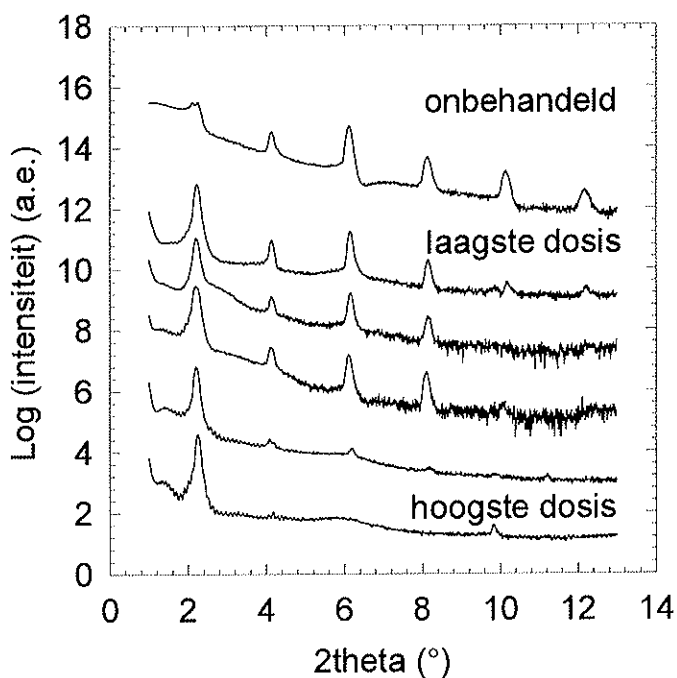


Fig. 3.12 Lage hoek diffractiepatroon na bestraling.

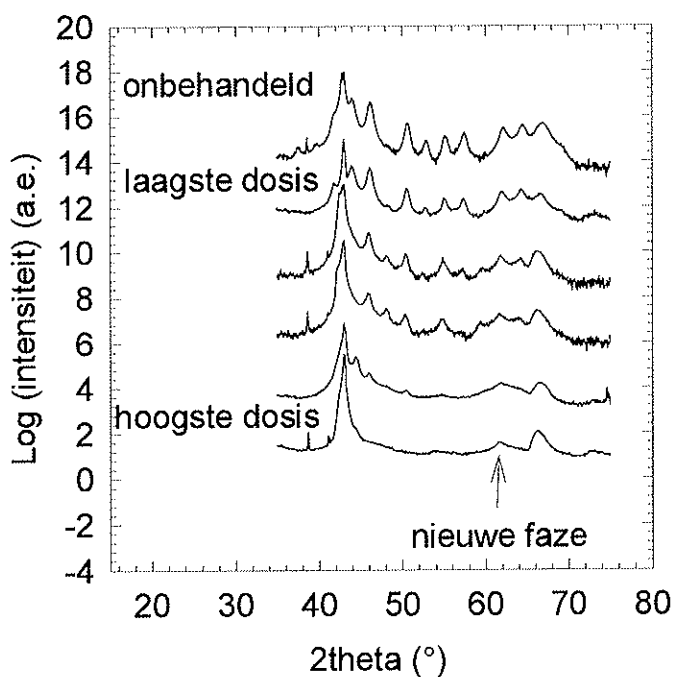


Fig. 3.13. Hoge hoek diffractiepartoon na bestraling.

Daar de totale intensiteit konstant moet zijn, moet de intensiteit die in de multilaagpieken aanwezig was naar het niet-speculaire (niet in θ - 2θ diffractiepatroon) diffractiepatroon verplaatst zijn. Om dit waar te nemen worden er rocking curves gemeten voor verschillende 2θ -waarden. In L.H. beperkt men zich tot een rocking curve rond $2\theta = 3.3$ wat tussen de eerste en tweede orde multilaagpiek is, en rond de tweede orde multilaagpiek, zie fig. 3.12. Daar voor beide sets van metingen het resultaat hetzelfde is, bespreekt men enkel de curves genomen rond de tweede orde piek, zie fig. 3.14. De oorzaak van de opsplitsing van de rocking curve bij de laagste dosis ligt in een breuk in het monster waardoor er twee reflecties optreden. Men ziet hier terug de daling in de intensiteit voor hogere dosis wat reeds werd waargenomen in L.H. Een maat voor de grenslaagruwheid kan kwantitatief worden uitgedrukt door de verhouding van de intensiteit aan de voet tot de piekintensiteit te nemen, zie fig. 3.15. De exacte verklaring hiervoor berust op de interpretatie van het niet speculaire diffractiepatroon. Intuïtief kan dit aangevoeld worden doordat de intensiteit in lage hoek afkomstig is van constructieve interferentie over grote afstanden (zoals hier de bilaagperiodiciteit) en dat voor de perfecte multilaag met oneindig scherp gedefinieerde grenslagen de intensiteit volledig binnen het speculaire patroon moet vallen.

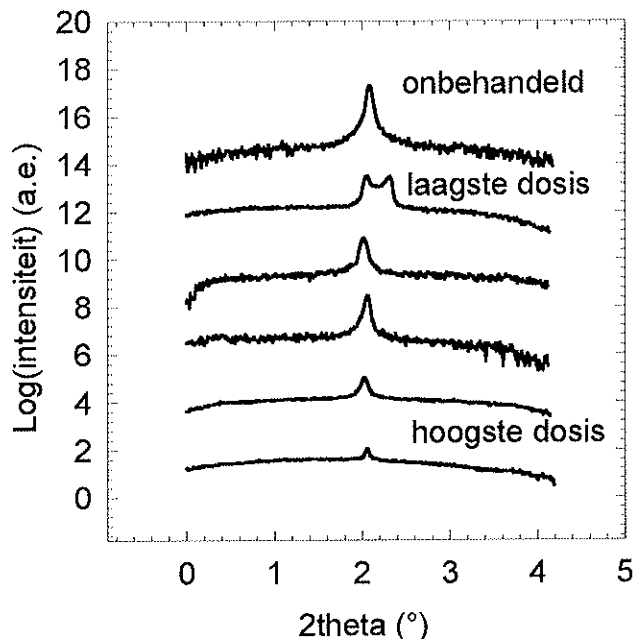


Fig. 3.14 Rocking curve rond tweede orde multilaagpiek in L.H.

De intensiteit aan de voet van de piek werd bepaald door een statistische uitmiddeling. Voor de fout hierop wordt de standaardfout genomen. *Figuur 3.15* toont dat de ruwheid toeneemt voor hogere dosis op uitzondering van de tweede dosis die uit de rij

valt. Eenzelfde volgorde zal later ook nog door andere experimenten gevonden worden. De reden waarom de tweede dosis een hogere ruwheid heeft is onbekend. Vanwege de breuk in het monster dat met de laagste dosis bestraald is geweest, kan het niet opgenomen worden in dit overzicht. De typische breedte van 0.5° van de rocking curves in L.H. op halve hoogte vertelt dan ook dat de bilagen goed evenwijdig gealigneerd zijn.

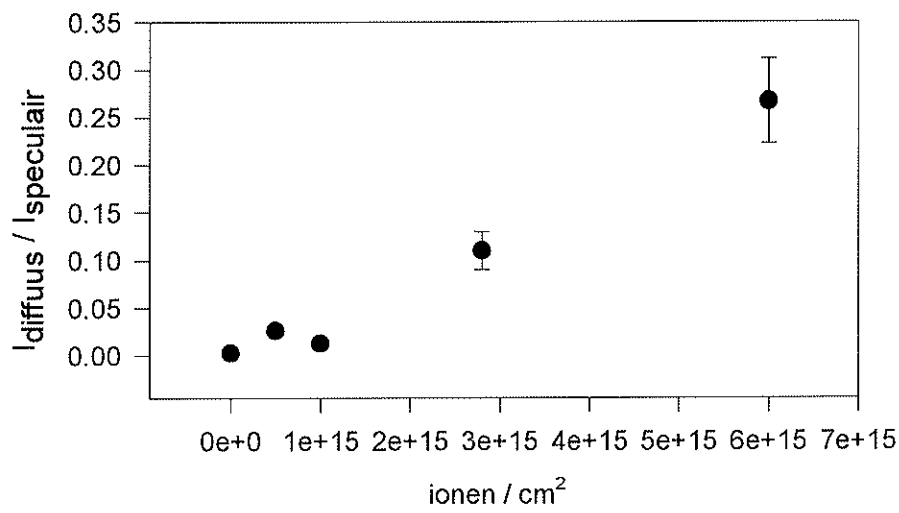


Fig. 3.15 Interfaze ruwheid van de bestraalde monsters.

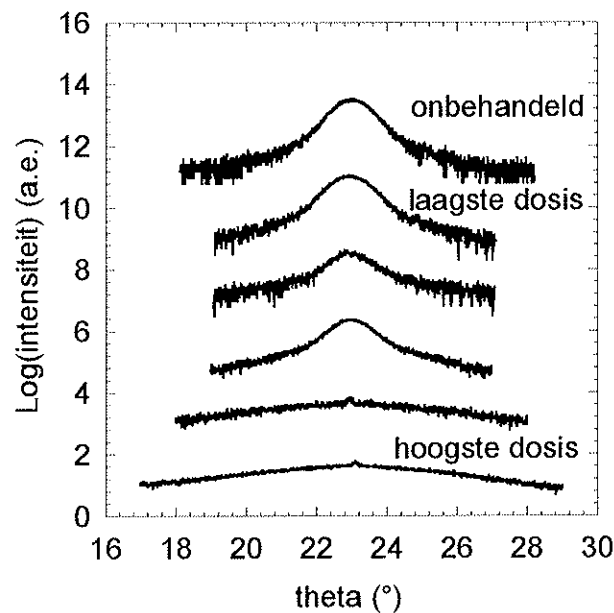


Fig. 3.16 Rocking curve rond $2\theta = 46^\circ$ na bestraling.

Tot slot zijn er rocking curves gemeten in het H.H. gebied, zie *fig. 3.16*. Ook hier werden twee hoeken genomen, weliswaar beide rond een multilaagpiek, één voor $2\theta = 46^\circ$, d.i. in de buurt van Ag, en rond $2\theta = 61^\circ$, d.i. in de buurt van Fe. Beide sets vertonen dezelfde verbreding en er is geopteerd voor de curven rond $2\theta = 46^\circ$, zie *fig. 3.16*. De breedte van de patronen is een maat voor de afwijking van de korreloriëntatie t.o.v. de exacte MgO[001] richting. Samen met het verdwijnen van de intensiteit in hoge hoek betekent dit het vormen van korrels die niet meer perfect gealigneerd zijn met de MgO[001] richting.

Uit L.H. kan men besluiten dat zeker voor de lagere dosissen reeds een gedwongen menging van Ag in Fe ontstaat en andersom, dat de grenslaagruwheid verhoogt en voor hogere dosis zelfs de bilaagperiodiciteit verloren gaat. Uit H.H. kan men besluiten dat er een nieuwe fase ontstaat en dat er korrels gevormd worden. De oriëntatie van de korrels volgens de MgO[001] is slechter naarmate de dosis hoger is [41].

3.2.2 De elektrische en de magnetische eigenschappen.

De A.G.M. metingen zijn uitgevoerd bij kamertemperatuur voor een magnetiserend veld volgens de lagen en volgens de Fe[100] richting, d.i. volgens de gemakkelijke magnetisatie-richting voor Fe. *Figuur 3.17* toont de hysteresiscurve voor de hoogste ionendosis. *Figuur 3.18* toont het verloop van de saturatiemagnetisatie genormeerd door het aanwezige volume Fe. De saturatiewaarde neemt duidelijk af naarmate de dosis stijgt. Dit kan een oorzaak hebben in het feit dat Fe een ander moment kan krijgen indien het in een Ag matrix geplaatst wordt, hierop is echter niet verder in gegaan. Ook ziet men dat de tweede dosis net zoals in *fig. 3.15* waar de ruwheid getoond wordt, afwijkt van de verwachte positie in de grafiek. Een ander effect is dat voor de twee hoogste dosissen er een kleine (4 Oe) maar significante stijging van het coërcitief veld optreedt en dat dit gepaard gaat met een groter hysteresiseffect. Dit kan gecorreleerd worden aan een creatie van defecten voor deze dosissen. Ook bedraagt de A.F.F. van deze twee dosissen 0.5 hetgeen 0.3 lager is dan voor de eerste drie dosissen en het onbehandelde monster.

Bij bestraling kan het systeem gedwongen worden te mengen. Hierdoor kunnen er Fe-atomen in de Ag-matrix komen en omgekeerd. Indien dit in de juiste concentratie gebeurt kan men het Kondo-effect waarnemen. *Figuur 3.19* toont de resistiviteit versus temperatuur. Voor de eerste dosis ontstaat een minimum in de resistiviteit terwijl voor de tweede en de derde dosis het systeem al naar het spin-glas regime overhelt. Bij de twee hoogste dosissen blijft de verstrooiing aan fononen en defecten over.

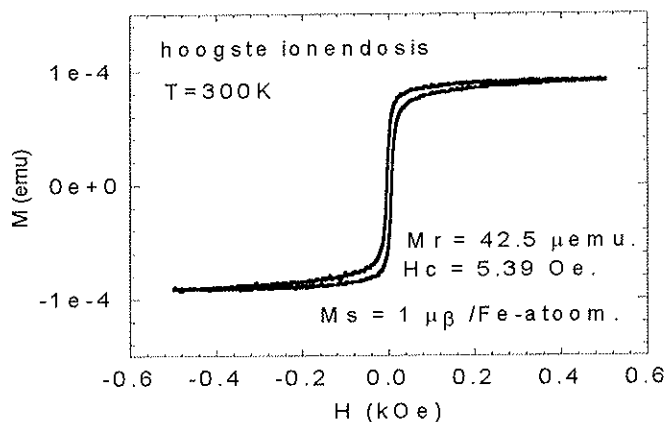


Fig. 3.17 Magnetisatiecurve van monster met de hoogste bestralingsdosis.

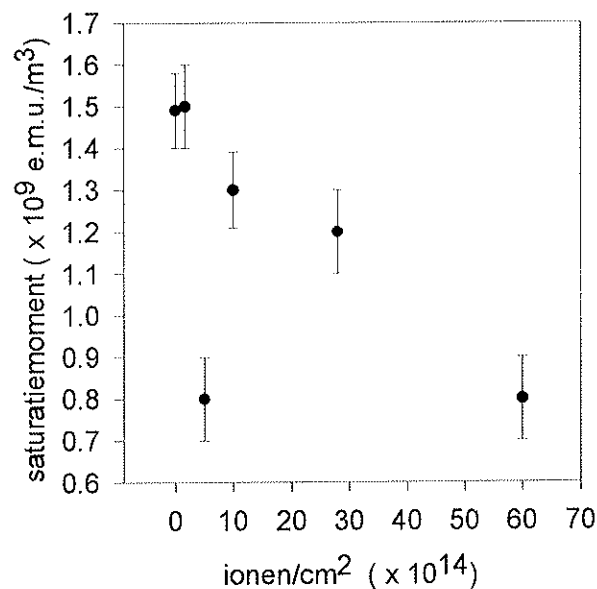


Fig. 3.18 Verloop van de saturatiewaarde van het magnetisch moment bij bestraling.

Vervolgens toont tabel 2 de magnetoweerstand bij verschillende temperaturen. Voor lagere temperaturen manifesteert zich de grootste M.R. (10%) bij de laagste dosis (de tweede dosis vertoont net zoals bij fig. 3.15 een afwijking). Opmerkelijk is dat het veld dat nodig is voor deze weerstandsdaling 0.03T is. Dit betekent een stijging van 90% (Fe/Cr) naar 3000% voor de verhouding van weerstandsdaling over het benodigde veld (zie 2.9). Magnetisatiemetingen (hier niet getoond) bij lage temperaturen tonen aan dat het veld waarbij de weerstandsdaling optreedt, verschilt van het saturatieveld voor de magnetisatie. Dit duidt erop dat de oorzaak van de weerstandsdaling niet gezocht moet worden in het gelijkrichten van de magnetisaties in de verschillende lagen. Uit Tabel 2 en fig. 3.19 blijkt dat de temperatuur waar resp. het

Kondo of spinglass effect ook de temperatuur is waar de M.R. verdwijnt, wat duidt op een andere oorzaak van de M.R. welke gecorreleerd is aan het Kondo resp. spinglass gedrag.

De conclusie hiervan is dat er een correlatie bestaat tussen veranderingen teweeg gebracht door de bestraling en de elektrische en magnetische eigenschappen. Dit wordt aangetoond door het veranderen van de saturatiemagnetisatie, het Kondo en het spinglass gedrag en de M.R.. De oorzaak van deze veranderingen zijn hoogst waarschijnlijk te wijten aan het mengen van Fe in Ag en andersom [41].

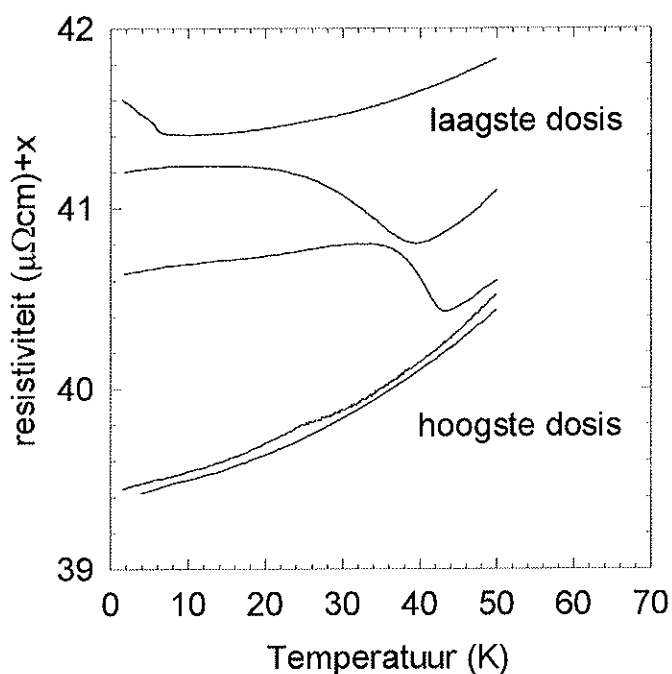


Fig. 3.19 Resistiviteit versus temperatuur.

	Dosis(10^{14} ionen/cm ²)	1.6K	4.2K	20K	30K	50K	260K
M.R.(%)	1.7	10.6	10.4	2.4	-	-	0.4
"	5	5.2	5.2	4.8	4.5	2.6	-
"	10	6.5	6.5	6	5.4	1.7	-
"	28	-	0.15	0.09	-	-	-
"	60	0.37	0.2	0.21	-	-	0.06

Tabel 2. De M.R. versus temperatuur.

3.3 Uitgloeijing

3.3.1 De structuurveranderingen

Voor uitgloeijing van dit systeem wordt verwacht dat het mobiele Ag via korrelgrenzen diffundeert naar de naburige zilverlagen en zo voor clustering zorgt van het Fe en het Ag. Indien deze clusters voldoende groot zijn en van een voldoende kristallijne kwaliteit kunnen er materiaalpieken ontstaan in het diffractiepatroon. Van dit systeem kunnen dan terug de elektrische en magnetische eigenschappen bestudeerd worden.

De uitgloeijingen gebeurden op hetzelfde monster in een vacuüm van $10^{-7} - 10^{-8}$ Torr om oxidatie te voorkomen. De duur bij een bepaalde temperatuur bedroeg steeds 1 uur waar systematisch 10-15min opwarmingstijd en 1 uur afkoelingstijd t.g.v. de traagheid van de oven bij moet worden gerekend. In *fig. 3.20* is het lage hoek diffractiepatroon zichtbaar en in *fig. 3.21* het hoge hoek diffractiepatroon nadat het monster op steeds toenemende temperaturen uitgloeoid werd.

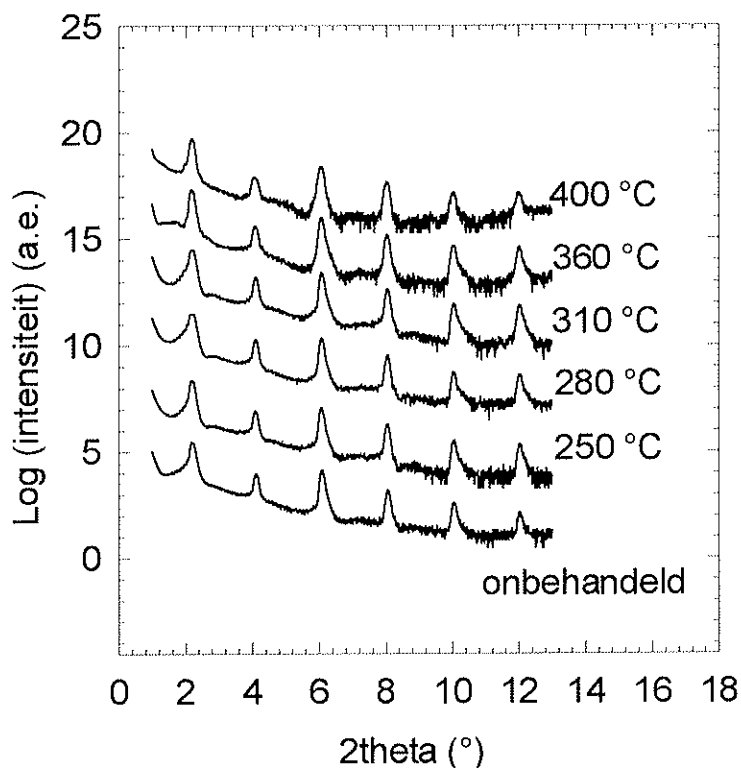


Fig. 3.20 Het L.H. diffractiepatroon na uitgloeijing.

In L.H. is er enkel een duidelijke verandering waar te nemen in de 5de en 6de orde multilaagpieken. De reden hiervoor is dat hogere orde pieken gevoeliger zijn voor grenslaagruwheid. De intensiteit van deze pieken neemt toe tot 310 °C, wat duidt op

een verbetering van de ganse grenslaag. Voor hogere temperaturen nemen ze terug af. De verklaring hiervoor is dat in eerste instantie bij lagere temperaturen de interdiffusie via korrelgrenzen, ruwheid over een grote afstand, nog niet voldoende belangrijk is. Op de plaatsen waar er geen korrelgrenzen zijn, zal de grenslaag kunnen verbeteren vanwege de onmengbaarheid van Fe en Ag. In dit kader toont het H.H. diffractiepatroon in *fig. 3.21* een relatieve en een duidelijke verandering in de 0de en 1ste orde multilaagpiek in H.H.. Simulaties met Slerf toonden aan dat dit overeenkomt met een daling van de grenslaaginterdiffusie van 1.6 tot 1.2-0.8 (360°C) atoomlagen. Voor hogere temperaturen zal echter de ruwheid van de grenslaag verhoogd worden door interdiffusie via de korrelgrenzen. Merk ook op dat de Kiessigfranjies erop duiden dat de dikte goed gedefinieerd blijft. Het is hier wel nodig te weten dat men enkel relatieve intensiteitsveranderingen van pieken kan interpreteren indien men verschillende diffractiepatronen vergelijkt. Absolute intensiteitsveranderingen kunnen niet geïnterpreteerd worden daar de experimentele beperkingen in dit geval niet toelaten dat men de totaal invallende intensiteit op het monster in de hand heeft.

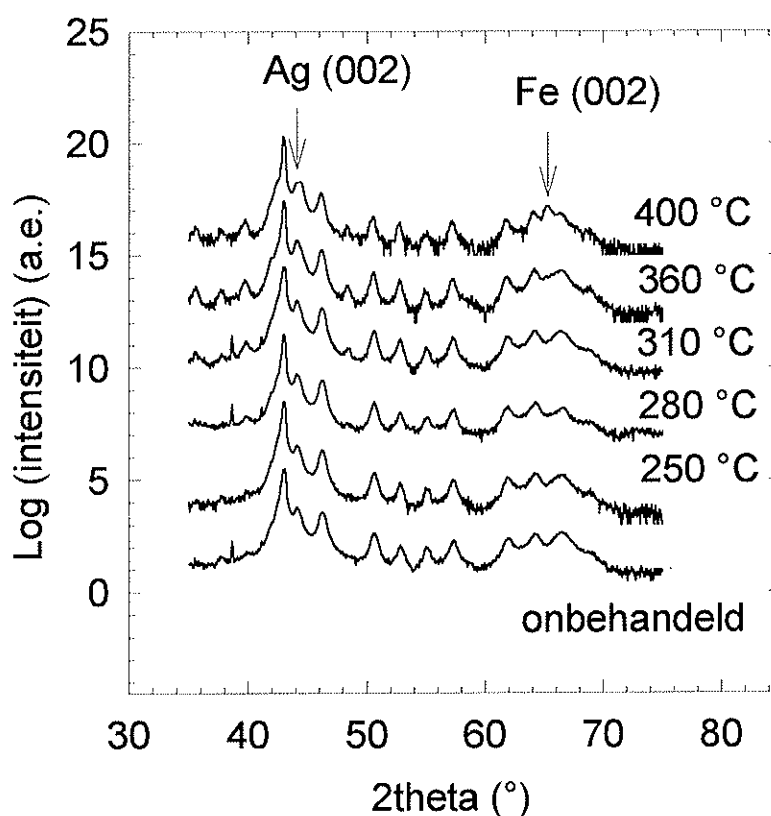


Fig. 3.21 Hoge hoek diffractiepatroon bij uitgløeing.

Figuur 3.21 toont het ontstaan van de (002) reflectie (bij $2\theta = 65^\circ$) van Fe na de uitgløeing op 400°C. Ook de Ag (002) reflectie (bij $2\theta = 44^\circ$) komt op en is intenser

maar minder duidelijk zichtbaar dan voor Fe daar ze overlapt met een multilaagpiek. Dit is het bewijs dat de materialen contact maken met naburige lagen waardoor er clusters ontstaan waarin de coherentielengte voldoende groot is om een waarneembare piek te vormen [14]. De interactie van de verstrooiing tussen verschillende clusters wordt beschreven met het principe gezien in 2.6.5a. Het nog steeds aanwezig zijn van de multilaagpieken wijst erop dat de bilaagperiodiciteit nog niet vernietigd, maar wel aangetast is. Beide structuren komen dus naast mekaar voor in het monster.

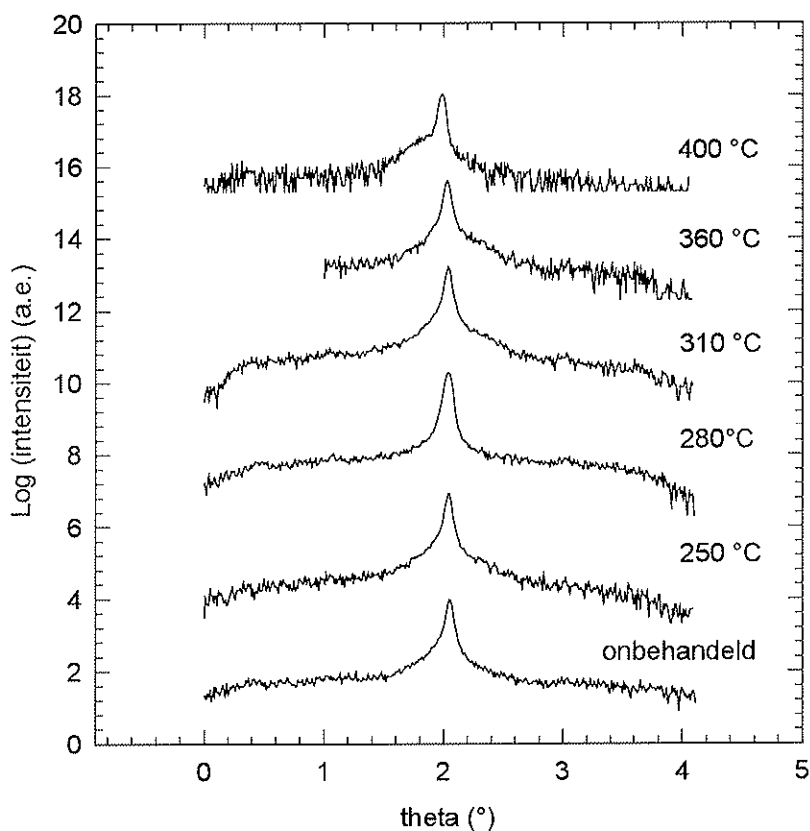


Fig 3.22 Rocking curve rond de tweede orde multilaagpiek in L.H bij uitgløeing.

Analoog zoals bij de bestraling zijn er rocking curves opgemeten rond resp. $2\theta = 3.3$ en de tweede orde multilaagpiek. Deze laatste is te zien in *fig. 3.22*. Op dezelfde wijze als bij bestraling wordt ook hier de grenslaagruwheid kwalitatief uitgedrukt door de verhouding van de intensiteit aan de voet van de piek tot de piekintensiteit te nemen voor de rocking curve rond de tweede orde multilaagpiek. Het resultaat is te zien in *fig. 3.23* waarin het verloop in overeenstemming is met de hierboven geformuleerde redenering.

In H.H. werden de rockingcurves opgemeten bij de laatste uitglouing voor $2\theta = 46^\circ$, 61° en rond de opkomende Fe(002) reflectie. *Figuur 3.24* toont een vergelijking van de hoge hoek rockingcurve voor $2\theta = 46^\circ$ met het niet behandelde monster. De versmalling van de curve duidt op een betere epitaxiale orientatie van de korrels [41]. Een dergelijke evolutie in de rocking curves werd ook waargenomen tijdens uitglouing van Mo/Ni multilagen [14].

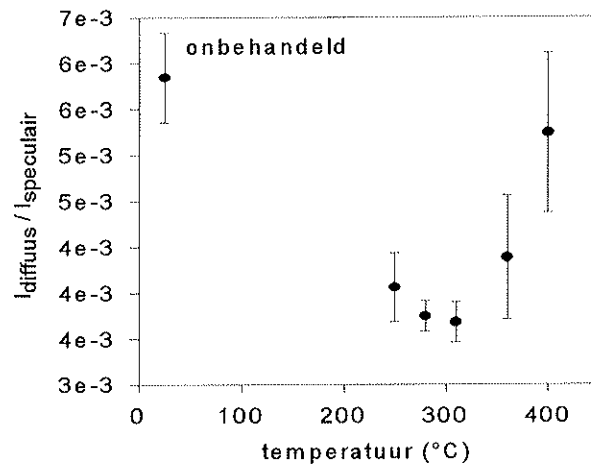


Fig. 3.23 De grenslaagruwheid versus temperatuur voor de uitglouingen.

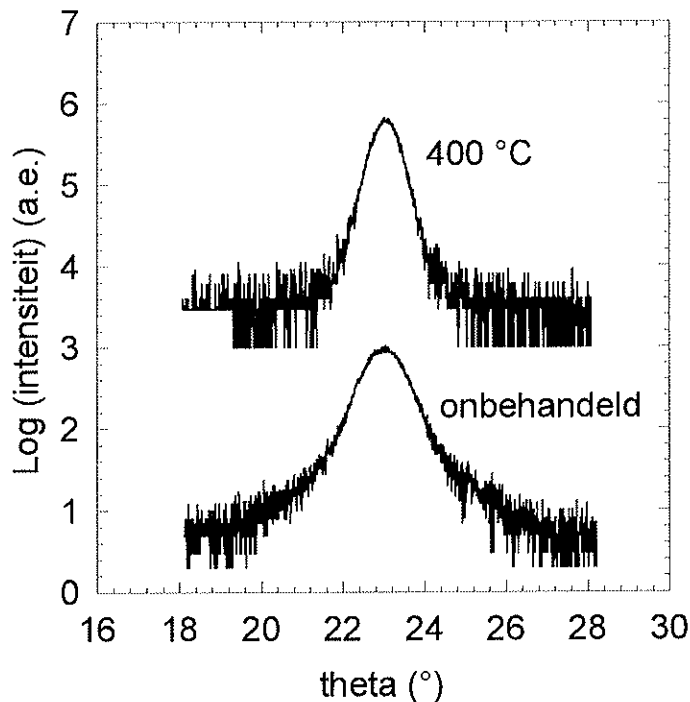


Fig. 3.24. Rocking curve rond $2\theta = 46^\circ$ bij uitglouingen.

3.2.2 De elektrische en magnetische eigenschappen.

De eerste meting van magnetoweerstand werd gedaan na de uitgloeïng bij 360 °C waar er een eerste teken van clustervorming is. *Figuur 3.25* toont de weerstandsdaling van 21% voor het aanleggen van een evenwijdig aan de lagen georiënteerd magneetveld wat een enorme stijging is t.o.v de 1.2% van het niet behandelde monster. Om deze stijging te verklaren, moet men rekening houden met verschillende aspecten. Er moet rekening gehouden worden met een mogelijke verandering in de koppeling van de nog steeds aanwezige Fe lagen, de ligging van de clusters (ze versperren de weg van de elektronen) en zowel de onderlinge oriëntaties van de magnetisaties van de clusters als de oriëntaties t.o.v. de lagen. De magnetoweerstand door koppeling tussen clusters werd ook onderzocht in een zilvermatrix met hierin clusters van Co of Ni [38]. Er werden magnetoweerstandsdalingen gevonden variërende van 40% tot 2%. Na de uitgloeïng op 400°C is de M.R. terug gedaald tot 18%. *Fig. 2.15* toont de A.G.M. meting van deze laatste uitgloeïng. Er is een duidelijke hysteresis-effect ontstaan met een coërcitief veld van 281 Oe. De A.F.F. bedraagt 0.61 en de saturatiewaarde wordt bereikt bij 1800 Oe. Betreffende de resistiviteit versus temperatuur zijn er zoals verwacht geen significante veranderingen opgemeten.

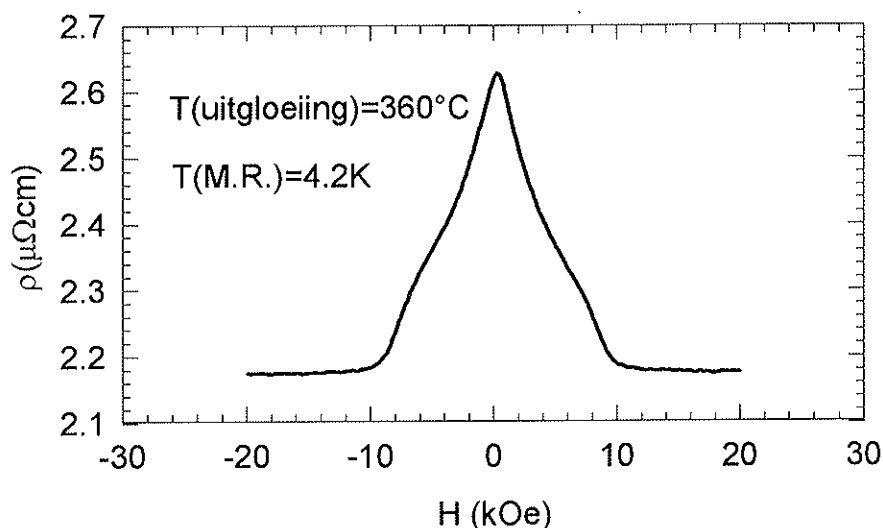
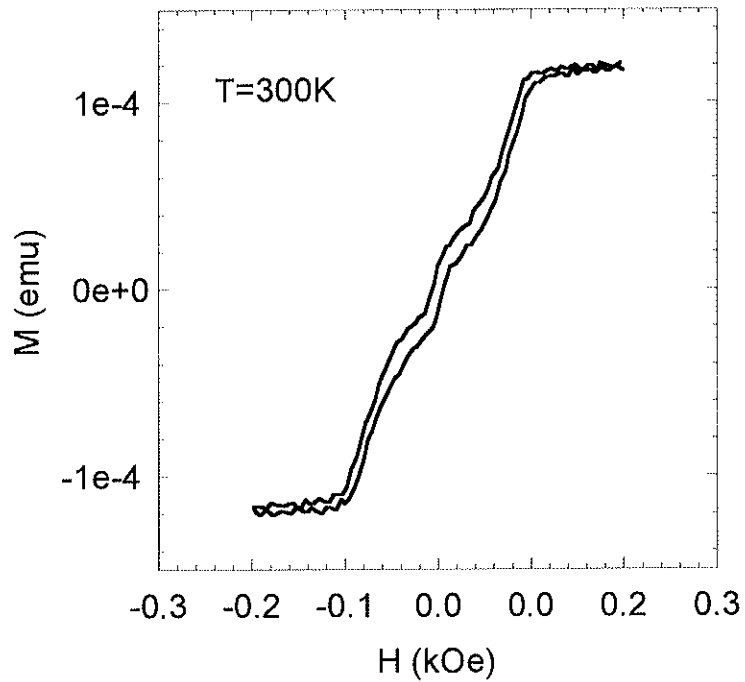


Fig. 3.25 De magnetoweerstand na uitgloeïng op 360°C.

De eerste reeks uitgloeijingen definieerden het temperatuursinterval waarin er structurele veranderingen plaatsvinden. Gezien het feit dat er een sterke verandering van de M.R. optreedt en dat het temperatuursinterval waarin de structuur verandert gekend is, was het interessant een nieuwe reeks uitgloeijingen op te starten.

Om zeker niet een eventueel extremum van de M.R. te missen is men begonnen met één uur op 200 °C. Vanwege de reeds grote veranderingen in de elektromagnetische effecten na deze uitgloeijing, zie fig. 3.26, werd besloten voor de tweede uitgloeijing dezelfde temperatuur aan te houden voor terug 1 uur. De M.R. steeg van 1.2% voor het niet behandelde monster tot 13% voor de eerste uitgloeijing en naar 15% na de tweede uitgloeijing. Het resultaat van XRD was dat de structuurveranderingen kleiner zijn dan de gevoeligheid van de metingen. De resultaten van de AGM metingen zijn dat het coërcitief veld eveneens toeneemt van 2.79 Oe naar 5.86 Oe tot 8.88 Oe evenals het saturatieveld dat een stijgend verloop van 30 naar 100 tot 140 Oe kent, zie fig. 3.26. Het opvallendste is echter het ontstaan van een extra kink en de naar boven gerichte kromming. Metingen met de SQUID bevestigden deze resultaten maar toonden bovendien dat er nog een extra kink meer aanwezig is. Ondanks het feit dat vele magnetische effecten met de tijd veranderen en dat de voorgeschiedenis vaak een belangrijke rol speelt, is de verklaring voor het opduiken van deze extra kink onduidelijk. Momenteel zijn er twee mogelijke verklaringen voor de kinken. De eerste veronderstelt de aanwezigheid van een 90° koppeling van de magnetisatie in het vlak. Bij het aanleggen van een magneetveld zullen dan de lagen waar de magnetisatie tegengesteld is aan het aangelegde veld zich niet direct richten volgens dit veld, maar via een tussenstap die overeenkomt met deze koppeling over 90°. Een andere mogelijkheid wordt gegeven door het interdiffunderen van een dunne laag Ag in de korrelgrenzen (zie oppervlakte-energie van Fe en Ag) waardoor er een antiferromagnetische koppeling kan ontstaan tussen de korrels in eenzelfde laag waardoor er een kink kan ontstaan omdat deze overwonnen moet worden. De tweede kink kan dan verklaard worden door een antiferromagnetische koppeling tussen de verschillende lagen. Kerr metingen zouden hier klaarheid kunnen brengen. Het interessante aan de SQUID metingen is dat men kan afdalen naar temperaturen waar ook de M.R. is opgemeten. *Figuur. 3.27* toont de magnetisatiecurve opgemeten bij 4.5 K. De kinken zijn verdwenen en er is duidelijk een sterke A.F.F. aanwezig wat de hoge M.R. kan verklaren. Bij hogere temperaturen ontstaan de kinken.

a) na 1 uur op 200°C,



b) na 2 uur op 200°C

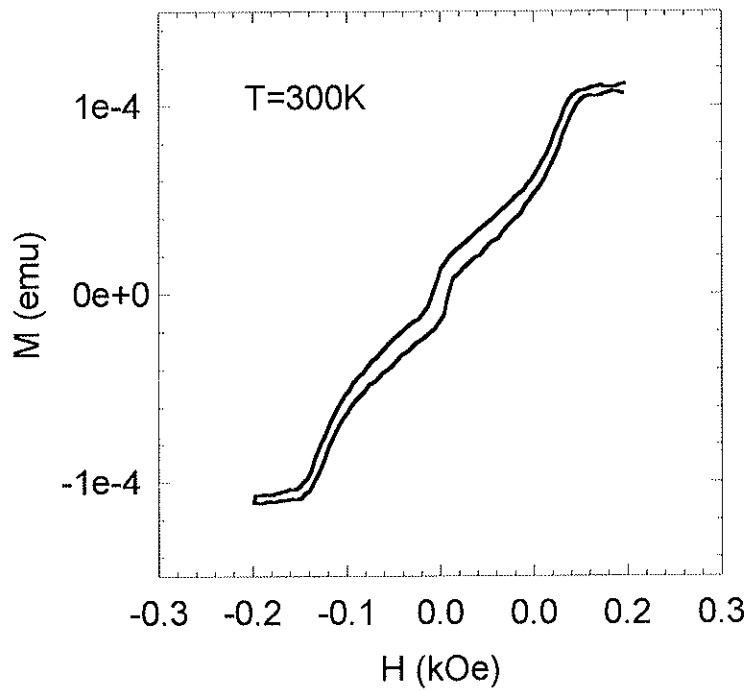


Fig. 3.26 a,b Magnetisatie curve van tweede reeks uitgloeingen.

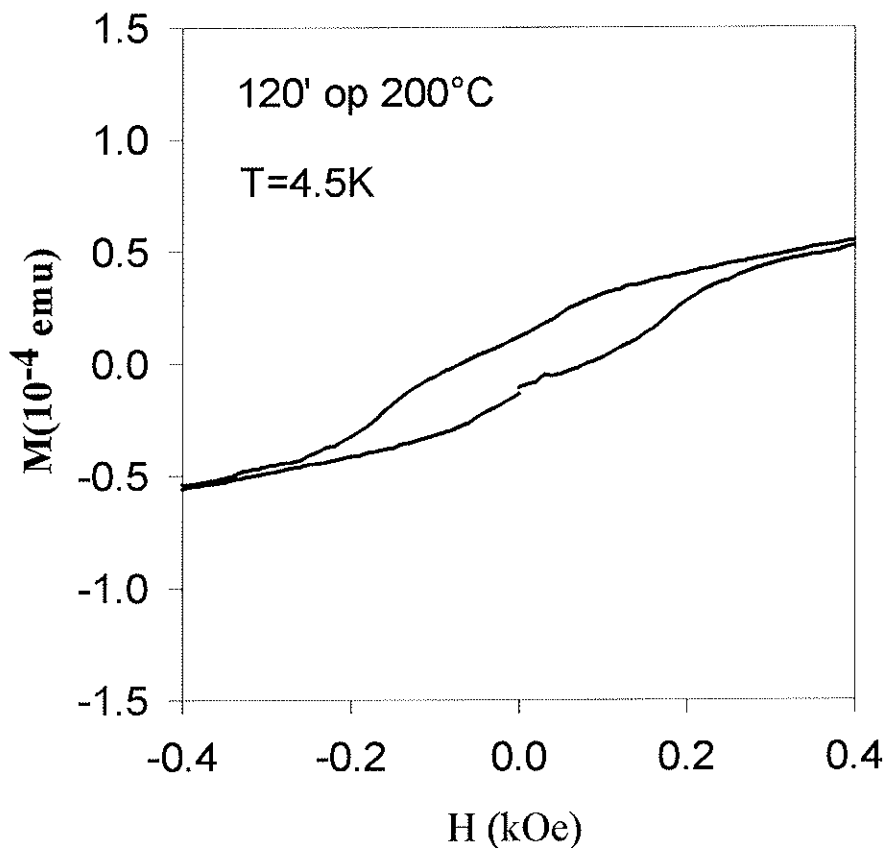


Fig. 3.27 SQUID-magnetisatiecurve op 4.5 K na 2 uren uitgløeiing op 200°C.

We besluiten dat uitgløeiing bij lagere temperaturen reeds interessante elektrische en magnetische effecten tot gevolg heeft en dat de structurele veranderingen die hiermee gepaard gaan niet zichtbaar zijn voor XRD. De magnetoweerstand stijgt van 1% naar 15%. Bij hogere temperaturen is er in eerste instantie een verbetering van de grenslaag waarna het systeem overgaat tot het vormen van clusters. De magnetoweerstand stijgt hierbij van 1% naar 21% [41].

4. Besluiten.

Om de invloed van de structuur op de elektrische en magnetische eigenschappen te bestuderen in dunne gelaagde systemen is geopteerd voor een Fe/Ag superrooster. Deze materialen zijn gekozen vanwege de afmetingen van hun eenheidscel waardoor epitaxiale groei en een goede karakterisatie door XRD mogelijk zouden zijn. Na de karakterisatie van het onbehandelde monster werd de structuur veranderd door bestraling en uitgloeïing. Het resultaat van dit onderzoek kan in de volgende punten samengevat worden :

- RHEED, AFM, RTS en XRD toonden aan dat met MBE Fe/Ag multilagen van hoge epitaxiale kwaliteit kunnen gegroeid worden. Ook volgde hieruit dat het ijzer ruwer groeit dan zilver hetgeen in overeenkomst is met de oppervlakte energieën van de twee materialen. Tot slot werd aangetoond dat de ruwheid verminderde naar de toplaag toe wat hoogst waarschijnlijk te wijten is aan de roostermissfit tussen het MgO substraat en de eerste Fe laag.
- Het gedwongen mengen van ijzer en zilver door ionenbestraling en het ontstaan van clusters door uitgloeïing op voldoende hoge temperatuur (250-400°C) kan goed gekarakteriseerd worden door XRD in deze superroosters. Het mengen door ionenbestraling komt tot uiting in een verandering van de relatieve intensiteiten in het H.H diffractiepatroon. De uitgloeïing verbetert in eerste instantie de grenslaag en er worden in de latere fase t.g.v. interdiffusie via de korrelgrenzen clusters gevormd van ijzer en zilver. Dit effect manifesteert zich in het H.H. diffractiepatroon door de toename van de Fe(002) en de Ag(002) reflectie. Tot slot worden de korrels door deze uitgloeïing beter gealigneerd met mekaar.
- Uitgloeïing op lagere temperaturen (200 °C) geeft interessante veranderingen in de elektrische en magnetische eigenschappen. XRD is niet gevoelig genoeg om de structurele veranderingen die hiermee gepaard gaan te detecteren. De magnetoweerstand stijgt bij deze uitgloeïingen van 1% naar 15%. De oorsprong van deze magnetoweerstand ligt in het overwinnen van een niet-ferromagnetische koppeling tussen de verschillende magnetische lagen.
- Ionenbestraling geeft een grotere (1% naar 10%) magnetoweerstand die een andere oorsprong kent dan de magnetoweerstand die als oorsprong een antiferromagnetische koppeling van de verschillende magnetische lagen heeft. Deze ionenbestraling biedt tevens de mogelijkheid om in superroosters een Kondo- of spinglass systeem te verkrijgen hetgeen werd waargenomen in de resistiviteit versus temperatuur metingen. Tot slot bleek de temperatuur waarbij de magnetoweerstand verdwijnt in de buurt te liggen van de temperatuur waar het Kondo- en spinglasseffect verdwijnt.

- Uitgloeïing op hogere temperaturen (250-400°C) gaf aanleiding tot clustering. Deze uitgloeïingen gaven een magnetoweerstandsstijging van 1% naar 21% magnetoweerstand. De magnetoweerstand hier, vindt net zoals bij uitgloeïing op lagere temperaturen, zijn oorsprong in het gelijkrichten van de magnetisaties in de verschillende magnetische gebieden.

Hieruit kan men besluiten dat het begrijpen van de invloed van de structuur op de magnetoweerstand een goed begrip vereist van verschillende mechanismen.

Referenties

- [1] A. Barthélémy, A. Fert, R. Morel en L. Steren, *Physics World*, November 1994, 34
- [2] T. D. Moustakas, *MRS Bulletin*, November 1988, 29
- [3] G. Verbanck, *Magnetoweerstand in epitaxiaal gegroeide Fe/Cr multilagen*, licentiaatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1992
- [4] J. Dekoster, *Studie van metastabiel bcc Co*, doctoraatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1993
- [5] P. Etienne, *J. Massies, J. Phys. III France* **3**, 1581 (1993)
- [6] W. Bolse, *Nucl. Instrum. and Meth. B* **80/81**, 137 (1993)
- [7] A. M. Mazzone, *Thin Solid Films* **216**, 145 (1992)
- [8] A. M. Mazzone, *Phys. Stat. Sol. (b)* **170**, 413 (1992)
- [9] M. T. Robinson, *Material Research Society* **279**, 3 (1993)
- [10] G. Gladyszewski, Ph. Goudeau, A. Naudon, C. Jaouen and J. Pacaud, *Applied Surface Science* **65/66**, 28 (1993)
- [11] G. Gladyszewski, Andrzej Smal, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **62**, 541 (1992)
- [12] F. Tamisier, J. Pacaud, C. Joaun and G. Gladyszewski, *Amorphisation by ion irradiation of the Mo-Ni multilayered structure*, in prep.
- [13] M. Hansen, K. Anderko *Constitution of binary alloys* (McGraw-Hill, New York, 1958)
- [14] K. Temst, *Characterization of interface roughness and diffusion in metallic multilayers*, doctoraatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, (1994)
- [15] Z. Mitura, A. Daniluk, *Surface Science* **277**, 229 (1992)
- [16] Z. Mitura, M. Strózak and M. Jaloehowski, *Surface Science Letters* **276**, 15 (1992)
- [17] Z. Mitura, P. Mazurek, K. Paprocki and P. Mikołajczak, *Investigations of a new method to control growth*, geaccepteerd voor publikatie in *Applied Physics A*
- [18] A. Vantomme, *Vorming en karakterisatie van dunne Co-Si silicidelagen*, doctoraatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1991
- [19] R. Craeynest, *Strukturele, elektronische en supergeleidende eigenschappen van Pb/Cu multilagen*, licentiaatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1989
- [20] A. Vantomme, *persoonlijke mededeling*
- [21] H. Vanderstraeten, *Characterization of structural disorder in multilayers and superlattices using x-ray diffraction*, doctoraatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1991
- [22] J.-P. Eberhart, *Methodes physiques d'etude des mineraux et des materiaux solides* (Doin éditeurs, Paris, 1976)
- [23] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New

York, 1981)

- [24] G. Gladyszewski, *Thin Solid Films* **204**, 473 (1991)
- [25] L. G. Parratt, *Phys. Rev.* **95**, 359 (1954)
- [26] E.E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstraeten en Y. Bruynseraede, *Phys. Rev B* **45**, 9292 (1992)
- [27] G. Gladyszewski, *Thin Solid Films* **204**, 473 (1991)
- [28] G. Gladyszewski persoonlijke mededeling.
- [29] M. Cohen, *Introduction to magnetic materials* (Addison-Wesley Publishing Company, 1972)
- [30] R.P. Feynman, R. B. Leighton, M. Sands, *The Feynman lectures on physics* (Addison-Wesley publishing company, 1977)
- [31] J. Kondo, *Progress of Theoretical Physics* **32**, No.1, July 1964
- [32] H. Vloeberghs, *Magnetoweerstand en Hall-effekt in twee-dimensionale spin-glazen*, licentiaatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1988
- [33] H. Vloeberghs, *Interferentie en magnetische verstrooiing van elektronen in mesoskopische metaalstructuren*, doktoraatsverhandeling, Katholieke Universiteit Leuven, 1992
- [34] J. Barnas, *Acta Physica Polonica A* **85**, no.1 (1994)
- [35] Mitura persoonlijke mededeling..
- [36] C. Templier, B. Boubeker, H; Garem, E.L. Mathé and J.C. Desoyer, *Phys. Stat. Sol.* **92a**, 511 (1985)
- [37] F. Pan, B. X. Liu, *J. Phys. Condens. Matter* **5**, 315 (1993)
- [38] D. J. Kubinski, H. Holloway, *J. Appl. Phys.* **77** (2), 782 (1995)
- [39] G. Gladyszewski, *Materials Letters* **13**, 287 (1992)
- [40] G. Gladyszewski, R. Schad, K. Temst, F. Beliën, E. Kunnen, G. Verbanck, Y. Bruynseraede, R. Moons, A. Vantomme, G. Langouche, *Growth and Structure Characterization of Ag(001)/Fe(001) Superlattices*, in voorbereiding.
- [41] G. Gladyszewski, J. Barnas, K. Temst, P. Beliën, G. Verbanck, E. Kunnen and Y. Bruynseraede, F. Bodart, *Modification of structure , electric and magnetic properties of epitaxially grown Ag(001)/Fe(001) superlattices*, in voorbereiding.
- [42]. G. Gladyszewski, R. Schad, K. Temst, P. Beliën, E. Kunnen and Y. Bruynseraede, *Epitaxially Grown Ag(001)/Fe(001) Superlattices*, in voorbereiding.

