

ulm university universität UUUIM

Institut für Festkörperphysik



Epitaktische FeAI-Filme auf Saphir und ihre magnetischen Eigenschaften

Dissertation

zur Erlangung des Dr. rer. nat. der Fakultät für Naturwissenschaften der Universität Ulm

vorgelegt von Moritz Trautvetter aus Offenbach/Main

Februar 2011

Amtierender Dekan:	Prof. Dr. Axel Groß
 Gutachter: Gutachter: 	Prof. Dr. Paul Ziemann PD Dr. Joachim Bansmann

Tag der Promotion:5. Mai 2011

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung 5			5
2	Allgemeine Grundlagen			
	2.1	Volum	eneigenschaften des Materialsystems FeAl	7
	2.2	Wachs	tum von dünnen FeAl Filmen	10
	2.3	Defekt	erzeugung durch Ionenbestrahlung	11
		2.3.1	Energieverlustmechanismen	11
		2.3.2	Strahlenschaden	12
		2.3.3	FeAl unter Ionenbestrahlung	13
		2.3.4	Ausheilen von Defekten	15
3	Präparationstechniken 1			17
	3.1	Lasera	blation	18
	3.2	Präpai	ration von dünnen FeAl Schichten	19
	3.3	Ionenb	estrahlung von FeAl Filmen	20
		3.3.1	Bestrahlungen im AC-Suszeptometer	21
		3.3.2	Bestrahlungen ohne <i>in-situ</i> Analyse	22
4	Ana	lysetee	chniken	23
	4.1	Röntge	$enbeugung (XRD) \dots \dots$	23
	4.2	Rutherford-Backscattering (RBS)		25
	4.3	SQUID Magnetometrie		26
		4.3.1	Bestimmung vom para- und ferromagnetischen Anteil der FeAl Filme	26
	4.4	AC-Su	szeptometer	27
		4.4.1	Grundlagen der AC-Suszeptometrie	28
		4.4.2	Kryostat und Probenhalter	31
		4.4.3	Mess- und Steuertechnik	32
		4.4.4	Die Software für das AC-Suszeptometer	33
		4.4.5	Arbeitsbereich des AC-Suszeptometers	35
5	Unt	ersuch	ung paramagnetischer FeAl Filme auf Al_2O_3	37
	5.1	Topog	raphie der FeAl Filme	37
	5.2	Röntge	enstrukturanalyse der FeAl Filme	38

	5.3	Epitaxie von FeAl auf (0001) Saphir	42	
	5.4	Chemische Ordnung der FeAl Filme auf (0001) Saphir \ldots	49	
	5.5	Epitaxie von FeAl auf (1120) Saphir $\dots \dots \dots$	50 52	
	$5.0 \\ 5.7$	Magnetismus als Maß für die chemische Ordnung der FeAl Filme	$55 \\ 57$	
C	Tam		69	
0	fone	Magnetisiorung von jonenhestrahlten FeAl Filmen	66 66	
	6.2	Koerzitivfeld von jonenbestrahlten FeAl Filmen	71	
	6.3	Reversible Prozessführung	75	
	6.4	Magnetische Relaxation von bestrahlten FeAl Filmen	78	
7	Nar 7.1	nostrukturierte magnetische FeAl Filme nach Ionenbestrahlung Maskenpräparation auf den FeAl Filmen mittels unkonventioneller Litho-	83	
	- 0	graphie	84	
	7.2	Einfluss der Ionenbestrahlung auf die Magnetisierbarkeit	87	
8	Zusammenfassung und Ausblick 89			
9	Summary		93	
Aı	nhan	g	96	
A	Fehlertoleranzen 9'			
B Kristallographie			99	
	B.1	Kristallographische Notationen	99	
	B.2	Röntgenreflexe	100	
	B.3	Eulerwinkel und stereographische Projektionen spezieller Richtungen von FeA	1100	
С	Um	rechnung von cgs in SI Einheiten	103	
Li	terat	urverzeichnis	105	
LI			100	
\mathbf{Er}	klär	ung	117	
Ve	eröffe	entlichungen und Tagungsbeiträge	118	
Le	bens	slauf	121	
Da	anksa	agung	123	

Kapitel 1

Einleitung

Angesichts einiger hervorragender metallphysikalischer Eigenschaften ist die Metalllegierung Eisen-Aluminium Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Mit seiner verringerten Dichte bei nahezu gleichbleibender Härte und Dehnbarkeit gegenüber Eisen ist es insbesondere ein beliebter Werkstoff, nicht zuletzt wegen seiner guten Hitze und Oxidationsbeständigkeit [1–6]. Die Legierung $\operatorname{Fe}_x \operatorname{Al}_{1-x}$ kann in beliebigem Verhältnis gemischt werden, wobei vor allen Dingen in der eisenreichen Legierung mit x > 0, 47 ein großes Interesse an dieser Legierung besteht aufgrund ihrer strukturellen und magnetischen Phasenübergänge [7]. Dabei ist ein atypisches magnetisches Verhalten hervorzuheben, welches im Bereich äquiatomarer Stöchiometrie bei Raumtemperatur beobachtet werden kann. Das in der chemisch geordneten B2-Struktur vorliegende FeAl verhält sich paramagnetisch, wohingegen die chemisch ungeordnete, aber ebenfalls in der bcc-Struktur auftretende A2-Phase eine makroskopische ferromagnetische Magnetisierung zeigt [8]. Dieser Phasenübergang und die zugrunde liegende Korrelation zwischen struktureller Unordnung und dem damit verbundenen Ferromagnetismus ist trotz intensiver experimenteller und theoretischer Untersuchungen nicht vollständig verstanden.

Für viele Applikationen wie Sensoren oder Schutzschichten ist es wünschenswert, die Legierung auf einem Substrat als dünnen Film vorliegen zu haben. Üblicherweise werden metallische Filme durch Sputtern [9], Molekularstrahlepitaxie [10, 11] oder durch gepulste Laserablation aufgebracht, da diese Verfahren unter Ultrahochvakuum arbeiten. Dies ist notwendig, um das oxidationsfreudige Aluminium als Metall in den FeAl Film einzubinden und eine hohe Reinheit des Films zu gewährleisten. Je nach Wachstumsgeschwindigkeit und Substrattemperatur wächst der FeAl Film nanokristallin bis polykristallin, wobei bisher noch kein epitaktisches Wachstum bekannt ist. Dies würde neuen Fragestellungen wie beispielsweise die Leitfähigkeit dünner FeAl Filme entlang ausgewählter Kristallachsen, Rastertunnelmikroskopie bestimmter Oberflächen von FeAl oder der Aufbau mehrschichtiger epitaktischer Metallfilme eine Plattform bieten. Weiterhin kann an dünnen Filmen der magnetische Phasenübergang reversibel untersucht werden, da sich mit der zur Verfügung stehenden Ionenstrahltechnik sukzessiv der Grad der Unordnung in dem bestrahlten Areal des FeAl Films einstellen lässt. Bei geeigneter, dem Film vorgestellter Bestrahlungsmaske können lokale magnetische Bereiche in einer paramagnetischen Matrix eingebettet werden, was im Hinblick auf die heutigen Speichermedien eine interessante Applikation bildet.

Der Fokus dieser Arbeit liegt einerseits auf der Präparation epitaktisch gewachsener FeAl Filme, andererseits auf der Untersuchung des Zusammenhangs zwischen strukturellen und magnetischen Phasen der FeAl Filme bei *in-situ* Beobachtung des magnetischen Phasenübergangs während der Ionenbestrahlung. Da FeAl ein sehr komplexes Verhalten bezüglich der Struktur und des Magnetismus in Abhängigkeit der Stöchiometrie sowie der Temperatur aufweist, ist in Kapitel 2 eine Übersicht über das Materialssystem gegeben. Ferner wird erläutert, wie sich FeAl unter Ionenbestrahlung verhält, vor allem im Hinblick auf die Gitterstruktur und den mit der Defekterzeugung generierten magnetischen Phasenübergang.

Die für die Präparation der Filme notwendigen Techniken werden in Kapitel 3 erläutert, wobei zunächst auf die Herstellung der Filme mit der gepulsten Laserablation eingegangen wird. Anschließend folgt eine Beschreibung der Ionenstrahlanlage, wohingegen die Details zu dem in Ulm entwickelten AC-Suszeptometer in Kapitel 4 diskutiert werden. Für eine umfassende Charakterisierung der FeAl Filme hinsichtlich ihrer Stöchiometrie, der Struktur und ihrer magnetischen Eigenschaften werden zusätzlich weitere Messtechniken wie Rutherford-Rückstreuung, Röntgendiffraktometrie und SQUID Magnetometrie eingesetzt, welche ebenfalls kurz in Kapitel 4 erläutert werden.

Die Ergebnisse bezüglich des epitaktischen Wachstums der FeAl Filme sind in Kapitel 5 dargelegt. Zunächst wird mit Rasterkraftmikroskopie die topografische Struktur bei verschiedenen Wachstumsmodi der FeAl Filme untersucht. Mittels Röntgendiffraktometrie und Transmissionselektronenmikroskopie lassen sich die kristallographischen Beziehungen des epitaktisch gewachsenen FeAl Films auf Saphiroberflächen der Richtungen (0001), $(11\overline{2}0)$ und $(1\overline{1}02)$ angeben. Die sich mit der Ausbildung der Epitaxie einstellende chemische Ordnung bedingt einen Phasenübergang vom ferromagnetischen in den paramagnetischen Zustand, welcher in Kapitel 5 in Abhängigkeit der Temperatur untersucht wird.

Für den sukzessiven Phasenübergang von para- nach ferromagnetisch werden die in der paramagnetischen Phase vorliegenden FeAl Filme mit Ionen bestrahlt. Die Bestrahlung sowie die *in-situ* gemessene Suszeptibilität der FeAl Filme werden in Kapitel 6 behandelt. Weiterhin werden die Ergebnisse einer durch erneutes Tempern reversibel gestalteten Prozessführung gezeigt, sowie Untersuchungen zu magnetischen Relaxationen in dem FeAl Film nach der Ionenbestrahlung. Im Hinblick auf mögliche Applikationen in der Speichertechnologie wird anschließend ein Verfahren zur Herstellung ferromagnetischer Punkte in einer paramagnetischen Matrix vorgestellt.

Zum Abschluss werden in Kapitel 8 die Ergebnisse zusammengefasst und die gewonnenen Erkenntnisse auch im Hinblick auf zukünftige Experimente und mögliche Applikationen diskutiert.

Kapitel 2

Allgemeine Grundlagen

2.1 Volumeneigenschaften des Materialsystems FeAl

Bei Legierungen aus Eisen und Aluminium stellt die Natur ihre Vielfalt in vollen Umfang zur Schau. Insbesondere variiert die Struktur bei verschiedenen Mischverhältnissen. Auch bei anderen interessanten physikalischen Eigenschaften wie ferromagnetisches Verhalten, elektrische und thermische Leitfähigkeit fanden sich stetig Überraschungen, die zu erklären bis heute noch nicht vollständig möglich sind.



Abbildung 2.1: Phasendiagramm von FeAl nach [12], entnommen aus [13]. Übergangsmetalllegierungen wie FeAl sind bekannt für ihr bemerkenswertes magnetisches Verhalten, vor allem im Hinblick auf ihre industrielle Verwendung. Zusätzlich weist FeAl noch eine Reihe weiterer, für die Applikation interessante Eigenschaften auf, wie z.B. die hohe Oxidationsfestigkeit bei erhöhten Temperaturen [14], seine geringe Dichte, hohe Festigkeit und Härte.

Eisen und Aluminium sind über den gesamten Konzentrationsbereich mischbar [1, 7]. Ausgehend von der bcc-Struktur bei reinem Eisen (A2) wird diese beibehalten bis zu einem stöchiometrischen Verhältnis Fe₅₀Al₅₀. Im Bereich von Fe₇₅Al₂₅ bildet sich unter geeigneten Bedingungen die Übergitterstruktur D0₃ (BiF₃) aus, die bei weiterer Hinzugabe von Al in die B2 (CsCl) Struktur übergeht [15]. Diese besteht aus zwei um eine halbe Raumdiagonale verschobenen einfach kubischen Gittern, die einmal von Fe (Untergitter I), einmal von Al (Untergitter II) besetzt sind. Im Bereich von $0,3 \le x \le 0,5$ für Fe_{1-x}Al_x kann man fünf Phasen je nach Temperatur und Al Konzentration unterscheiden [12] (vgl. Abb. 2.1). Bei nied-

rigen Temperaturen liegt ausschließlich die B₂ Struktur vor, die in Abb. 2.1 rechts mit

 α_{2r} bezeichnet wird. Eine ausführliche Beschreibung der verschiedenen Strukturen sind in [12, 16, 17] zu finden.

Betrachtet man das magnetische Verhalten der verschiedenen eisenreichen Legierungen, liegt die Curietemperatur für reines Eisen bei $T_C = 769^{\circ}$ C. Mit zunehmendem Al Anteil sinkt sie auf 550°C für die D0₃ Struktur (Fe₇₅Al₂₅). Die Sättigungsmagnetisierung für die chemisch geordneten Phasen kann durch eine "Verdünnung" des magnetischen Moments von Eisen beschrieben werden. Im Bereich bis maximal 25at% Al gilt für die Sättigungsmagnetisierung $\overline{M} = M_{Fe} \cdot (1 - c)$, wobei M_{Fe} das magnetische Moment von reinem Eisen und c die Konzentration von Al ist (vgl Abb.2.2).



Abbildung 2.2: Magnetische Verdünnung von FeAl durch Hinzumischen von Al für getemperte (Strich-Punktlinie) und "cold-worked" FeAl Legierungen [13]. Die Einheit der Ordinate ist vermutlich $\mu_B/f.u.$ und nicht μ_B/mol .

Bei Al Konzentrationen $x \ge 0,27$ finden sich Anomalien in den magnetischen Eigenschaften, die vom Präparationsprozess der Legierung und von der bei der Messung vorliegenden Temperatur abhängen [18, 19]. In diesem Bereich kann einerseits die reine Eisenphase, die B_2 und/oder die DO_3 Phase vorliegen. Die durch schnelles Abkühlen von 1200°C hergestellten Proben Fe₇₃Al₂₇ für die Untersuchungen in [19] zeigen nach Anlassen auf die entsprechenden Temperaturen Spinglasverhalten (in der Literatur auch mit Miktomagnetismus bezeichnet). Bei der Stöchiometrie $Fe_{70}Al_{30}$ ist die Legierung oberhalb von 400 K ferromagnetisch, unterhalb paramagnetisch. Bei weiterem Abkühlen verhält sie sich bei etwa 170 K superparamagnetisch, bevor sie bei 92 K in den Spinglas Zustand übergeht [17, 20–22]. In vielen Berichten wird das Spinglasverhalten z.B. durch ein Wechselspiel aus ferro- und antiferromagnetischen Wechselwirkungen erklärt [23]. Legierungen mit einem Al Anteil von $0,304 \le x \le 0,45$ sind nicht ferromagnetisch, sofern sie chemisch geordnet sind [19]. In diesem Bereich wurde nur noch die B_2 und nicht mehr die DO_3 Struktur gefunden. Bei der Stöchiometrie Fe₅₀Al₅₀ sollte demnach eine perfekte CsCl Struktur vorliegen. Nach einer Abschätzung über das elektrische Widerstandsverhältnis $P = \frac{\rho(296 \text{ K})}{\rho(4,2 \text{ K})}$ gibt es allerdings eine intrinsische Defektkonzentration von 0,25 at%, die nach obigen Messungen kein

ferromagnetisches Verhalten verursacht [24]. In Abb. 2.3 ist ein vereinfachtes magnetisches Phasendiagramm für den obigen Fall dargestellt.



Abbildung 2.3: Magnetische Phasendiagramm von $\operatorname{Fe}_{x}\operatorname{Al}_{1-x}[15]$; die gepunktete Linie gibt den Phasenübergang von einem Gemisch verschiedener Phasen an (vgl. Abb. 2.1).

Für chemisch ungeordnete Legierungen im Bereich $0, 2 \leq x \leq 0, 5$ für Fe_{1-x}Al_x ergibt sich ein drastischer Unterschied im magnetischen Verhalten. Die Sättigungsmagnetisierung nimmt im Bereich bis 30at% Al entsprechend dem Verdünnungsgesetz ab. Bei höheren Al Konzentrationen gehorcht sie nicht mehr dem Gesetz, sondern fällt schneller ab (vgl. Abb. 2.2, "cold-worked"). Oberhalb von 50at% Al verschwindet das ferromagnetische Verhalten vollständig. Für die chemisch ungeordneten FeAl Legierungen im Bereich von $0, 3 \leq x \leq 0, 5$ für Fe_{1-x}Al_x wurden keine Anomalien gefunden und die Legierung verhält sich wie ein typischer Ferromagnet [16]. In der perfekten Fe₅₀Al₅₀ Stöchiometrie ist das magnetische Moment im ungeordneten Zustand $M_{FeAl} = 1\mu_B$ anstelle der $M_{Fe} = 2, 2\mu_B$ für Eisen [25].

Durch gezieltes Einbringen von Defekten ist es möglich, den Phasenübergang von paramagnetisch nach ferromagnetisch genau zu untersuchen. Zu den dabei verwendeten Methoden zählt das "Ballmilling" [26, 27], das Abschrecken von erhitzten Legierungen [28], die plastische Deformation im erstarrten Zustand [29, 30] sowie Ionenbestrahlung [31, 32] und Ionenstrahlmischen [33]. Ferner besteht die Möglichkeit, schon während der Präparation die Defekte in das FeAl Material einzubringen.

Mit kaloriemetrischen Messungen wurde für gemahlenes $Fe_{60}Al_{40}$ einen Phasenübergang bei $T_1 = 420 \text{ K}$ beobachtet, der dem Ausheilen von Antisite-Defekten und Korngrenzen zugeordnet werden kann [26]. Dabei sinkt die Magnetisierung des getemperten Pulvers um 65% gegenüber der Magnetisierung nach dem Mahlen der Legierung. Eine zweite Ausheilstufe findet man bei $T_2 = 680 \,\mathrm{K}$, bei der die Legierung rekristallisiert. Mit dieser verschwindet das ferromagnetische Verhalten der Legierung, da sich gleichzeitig die chemische Ordnung der B₂-Phase einstellt. Bei mechanisch verspanntem FeAl mit einer Deformation von $\epsilon > 14\%$ findet man noch eine Ausheilstufe bei einer Temperatur von $T_3 = 880 \,\mathrm{K}$ [30]. Es konnte in dieser Arbeit auch gezeigt werden, dass die Temperaturen der Ausheilstufen davon abhängen, wieviel Stress bzw. Deformation der FeAl Kristall erfahren hat. Je stärker der Kristall beansprucht wurde, desto niedriger sind die Temperaturen zum Ausheilen der Defekte. Bei starker Deformation wurde eine Relaxation der Suszeptibilität sogar bei Raumtemperatur gefunden [34]. Als Erklärung dafür sind Relaxationen der sogenannten Anti-Phase-Boundary Defekte. Dies sind Versetzungen von Kristallebenen derart, dass eine Reihe Eisenatome unmittelbar einer weiteren Reihe Eisenatome gegenübersteht, anstelle der Reihe aus Aluminiumatomen.

Da in dieser Arbeit $Fe_{1-x}Al_x$ Filme mit einem stöchiometrischen Verhältnis von x = 0,33bis x = 0,5 untersucht werden, ist besonders der Phasenübergang von para- nach ferromagnetisch durch die eingebrachte chemische Unordnung herauszuheben. Aufgrund der bei Raumtemperatur durchgeführten Experimente wird kein Spinglas- oder superparamagnetisches Verhalten beobachtet werden.

2.2 Wachstum von dünnen FeAl Filmen

Bei der Präparation von dünnen Schichten werden meist Verfahren angewendet, bei der das auf der Oberfläche adsorbierte Material aus der Gasphase abgeschieden wird. Für die Art des Filmwachstums gehen dabei die Parameter Adsorption, Desorption, Oberflächendiffusion, sowie Oberflächen- und Grenzflächenspannungen ein. Abhängig von diesen Größen kann man drei verschiedene Wachstumsmodi unterscheiden [35–37]: Volmer-Weber-Wachstum, Frank-Van-der-Merwe-Wachstum und Stransky-Krastanov-Wachstum.

Bisher gibt es wenig Veröffentlichungen zur Präparation dünner FeAl Filme [1, 38–40]. Die Untersuchungen konzentrieren sich dabei meist auf dieselben physikalischen Parameter wie bei Vollmaterial, allerdings sind die gewachsenen Filme meist Multilagen aus Al und Fe [38, 41–44]. Aus vorhergehenden Arbeiten ist bekannt, dass durch Sputtern aufgebrachtes FeAl auf Si keine geordneten Schichten bildet [9]. Auch das Anlassen der durch Molekularstrahlepitaxie (MBE) deponierten FeAl Filme auf Halbleitern der AlAs/GaAs Familie erreicht noch keine Ausrichtung bezüglich der Substratoberfläche [10, 11]. Zwar wurde eine Pseudoepitaxie zwischen FeAl und dem Substrat entdeckt, der FeAl Film wächst dennoch granular.

Die Anforderungen an das Substrat ergeben sich automatisch aus den für die Präparation paramagnetischer FeAl Filme notwendigen hohen Temperaturen [26]. Das Substrat muss Temperschritte bis 1000°C widerstehen ohne mit Al und Fe zu legieren, weswegen Si und SiO₂ ausscheiden. Es ist bekannt, dass FeAl bei höheren Temperaturen unter Sauerstoffatmosphäre geordnete Oxidschichten an niederindizierten Oberflächen bildet [45, 46]. Insofern bietet sich Al₂O₃ als Substrat an. Allerdings werden normalerweise Substrate verwendet, deren Abmessungen der Einheitszelle an der Oberfläche in etwa der des darauf zu wachsenden, epitaktischen Films entspricht. Eine Daumenregel der Halbleiterindustrie besagt, dass Gitterunterschiede bis 10% beim Wachstum ausgeglichen werden können. Insofern kommt von Saphir nur die (11 $\overline{2}$ 0) Oberfläche ¹ für das Wachstum epitaktischer FeAl Filme in Betracht, da hier die Fehlanpassung 5,6% (110) und 3,7% (100) beträgt (vgl. Kap. 5.5). Mit seiner hexagonalen Einheitszelle sind die anderen Oberflächen von Saphir wenig geeignet für ein kontrolliertes Wachstum. Nichtsdestotrotz wird sich zeigen, dass sich auch hier eine epitaktische Beziehung zwischen Film und Substrat einstellt.

2.3 Defekterzeugung durch Ionenbestrahlung

Wie bereits in Kapitel 2.1 erwähnt, kann die Anzahl und die Art der in ein Metall eingebrachten Defekte im Vergleich zu anderen Methoden am Besten mit Ionenbestrahlung eingestellt werden. Insbesondere bei dem Materialsystem Fe₅₀Al₅₀ ist hier von Vorteil, dass der Ausgangszustand der Legierung (B2: paramagnetisch) sehr wohl definiert vorliegt und man sukzessive diesen Zustand verlässt. Der größte Vorteil dabei ist die akkumulative Defektgenerierung, d.h. das Materialsystem kann zu jedem Zeitpunkt, respektive jeder Defektkonzentration auf seine Eigenschaften untersucht werden. Aufgrund der großen Bedeutung der Ionenbestrahlung für diese Arbeit werden nachfolgend die wichtigsten Grundlagen der Ionenbestrahlung erläutert.

2.3.1 Energieverlustmechanismen

Bei dem Beschuss mit einem hochenergetischen Teilchens ($E \approx 100 \text{ keV}$) auf einen Festkörper kommt es nach einer Eindringtiefe von wenigen Mikrometern zu Stillstand. Die kinetische Energie des Teilchens wird dabei durch verschiedene Wechselwirkungen mit dem Targetmaterial absorbiert. Für den in dieser Arbeit benutzten Energiebereich (100 - 350 keV) spielen vor allem der nukleare und der elektronische Energieverlust (S_n und S_e) eine Rolle. Sie beide sind definiert über $S_e = (dE/dx)_e$ und $S_n = (dE/dx)_n$, wobei dE den Energieverlust pro Eindringtiefe dx beschreibt.

Der elektronische Energieverlust wird hervorgerufen durch inelastische Streuprozesse mit den Hüllenelektronen des Targetmaterials. Nach einem Modell in [47] werden die Hüllenelektronen als freies Elektronengas betrachtet, was zu einem zur Ionengeschwindigkeit proportionalen Bremsquerschnitt führt bzw. proportional zur Wurzel der Ionenenergie. Der nukleare Energieverlust entsteht durch Streuung an den abgeschirmten Coulombpotentialen der Atomrümpfe und ist am effektivsten bei niedrigen Energien und schweren Ionen [48].

Mit dem Simulationsprogramm SRIM lassen sich einzelne Beiträge für verschiedene Projek-

¹Leider existieren mehrere gebräuchliche Notationen zur Beschreibung der Oberflächen und Richtungen von Kristallen. Um Konfusion zu vermeiden, ist im Anhang B.1 die für die Arbeit gebrauchte Definition beschrieben.



Abbildung 2.4: Differentielle Energieverluste bei der Bestrahlung von FeAl mit verschiedenen Edelgasen erstellt mit SRIM.

tile berechnen. Der nukleare und der elektronische Energieverlust sind in Abb. 2.4 gezeigt für die Edelgasreihe bei verschiedenen Energien. Für die in der Arbeit verwendeten Ionen (300 keV Ne⁺, 350 keV Ar⁺ und 350 keV Kr⁺) treten beide Mechanismen auf, wobei insbesondere bei Kr⁺ der nukleare Energieverlust überwiegt. Diese Betrachtungen sind notwendig für eine spätere Abschätzung des Strahlenschadens verursacht durch die nuklearen Energieverluste.

Der totale differentielle Energieverlust setzt sich aus der Summe beider Mechanismen zusammen:

$$(dE/dx)_{tot} = (dE/dx)_e + (dE/dx)_n \tag{2.1}$$

Es existieren noch weitere Energieverlustmechanismen, die in diesem Energiebereich keine große Bedeutung haben und deswegen hier nicht diskutiert werden sollen.

Anhand der Energieverlustmechanismen lässt sich abschätzen, in welcher Probentiefe die Projektile stoppen.

2.3.2 Strahlenschaden

Die nukleare Energieübertrag der kinetischen Energie der Projektile kann im Material zu Veränderungen der atomaren Struktur führen. Die charakteristische Größe für die Anzahl der Defekte ist der sogenannte Strahlenschaden, welcher in Versetzungen pro Atom (engl.: Displacements per atom, dpa) bemessen wird. Eine einfache Abschätzung für den Strahlenschaden liefert das Modell von Kinchin und Pease [49], nach deren Annahme für die Verlagerung von Atomen mindestens die doppelte Bindungsenergie zum Aufbrechen der Gitterbindung notwendig ist. Die Anzahl der Versetzungen N entspricht dann $N = \frac{E}{2E_d}$, wobei E die Energie des Projektils und E_d die Gitterbindungsenergie ist.

Eine genauere Abschätzung unter Berücksichtigung der in Kapitel 2.3.1 vorgestellten Energieverluste ist durch die Arbeit von Sigmund [50] und Rivière [51] möglich. In die Berechnung der Anzahl der Versetzungen N_d geht die Teilchendichte N des Targetmaterials sowie die Ionenfluenz ϕ ein.

$$N_d = \frac{1}{N} \cdot 0,84 \cdot \frac{(dE/dx)_N}{2 \cdot E_d} \cdot \phi \tag{2.2}$$

Zwar sind die Formalismen zur Berechnung der Defekte hinreichend bekannt, einen Eindruck über das mögliche Resultat einer Bestrahlung ergibt sich aber erst aus der Berechnung vieler Einschläge des Projektils in das Targetmaterial. Simulationsprogramme wie SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) [52] liefern dabei zahlreiche Daten wie die Anzahl der Versetzungen, Sputterkoeffizienten, die Durchmischungen von verschiedenen Atomschichten usw. Die Ergebnisse für das Materialsystem FeAl werden in Kapitel 6 vorgestellt.

2.3.3 FeAl unter Ionenbestrahlung

Die Ionenbestrahlung erlaubt das sukzessive Einbringen von Defekten. Bei Fluenzen von mehr als einem dpa gehen manche Legierungen in eine amorphe Phase über [53]. Das prominenteste Argument für die Bildung einer amorphen Phase einer binären Legierung unter Ionenbestrahlung ist erfüllt, wenn diese Legierung durch Abschrecken aus der Dampfphase in den amorphen Zustand gezwungen werden kann [54, 55]. Weitere Regeln für die Ausbildung einer amorphen Phase, wie beispielsweise die Strukturdifferenzregel, können in [56] nachgelesen werden.

Entgegen den Erwartungen zeigen ionenstrahlgemischte Fe und Al Schichten keine amorphe Phase im Gegensatz zu NiAl und CoAl. [32, 57, 58]. Dies wurde gezeigt durch Elektronenbeugung an Fe und Al Vielfachschichten, die vorher mit 360 keV Xe⁺ Ionen und einer Fluenz von 10^{16} Xe⁺/cm² bei einer Temperatur von 77 K bestrahlt wurden. Anhand des



Abbildung 2.5: TEM Beugungsbilder von FeAl Vielfachschichten. Die Vielfachschichten sind ionenstrahlgemischt mit 360 keV Xe⁺ Ionen bei T = 77 K [32]; Einzig Fe₂₅Al₇₅ geht unter Ionenstrahlmischen in eine amorphe Phase über.

in Abb. 2.5 dargestellten Beugungsbildes von $Fe_{50}Al_{50}$ (i.d. Mitte) bezeichnen die Autoren den Zustand der FeAl Legierung als raumzentrierte Gitterlösung (bcc solid solution).

Nichtsdestotrotz kann die für die Amorphisierung typische Widerstandserhöhung in FeAl beobachtet werden (vgl. Abb. 2.6). Der relative Widerstand nimmt bei der Bestrahlung mit 380 keV Kryptonionen von FeAl Vielfachschichten zunächst exponentiell zu, bis eine Sättigung bei einer Fluenz von $\phi = 4 \cdot 10^{15} \,\mathrm{Kr}^+/\mathrm{cm}^2$ erreicht wird. Das Experiment wurde sowohl bei Raumtemperatur als auch bei $T = 77 \,\mathrm{K}$ durchgeführt.



Abbildung 2.6: Änderung des elektrischen Widerstandes von FeAl Vielfachschichten während des Ionenstrahlmischens bei T = 77 K [51, 57].

Die oben präsentierten Experimente lassen den Schluss zu, dass FeAl unter Ionenbestrahlung weder vollständig kristallin bleibt, noch geht es in eine amorphe Phase über, die alle Kriterien erfüllt. Die Gitterstruktur bleibt zwar erhalten, ist jedoch stark gestört [59].

Der mit der schwindenden chemischen Ordnung einhergehende Phasenübergang von paranach ferromagnetisch wurde bereits von anderen Gruppen an FeAl Volumenmaterial untersucht [60]. Unter Beschuss mit verschiedenen Ionen (He, Ne, Ar, Kr, Xe) bei vergleichsweise geringen Energien konnte die chemische Ordnung zerstört werden. Durch eine geeignete Wahl der Beschleunigungsspannung (2..45 keV) wurde der maximale Strahlenschaden 10 nm unter der Oberfläche des $Fe_{60}Al_{40}$ Materials eingebracht. Anhand der Messung der Magnetisierung über den magneto-optischen Kerr-Effekt (MOKE) wurde die Abhängigkeit der Projektilmasse zu der Erzeugung ferromagnetischen Volumens im FeAl Material untersucht. Die Ergebnisse sind in Abb. 2.7 dargestellt.

Aus Abb. 2.7 b) ist ersichtlich, dass oberhalb von 0,5 dpa die FeAl Legierung ferromagnetisch nahezu gesättigt ist, d.h. trotz weiterer Bestrahlung steigt das MOKE Signal nicht weiter. Lediglich im Fall der He⁺ Bestrahlung kann diese Sättigung nicht erreicht werden. Dies kann damit erklärt werden, dass leichte Projektile lediglich Gitterfehlstellen und die dazugehörigen Zwischengitteratome erzeugen, welche eine hohe Mobilität besitzen. Durch



Abbildung 2.7: MOKE Amplitude als Funktion der Ionenfluenz a) und als Funktion der Schädigung b) unter Verwendung von fünf verschiedenen Ionensorten [60].

Diffusion getrieben können beide Defekttypen rekombinieren, wobei die chemische Ordnung zumindest teilweise wiederhergestellt wird, was sich in der kleinen MOKE Amplitude widerspiegelt.

Im Gegensatz dazu erzeugen schwerere Ionen mehrere Kollisionskaskaden, was als lokales Aufschmelzen der Legierung betrachtet werden kann (thermal spikes) [61]. Die instantan einfrierende Schmelze hinterlässt eine dauerhaft gestörte chemische Ordnung. Damit lässt sich erklären, warum trotz nominell gleichen Schadens (dpa) nicht dieselbe Sättigungsmagnetisierung auftritt.

2.3.4 Ausheilen von Defekten

Mittels der Ionenbestrahlung kann die Anzahl der Defekte weit über das thermodynamische Gleichgewicht erhöht werden. Durch Diffusion getrieben können die eingebrachten Defekte ausheilen. Typischerweise heilen zuerst Frenkeldefekte aus, da die Zwischengitteratome meist eine geringe Aktivierungsenergie für eine Diffusion im Festkörper benötigen. Erst bei höheren Temperaturen können auch komplexere Defekte ausheilen.

Nach Ionenbestrahlung treten, im Gegensatz zur Bestrahlung mit Elektronen, sehr kom-

plexe Defektstrukturen auf, deren Aktivierungsenergien meist nicht einzeln messbar sind. Unter isothermen Bedingungen kann jedoch das Ausheilen von Defekten eines Typs mit einer Reaktionskinetik erster Ordnung beschrieben werden [62–64]:

$$-\frac{d\rho}{dt} = \rho f_0 \exp\left(\frac{E_A}{k_B T}\right) = \frac{\rho}{\tau}$$
(2.3)

 ρ ist die Konzentration der Defekte mit der Aktivierungsenergie E_A , und f_0 ist die Anlauffrequenz der Defekte. Nach Lösen der Gleichung erhält man ein exponentielles Zerfallsgesetz

$$\rho = \rho_0 e^{-\frac{t}{\tau}},\tag{2.4}$$

wobei die Zeitkonstante τ die Abnahme der Defektkonzentration mit $\tau = \frac{1}{f_0} e^{\frac{E_A}{k_B T}}$ beschreibt. Im ionenbestrahlten Festkörper überlagern sich mehrere Defekttypen, deren Ausheilung auch parallel verlaufen kann. Daher wird man das obige Arrhenius-Modell nicht ohne Implementation einer Defektverteilung anwenden können.

Eine Lösung bietet das Gesetz von Kohlrausch, William und Watt, welches ein gestrecktes exponentielles Ausheilverhalten beschreibt. Dieser Ansatz der Form

$$M(t) = M_0 + \Delta M \cdot \exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^{\beta}\right]$$
(2.5)

beschreibt eine ganze Fülle von Relaxationsphänomenen, wobei speziell bei dem Phasenübergang von amorph nach kristallin die relaxierende Messgröße im zeitlichen Verlauf beschrieben werden kann. Nichtsdestotrotz birgt die mikroskopische Interpretation dieses Exponentialgesetzes einige Schwierigkeiten[62–64]. Da die Messgröße, bei der dieses Verhalten in dieser Arbeit beobachtet wird, die Magnetisierung ist, wurde Gleichung 2.5 entsprechend modifiziert. Über den Faktor β kann auf die Verteilungsfunktion der Defekte zurück geschlossen werden, wobei $0 < \beta < 1$ gilt. Der Faktor β liegt im Bereich $0 < \beta < 1$ und erreicht 1 bei Temperaturen nahe der Kristallisationstemperatur von FeAl.

Kapitel 3

Präparationstechniken

Die übliche Präparation von FeAl Proben erfolgt durch Verschmelzen unter Schutzatmosphäre [17, 19, 28, 65]. Alternativ lassen sich Bulkproben durch Ziehen von Kristallen nach der Bridgman-Methode [66, 67] oder durch mechanisches Mahlen von hochreinem Eisen und Aluminium herstellen [59, 68, 69]. Anschließend wird das Pulver gepresst und getempert, um beide Elemente vollständig zu legieren. Das dadurch gewonnene Bulkmaterial ist meist kristallin und chemisch geordnet.

Herkömmliche Verdampfungstechniken (thermisch und mit einem Elektronenstrahl) funktionieren bei der Präparation von dünnen FeAl Schichten nicht, da sich die Legierung bei dem Kompositionsverhältnis $Fe_{50}Al_{50}$ peritektisch verhält. Anhand des in Kapitel 2.1 vorgestellten Phasendiagramms ist es ersichtlich, dass die fertige Legierung beim thermischen Verdampfen entmischt. Insofern muss der FeAl Film durch schichtweises Wachstum von Fe und Al Multilagen hergestellt werden. Diese können thermisch oder mit Ionenstrahltechnik legiert werden [43, 70]. Alternative Verfahren für die Herstellung dünner Filme sind beispielsweise das Magnetron Sputtern [42] oder die Molekularstrahlepitaxie [40].

Eine weitere Möglichkeit bietet die Präparation mittels gepulster Laserablation (PLD), da man nicht nur die Kontrolle über die Schichtdicke, sondern auch über das stöchiometrische Verhältnis hat [71]. Deswegen wird diese Methode hier angewandt. In den Kapiteln 3.1 und 3.2 wird einerseits auf den technischen Aufbau der Laserdepositionsanlage, andererseits detailliert auf die Herstellung der FeAl Filme eingegangen.

Zur Untersuchung des magnetischen Phasenübergangs von FeAl braucht man genaue Kenntnis der Defekte in der Legierung. Da der gezielte Einbau von Kristalldefekten mit den herkömmlichen Methoden (Mahlen [72], Abschrecken [73] etc.) wenig definiert erfolgt, ist ein Verfahren wünschenswert, mit dem sich inkrementell Defekte einbauen lassen. Dafür bietet sich die Ionenbestrahlung an, da mit ihr die gewünschten Defekte erzeugt werden können. Durch die geeignete Wahl der Projektile und der Beschleunigungsenergie kann sehr genau ein charakteristisches Profil der zu erwartenden Defekte und deren Position mithilfe der zur Verfügung stehenden Simulationsalgorithmen (SRIM, TriDyn) erstellt werden. Eine Beschreibung des Ionenbeschleunigers sowie die experimentelle Vorgehensweise bei der Ionenbestrahlung findet sich in Kapitel 3.3 ff.

3.1 Laserablation

Die hier verwendete Laserablationsanlage wurde in der Abteilung für Festkörperphysik entwickelt [74, 75]. Der dazugehörige ArF-Laser emittiert bei einer Wellenlänge von $\lambda =$ 193 nm mit einer maximalen Pulsenergie von E = 420 mJ. Über ein Spiegelsystem in einem mit N₂ gefluteten Kanal wird der Laserstrahl in die UHV-Kammer geleitet. Nach Fokussierung wird eine Energiedichte von 4..16 J/cm² erreicht.

In der Kammer können vier Targetmaterialien auf einem Revolver montiert werden, die sowohl eine Rotation um ihre radiale Achse als auch eine Oszillation in vertikaler Richtung ausführen. Dies gewährleistet eine gleichmäßige Ablation des Targets. Für eine detailliertere Beschreibung des prinzipiellen Aufbaus und der Funktionsweise sei auf [76] verwiesen.

Die Ablationsraten betragen bei einem Abstand von 50 mm zwischen Schichtdickenmesser und Target von 0 Å/s bis 0, 14 Å/s. In Abb. 3.1 sind die gemessenen Depositionsraten in Abhängigkeit von der Energie aufgetragen. Der Laser wurde bei der Ratenbestimmung mit einer Repetitionsrate von 10 Hz betrieben. Die Ablationsraten von Eisen und Aluminium



Abbildung 3.1: Depositionsraten von Al und Fe bei verschiedenen Energiedichten des Laserstrahls.

unterscheiden sich bei der kontinuierlichen Deposition einer Atomsorte nicht stark voneinander. Wie später gezeigt wird, ändert sich das Depositionsverhalten dramatisch, wenn abwechselnd sehr dünne Schichten beider Materialien präpariert werden.

Die Anlage wurde im Laufe dieser Arbeit so modifiziert, dass während der Filmpräparation verschiedene Materialien computergesteuert deponiert werden können. Um zu verhindern, dass bei einem Targetwechsel unkontrolliert Material ablatiert wird, sitzt im Strahlengang ein elektrisch gesteuerter Shutter. Dieser schließt bei Rotation des Targethalters und öffnet erst, wenn die Beschussposition des Zieltargets erreicht ist. Die Ansteuerung des Targetrevolvers als auch des Shutters erfolgt mittels eines LabView-Programms. Als Interface dient die AD/DA-Karte RedLab1008 der Firma Meilhaus. Synchron zu den Laserpulsen wird ein elektrisches Signal ausgegeben und vom Rechner erfasst. Somit lassen sich beliebige Schichtsysteme mit variablen Filmdicken herstellen. Die Materialdepositionsrate wird mit einem Schwingquarz vor und nach der Filmpräparation überprüft.

Für Temperprozeduren steht ein Probenhalter mit einer Heizplatte aus Bornitrid zur Verfügung. Die Temperatur des Heizers wird über einem in Keramik eingelassenen Pt1000 in Zweidrahtmesstechnik gemessen. Der Heizer wird mit der Stromquelle GWPSM der Firma Good Will Instrument Co. betrieben und der Widerstand des Pt1000 mit einem Multimeter KT195 der Firma Keithley gemessen. Es sind Temperaturen bis 1000°C möglich, wobei auch hier die Ansteuerung eine Software übernimmt. Der Datenaustausch erfolgt über den GPIB-Bus. Durch eine PID-Regelung ist es möglich, Heiz- und Abkühlraten von 0, 1..30 °C/min zu setzen. Ferner erlaubt die Software die Kombination verschiedener Abläufe, sodass während der Deposition auch geheizt werden kann.

3.2 Präparation von dünnen FeAl Schichten

Anfängliche Versuche der Filmdeposition auf Silizium scheiterten an der Silizidbildung während der Temperprozedur. Deswegen sind die Eisenaluminiumfilme auf Saphirsubstrate der Firma CrysTec aufgebracht. Standardmäßig wird das Probenformat $5 \text{ mm} \ge 10 \text{ mm} \ge 0,5 \text{ mm}$ verwendet (vgl. Anhang A), wobei eine zusätzliche Reinigung der Substrate mit Aceton und Isopropanol keine merklichen Veränderungen bezüglich des epitaktischen Wachstums erbringt.

Für den Einbau in die Laserablationskammer stehen zwei verschiedene Probenhalter zur Verfügung. Erfolgt die Präparation bei Raumtemperatur, sind die Substrate mit einem doppelseitigen, UHV-tauglichen Klebestreifen auf dem Standardprobenhalter fixiert. Proben, die *in-situ* als auch unmittelbar nach der Filmdeposition getempert werden, werden auf dem Bornitridheizer befestigt, der Temperaturen bis 1000°C unterstützt. Es können maximal zwei Proben der obigen Größe gleichzeitig behandelt werden.

Die verwendeten Depositionsmaterialien (Fe, Al, Fe₅₀Al₅₀) haben eine Reinheit von mindestens 99,99% und sind auf dem Revolver montiert. Sowohl bei der Materialdeposition als auch bei dem Tempervorgang steht die Kammer stets unter Ultrahochvakuum ($p < 1 \cdot 10^{-8}$ mbar). Um den Sauerstoff während der Temperprozesse aus dem Restgasgemisch zu binden, besteht die Möglichkeit der Aluminiumablation mit einem Shutter zwischen Target und Probe.

Die einfachste Methode bei der Herstellung von FeAl Filmen ist die Verwendung eines Legierungstargets. Allerdings hat sich herausgestellt, dass das stöchiometrische Verhältnis der Targetlegierung nicht mehr dem auf dem Film entspricht. Die endgültige Stöchiometrie bei der Herstellung eines Filmes unter ausschließlicher Verwendung des $Fe_{50}Al_{50}$ Targets liegt bei $Fe_{70}Al_{30}$. Ähnlich verhält es sich, wenn man die Depositionsraten der reinen Elemente bei der kontinuierlichen Deposition zur Berechnung der anvisierten Stöchiometrie heranzieht. Auch hier weisen die Filme stets einen Eisenüberschuss auf.

Um dieses Problem zu umgehen, wurden die Schusszahlen pro Schicht entsprechend angepasst. Ein experimentell bestimmtes Rezept zur Herstellung eines 40 nm dicken äquiatomaren FeAl Films ergibt ein Verhältnis von 100 Schuss Eisen auf 350 Schuss Aluminium bei einer Schichtwiederholung von 150 Stück. Somit wird mit jeder Schicht ein Film einer Dicke von 0, 26 nm aufgetragen.

Für die magnetische Charakterisierung im SQUID und im AC-Suszeptometer sind die Proben zu groß. Um eine definierte Bruchkante beim Teilen der Proben zu erhalten, wurden diese vor der Filmdeposition mit einem Diamanten geritzt. Es stellte sich heraus, dass ein Brechen der Proben, ähnlich wie bei Silizium, nicht möglich ist und sie in der Regel zersplittern. Eine relativ scharfe Kante erhält man, wenn man auf die Probe ein Skalpell mit flacher Klinge auf die Sollbruchstelle setzt und mit einem Hammer vorsichtig auf die Klinge schlägt. Damit die Bruchstücke nicht unkontrolliert zersplittern, wurden diese auf einem doppelseitigem Klebeband fixiert.

3.3 Ionenbestrahlung von FeAl Filmen

Die Ionenbestrahlungen sind an einem 350 kV-Ionenimplanter durchgeführt worden. In Abb. 3.2 ist der Aufbau der Anlage dargestellt. Um Überschläge des auf Hochspannung gelegten Beschleunigerkopfes zu vermeiden, befindet sich dieser in einem abgetrennten Teil des Labors, welcher über eine separate Klimaanlage und Temperaturregelung verfügt. Die Ionen werden abhängig von dem Aggregatzustand der Ausgangssubstanz (fest oder gasförmig) in der Heiß- oder Kaltkathodenquelle generiert. Der Vorteil der Kaltkathoden-



Abbildung 3.2: Aufbau des Ionenbeschleunigers der Universität Ulm; Entnommen aus [77].

quellen liegt in ihrer höheren Ionenstrahlausbeute. Dies ist ein Grund für die ausschließliche Verwendung von Edelgasen als Projektil. Die Funktionsweise und der Aufbau lassen sich aus [78, 79] entnehmen. Die in dem Plasma der Kaltkathodenquelle erzeugten Ionen werden über eine Spannung von 30 kV extrahiert und mittels eines Massenseparators nach ihrem Verhältnis von Ladung zu Masse getrennt. Nach Passieren einer Schlitzblende erreichen die Ionen beim Durchlaufen der Bescheunigungsstrecke ihre endgültige kinetische Energie, wobei maximal 320 kV angelegt werden können. Ein effizienter Betrieb ist somit zwischen 50 keV und 350 keV mit einfach geladenen Ionen möglich.

Über einen einstellbaren Magneten (Switcher) kann der Ionenstrahl nach Fokussierung durch eine Quadrupollinse in die verschiedenen Strahlrohre gelenkt werden. In den Strahlrohren befindet sich eine elektrostatische Linse zur Manipulation des Auftreffpunktes auf der Probe. Dieser Linse folgt eine Einheit zur Strahlaufweitung, mit der eine flächige Probe gleichmäßig gerastert werden kann.

3.3.1 Bestrahlungen im AC-Suszeptometer

Das in Kapitel 4.4 vorgestellte AC-Suszeptometer sitzt am Ende des ersten Strahlrohres. Da die maximale Probengröße $2 \times 5 \text{ mm}^2$ beträgt, braucht der Ionenstrahl in horizontaler Richtung nicht stark aufgeweitet werden. In vertikaler Richtung sitzt im oberen Drittel des Verbindungsrohrs zwischen Betrahlungskammer und AC-Suszeptometer ein Faraday-Becher mit einer Kreisöffnung von 4 mm.



Abbildung 3.3: Bestrahlung eines Papierstreifens mit Ar-Ionen im AC-Suszeptometer: Der geschwärzte Bereich innerhalb der gelben Markierung wurde gleichmäßig mit $\phi = 2 \cdot 10^{15}$ Ar⁺/cm² bestrahlt. Der blaue Punkt auf dem Saphirhalter markiert die Probenmitte.

Um die an der Probe ankommende Fluenz messen zu können, muss der Ionenstrahl soweit aufgeweitet werden, dass sowohl die Probe als auch der Faraday-Becher dieselbe Strahlendosis erhalten. Um zu verhindern, dass Sekundärelektronen durch Streuprozesse im Faraday-Becher freigesetzt werden und somit die Fluenz verfälschen, ist diesem eine metallische Blende mit negativem elektrischen Potential (-120 V) vorgeschaltet.

Durch einen schwenkbaren Probenhalter kann die Probe unmittelbar nach der Bestrahlung auf ihre magnetischen Eigenschaften vermessen werden. Während der Bestrahlung liegt die Probe mit der Filmseite dem Ionenstrahl unter senkrechtem Einfall zugewandt.

Die Ionenbestrahlung der Filme erfolgte mit verschiedenen Gasen der Edelgasreihe bei Strömen zwischen 1..100 nA. Die typischen Beschleunigungsenergien betrugen 300 keV bzw. 350 keV. Durch die hohe Ionenenergie ist gewährleistet, dass 99,9% der Ionen erst im Substrat zum Stillstand kommen und eine mögliche Dotierung in der FeAl-Schicht vermieden wird. Um die Deposition von Kohlenstoff auf der Probe während der Bestrahlung zu minimieren, wird erst bei einem Vakuum von $p < 1 \cdot 10^{-6}$ mbar bestrahlt.

Da die Einstellungen für die Aufweitungslinsen für die Bestrahlungen im AC-Suszeptometer nicht bekannt waren, wurden sie experimentell durch die Ionenbestrahlung eines auf den Probenhalter geklebten Papierstreifens ermittelt (vgl. Abb. 3.3). Auf die gleiche Weise sind die Lochblenden der Messingkryostatschilde justiert.

3.3.2 Bestrahlungen ohne *in-situ* Analyse

Erfolgte eine einmalige Bestrahlung ohne magnetische *in-situ* Charakterisierung, wurden die Proben in der in Abb. 3.2 angegebenen Bestrahlungskammer montiert. Für Details dieses Aufbaus sei auf [77] verwiesen. Hier steht keine Temperaturregelung zur Verfügung, sodass nur Bestrahlungen bei Raumtemperatur möglich sind. Im Gegensatz zum AC-Suszeptometer werden die Proben mit einer Klemme auf dem Halter angeschraubt oder mit doppelseitigem Klebeband aufgeklebt. Der Ionenstrahl trifft senkrecht auf die Probe und muss soweit aufgeweitet sein, dass die vier auf der davor montierten Schlitzblende angebrachten Faradaybecher gleichmäßig bestrahlt werden. Die Faradaybecher sind so verschaltet, dass sie als Vierquadrantendetektor agieren und bei einer gleichmäßigen Bestrahlung der Becher die Probe ebenfalls homogen vom Ionenstrahl erfasst wird.

Kapitel 4

Analysetechniken

Zur Charakterisierung der Proben direkt nach der Präparation sowie jeder weiteren Modifikation werden verschiedene Analysetechniken angewandt. Im Kapitel 4.1 wird die zur Strukturbestimmung gebrauchte Röntgendiffraktometrie (XRD) diskutiert. Anschließend folgt die Rutherford-Rückstreuung (RBS) für die Bestimmung der Schichtdicke und der Stöchiometrie im Abschnitt 4.2.

Die magnetischen Messungen erfolgten mikroskopisch und oberflächensensitiv mit einem Magnetkraftmikroskop (MFM) und integrativ mit einem SQUID Magnetometer der Firma Quantum Design, welches in Kapitel 4.3 erläutert wird. Für die *in-situ* Messungen während der Bestrahlung wurde ein eigens aufgebautes Tieftemperatursuszeptometer verwendet. Dies wird im Kapitel 4.4 ausführlich erklärt.

Es wird bewusst auf eine Beschreibung des für die Topographiebestimmung eingesetzten Rasterkraftmikroskop (AFM) verzichtet, da hier ein Standardgerät der Firma Weeco zum Einsatz kam und die Messmethoden hinreichend bekannt sind. Weiterhin wurde die Electron Backscatter Diffraction Technik eingesetzt zur Bestimmung der Korngößen und der Orientierung von FeAl Filmen. Hierzu sei auf die Referenzen [80–82] verwiesen.

Zur Bestimmung der Grenzschicht zwischen dem Saphirsubtrat und dem FeAl Film sind Transmissionselektronenmikroskopieabbildungen angefertigt worden. Auch hier sei auf andere Literatur verwiesen [82].

4.1 Röntgenbeugung (XRD)

Die atomare Struktur kann durch Röntgenbeugung ermittelt werden. Da zunächst allgemein die kristallographischen Eigenschaften der Filme bei Anlassen der Temperatur untersucht wird, sind diese Messungen an einem Röntgendiffraktometer des Instituts für Mikro- und Nanomaterialen der Universität Ulm durchgeführt worden. Das Gerät der Firma Philips ist ausgestattet mit einer Co-Röhre ($\lambda = 1,78897$ Å) und einem heizbaren Probenhalter. Um die Oxidation der Filme während des Anlassens zu vermeiden, kann der abgeschlossene Innenraum mit einem Schutzgas (Argon) geflutet werden. Die weiterführenden Messungen zur Bestimmung von Epitaxiebeziehungen sind am institutseigenen Röntgendiffraktometer durchführt worden. Das Instrument mit der Bezeichnung PW3710 der Firma Philips arbeitet mit einer Cu-Röhre der Wellenlängen $K_{\alpha 1} = 1,540598$ Å und $K_{\alpha 2} = 1,544426$ Å. Die K_{β} -Strahlung wird mit einem Ni-Filter unterdrückt.

Die eingebaute Eulerwiege erlaubt motorgetriebenen Betrieb in Ω -, Φ -, und Ψ -Richtung. Lediglich die z-Achse muss beim Ausrichten der Probe manuell eingestellt werden. Die Definition der Winkel kann in Anhang B.3 nachgelesen werden. Mittels der Steuerungssoftware X'Pert Data Collector können komplette Sequenzen programmiert und ausgeführt werden. Leider existiert kein adäquater, bildgebender Programmteil zum Anzeigen der für die Epitaxiebestimmung notwendigen Polfiguren [83]. Deswegen wurde in Eigenentwicklung eine Darstellungsoftware in der Programmiersprache LabView geschrieben (vgl. Abb. 4.1). Mit dieser lässt sich schon während eines Polscans das Ergebnis graphisch aufarbeiten und beurteilen. Die Messdauer der Scans in Bragg-Brentano-Geometrie ($2\Theta - \Omega - Scan$) beträgt



Abbildung 4.1: Bildschirmkopie der Auswertesoftware für Polfiguren während der Vermessung eines FeAl Films auf einem (1 $\overline{10}2$) Saphirsubstrat; 3D-Graph: Links sind die Reflexe des FeAl Films der (110) Ebenen, rechts die Reflexe der (11 $\overline{2}3$) Ebenen von Saphir aufgetragen. 2D-Graph: Darstellung der Intensität des linken Fensters über dem Winkel Φ .

bei höchster Auflösung etwa 24 Stunden. Da bei der Messung von Polfiguren eine Kugeloberfläche abgefahren werden muss bei vertretbarer Messzeit, erreicht man hier lediglich ein Auflösungsvermögen von 1°. Die Auswertung der $2\Theta - \Omega$ -Scans und der Rocking-Kurven erfolgte mit dem bei Panalytical erworbenem Programm X'Pert Highscore.

Bei bekanntem Auflösungsvermögen kann aus der Verbreiterung der Reflexe im $2\Theta - \Omega$ -Scan auf die Korngröße und der im Material bestehende Stress geschlossen werden. Der Formalismus für die Berechnung der Korngröße heißt Scherreralgorithmus [84]:

$$L = \frac{k\lambda}{B_{\text{Struktur}} \cdot \cos\Theta} \tag{4.1}$$

Dabei bezeichnet L die Korngröße, k den sog. Formfaktor, λ die Wellenlänge des Röntgenlichts und B_{Struktur} den Strukturfaktor. Der Formfaktor λ bezieht sich auf die makroskopische Kristallform [85, 86]. In Tabelle 4.1 sind für unterschiedliche Wachstumsformen die entsprechenden Formfaktoren aufgelistet. Da weder bei den FeAl Filmen, noch beim

Tabelle 4.1: Formfaktoren für verschiedene Kristalle [85]

Kristallform	Formfaktor
Kugel	$0,\!89$
Kubus	$0,\!830,\!91$
Tetraeder	0,731,03
Oktaeder	$0,\!820,\!94$

Substrat eine makroskopische Kristallform erkennbar ist, wurde hier mit dem Standardwert von $\lambda = 0, 9$ gerechnet.

Die apparative Auflösung geht in den Strukturfaktor B_{Struktur} ein. Dieser setzt sich zusammen aus

$$B_{\text{Struktur}} = B_{\text{beobachtet}} - B_{\text{standard}},\tag{4.2}$$

wobei $B_{\text{beobachtet}}$ der maximalen Breite auf halber Höhe eines gemessenen Röntgenreflexes entspricht und B_{standard} das Auflösungsvermögen der Apparatur für ein bestimmtes Blendensystem angibt. Dieses ist bestimmt worden mit einem einkristallinen Al₂O₃ Kristall in (1120) Richtung. Standardmäßig ist als Einlassblende eine Lochblende mit 1 mm Öffnungskreis eingebaut. Vor dem Detektor befindet sich eine Schlitzblende mit 0, 1 mm. Das Auflösungsvermögen beträgt damit d = 0,0034 Å bzw. $B_{\text{standard}} = 0,0395$ bei einem Winkel von $2\Theta = 37,76^{\circ}$. Um bei Polfigurmessungen einen breiteren Öffnungswinkel zu erfassen, sind hier Schlitzblenden mit 0,5 mm und 1,0 mm zum Einsatz gekommen.

4.2 Rutherford-Backscattering (RBS)

Die ablatierten Filme wurden durch Rutherford-Backscattering (RBS) auf ihre Stöchiometrie und ihre Schichtdicke am 350 keV Ionenbeschleuniger des Instituts für Festkörperphysik untersucht. Als Sonde werden zweifach geladenene Heliumionen der Energie $E_{kin} =$ 700 keV verwendet und deren Rückstreuung mit dem energiesensitiven Detektor "PD-100-13-100RM" der Firma *Canberra* gemessen. Der Ionenstrahl hat auf der Probe eine Ausdehnung von etwa 1 mm Durchmesser und er wird nicht über die Probe gerastert.

Durch eine Anpassung eines simulierten Spektrums an die gemessene Kurve mittels der Software XRUMP [87, 88] können die Schichtdicken und ihre Stöchiometrie ermittelt werden. Die Elemente können mit einer maximalen Genauigkeit von 1 at% bestimmt werden. Die hieraus gewonnenen Schichtdicken gehen später in die Berechnung der Filmvolumina und deren Magnetisierung ein. Die Genauigkeit der Schichtdicken beträgt ± 1 nm, die der Stöchiometrie ± 2 at%.

4.3 SQUID Magnetometrie

Für das Messen der Volumenmagnetisierung der FeAl Filme kamen zwei supraleitende Quanteninterferenzeinheiten (SQUID-Magnetometer) der Marke Quantum Design zum Einsatz. Während das eine einen herkömmlichen Messkopf für den DC-Modus besitzt, ist das zweite mit einem Messkopf für die Erfassung im RSO-Modus (Reciprocal sampling option) ausgestattet [89]. Dies erlaubt magnetische Momente bis etwa $1 \cdot 10^{-7}$ emu zu detektieren¹. Die relative Genauigkeit der Momente beträgt ca. 1% bis $1 \cdot 10^{-5}$ emu, unterhalb bestimmt die maximale Empfindlichkeit das Auflösungsvermogen. Die maximalen Feldstärke zur Untersuchung der Probe sind $H = \pm 50$ kOe. Die Genauigkeit, mit der sich die Feldstärke einstellen lässt, beträgt $\Delta H = \pm 1$ Oe. Allerdings ergeben sich Probleme bei der Messung kleiner Koerzitivfelder, vor allem im Bereich um das Nullfeld.

Zwar verlangt die Konvention, dass Veröffentlichungen im SI-Einheitensystem geschrieben werden, allerdings vereinfachen sich die Gleichungen stark, wenn zunächst im cgs-System gerechnet wird, und erst das Endergebnis in SI-Einheiten präsentiert wird. Eine Umrechnung der Daten findet sich in Anhang C.

Bei der Messung der Proben gehen im Allgemeinen drei magnetische Komponenten ein: Zunächst wird das diamagnetische Moment des Saphirsubstrates gemessen. Dies spielt aber nur bei großen magnetischen Feldern eine Rolle, da erst hier der Einfluss des Substrates gemessen wird. Diesem überlagert liegen die para- und ferromagnetischen Momente des FeAl Films.

4.3.1 Bestimmung vom para- und ferromagnetischen Anteil der FeAl Filme

Um auf die einzelnen Komponenten schließen zu können, muss zunächst der diamagnetische Anteil des Substrats eliminiert werden. Unter der Annahme, dass die FeAl Filme keinen messbaren Gewichtsanteil der Gesamtprobe ausmachen, kann die Magnetisierung des Substrats anhand seines Gewichts ermittelt werden (vgl. Anhang A). Mithilfe von Literatur

 $^{^{1}1 \,\}mathrm{emu} = 10^{-3} \,\mathrm{A/m^{2}}$

und Referenzmessungen konnte die Suszeptibilität von Saphir mit $\chi_{Al_2O_3} = -37, 0 \cdot 10^{-6} \frac{1}{g}$ ermittelt werden. Der Wert ist im cgs-System angegeben und bezieht sich auf ein Gramm Formelgewicht gemessen bei Raumtemperatur [90]. Somit ergibt sich für die Suszeptibilität des Substrates

$$\chi_{Probe} = \frac{\chi_{Al_2O_3} \cdot m_{Probe}}{M} \tag{4.3}$$

mit der molaren Masse M = 102 g/Mol und der Masse der Probe m_{Probe} . Da die diamagnetische Suszeptibilität des Substrats feld- und temperaturunabhängig ist, kann mit obiger Gleichung uneingeschränkt gerechnet werden. Nach Multiplikation der Suszeptibilität χ_{Probe} mit der magnetischen Feldstärke H in Oersted erhält man das diamagnetische Moment des Substrats und kann von dem bestimmten Gesamtmoment subtrahiert werden.

Jetzt liegt nur noch der para- und ferromagnetische Anteil des FeAl Films vor. Der Langevin-Paramagnetismus in FeAl gehorcht dem Curiegesetzt, welches ein 1/T-Verhalten postuliert. Bezüglich des Feldes können bei den hier angelegten Feldern die Sättigungsmagnetisierungen des paramagnetischen Anteils bei Raumtemperatur nicht erreicht werden. Das Kriterium $\frac{B}{T} \ll 1$ ist bei maximalen Feldern von H = 2,5 T und einer minimalen Temperatur von T = 80 K eingehalten. Deswegen kann die Suszeptibilität des Paramagnetismus als konstant angesehen und aus der Steigung der SQUID-Kurve bei großen Feldstärken ermittelt werden.

Oftmals wird in Veröffentlichungen die Sättigungsmagnetisierung von ferromagnetischen Materialien in μ_B pro Formeleinheit angegeben. Deswegen muss zunächst die Anzahl der Atome in dem FeAl Film bestimmt werden. Dafür benötigt man das Volumen des Films und seine Dichte. Die Dichte kann aus der bekannten Gitterstruktur (bcc) und der Größe der Zelle d_{FeAl} bestimmt werden. Das Volumen errechnet sich aus der Dicke d_{Film} (bestimmt über RBS) und der Fläche der Probe. Die Fläche der Probe kann ihrerseits aus dem vorher bestimmten Gewicht und der bekannten Dicke des Subtrats ermittelt werden:

$$A_{Probe} = \frac{m_{Probe}}{\rho_{Al_2O_3} \cdot d_{Al_2O_3}} \tag{4.4}$$

Die Sättigungsmagnetisierung pro Formeleinheit [f.u.] ergibt sich damit zu

$$M[\mu_B/\text{f.u.}] = \underbrace{\left(\frac{d_{Film} \cdot A_{Probe}}{d_{FeAl}^3}\right)}_{\text{Anzahl der Atome im Film}} \int_{-1}^{-1} \frac{m[\text{Erg/G}]}{9,274 \cdot 10^{-21} \text{Erg/Oe}}.$$
(4.5)

Hier bezeichnet m das gemessene magnetische Moment. Die Toleranzen und Fehlern zu den angegebenen Werten finden sich im Anhang A.

4.4 AC-Suszeptometer

Um die Anderungen der magnetischen Eigenschaften der FeAl-Filme direkt nach der Ionenbestrahlung messen zu können, wurde ein AC-Suszeptometer in einen bestehenden Kryostaten am ersten Strahlrohr des Ionenbeschleunigers eingebaut. Als Bestandteil dieser Arbeit wird das Suszeptometer und seine Arbeitsweise in den folgenden Kapiteln näher erläutert.

4.4.1 Grundlagen der AC-Suszeptometrie

Das AC-Suszeptometer erlaubt die Messung der Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Frequenz und der Temperatur, wobei zwischen dem Real- und Imaginärteil der AC-Suszeptibilität unterschieden werden kann [91]. Zusätzlich ist es möglich, kleine DC Felder dem Wechselfeld zu überlagern und so Hysteresekurven respektive ihre Ableitung zu vermessen. Der Vorteil der AC-Suszeptometrie gegenüber SQUID-Messungen liegt einerseits bei der schnellen Datenerfassung, andererseits können hier magnetische Wechselfelder angelegt werden.

Die Signalerfassung in einem AC-Suszeptometer geschieht ähnlich wie bei einem DC-Magnetometer über Detektionsspulen, mit dem Unterschied, dass die detektierte Feldänderung nicht durch mechanische Bewegung der Probe, sondern durch ein von außen angelegtes, veränderliches H-Feld erzeugt wird. Die Probe bleibt bei der AC-Suszeptometrie zwischen dem typischerweise verwendeten Helmholtzspulenpaar zentriert. Die Erfassung des Streufeldes der Probe geschieht mit einer Detektionsspule (engl. pick-up coil), deren Achse je nach Anordnung im rechten Winkel oder parallel zu der Achse des Helmholtzspulenpaares steht. Für die Unterdrückung von Streusignalen des Erregerfeldes sitzt längs der Detektionsspule eine Kompensationsspule. Für eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus sei auf Kapitel 4.4 in dieser Arbeit verwiesen.

Die in der Magnetometrie gemessene physikalische Größe ist die Magnetisierung M. Da sie unabhängig von der Stoffmenge der Probe ist, führt man die Normierung

$$M = \frac{m}{V} \tag{4.6}$$

ein, wobei m das magnetische Moment und V das Volumen der Probe ist. Je nach Problemstellung wird dabei zwischen der Volumen- und Massenmagnetisierung unterschieden [92, 93]. Die Suszeptibilität ist das Verhältnis der Magnetisierung zu dem angelegten Magnetfeld H.

$$\chi = \frac{M}{H} \tag{4.7}$$

Da nur Wechselfelder mit einem Suszeptometer detektiert werden können, misst man die Änderungen in der Magnetisierung.

$$\chi_{ac} = \frac{dM}{dH} \tag{4.8}$$

Jetzt wird ersichtlich, dass dies der Steigung einer Magnetisierungskurve entspricht. Um die Signalerfassung verstehen zu können, folgt die Herleitung für die Messung der Suszeptibiltät. Die in die Detektionsspule induzierte Spannung U_{ind} kann wie folgt notiert werden:

$$U_{ind} = \frac{d\phi}{dt} \tag{4.9}$$

$$= \frac{d}{dt} \left(N_S \alpha S \mu_0 M \right) = N_S \alpha S \mu_0 \frac{dM}{dt}$$
(4.10)

Dabei bezeichnet N_S die Anzahl der Windungen der Detektionsspule, S die Querschnittsfläche der Detektionsspule , α ein geometrischer Faktor und μ_0 die Permeabilitätszahl im Vakuum.

Die zeitliche Anderung der Magnetisierung ist verursacht durch die zeitliche Anderung des äußeren Feldes.

$$U_{ind} = N_S \alpha S \mu_0 \frac{dM}{dH} \cdot \frac{dH}{dt}$$
(4.11)

Unter der Annahme, dass ein harmonisches Wechselfeld von außen angelegt wird und unter Verwendung von Gleichung 4.7 lässt sich die vorherige Gleichung umformulieren.

$$U_{ind} = N_S \alpha S \mu_0 \chi_{ac} i \omega H_0 e^{i\omega t} \tag{4.12}$$

Die induzierte Spannung kann phasenverschoben bezüglich des treibenden Feldes sein. Aufgrund dessen unterschiedet man zwischen der reellen und imaginären Suszeptibilität.

$$\chi_{ac} = \chi'_{ac} + i \cdot \chi''_{ac}$$

$$\chi'_{ac} = \frac{\Re(U_{ind})}{N_S \alpha S \mu_0 \omega H_0 \cos \omega t}$$

$$(4.13)$$

$$\chi_{ac}'' = \frac{\Im(U_{ind})}{N_S \alpha S \mu_0 \omega H_0 \sin \omega t}$$
(4.14)

Der Realteil von χ spiegelt die abschirmende Eigenschaft der Probe wieder, der Imaginärteil von χ die dissoziierte Energie nach Durchlauf einer Periode. Aus Gleichung 4.12 wird ersichtlich, dass die Messgenauigkeit sowohl von der Stärke des angelegten Feldes, als auch von der seiner Frequenz abhängt. Um die Hysteresekurve mit einem überlagerten DC H-Feld messen zu können, sollte die Amplitude des AC H-Feldes kleiner sein als die Schrittweite zwischen zwei DC H-Feldern. Deswegen muss zwangsläufig bei einer DC Messkurve mit vielen Messpunkten mit einer hohen Frequenz gearbeitet werden.

Im Experiment werden die Spannungssignale U_{ind} mit einem Lock-In Verstärker aufgenommen. Durch die phasensensitive Erfassung der induzierten Spannung ergeben sich nach der Demodulation des Spannungssignals U_{ind} zwei dem Real- und Imaginärteil proportionale Messsignale U'_{Exp} und U''_{Exp} :

$$U'_{Exp.} \propto \Re(U_{ind})|_{max}$$

$$U''_{Exp.} \propto \Im(U_{ind})|_{max}$$
(4.15)

Da in der hiesigen Arbeit Hysteresekurven mit dem AC-Suszeptometer vermessen werden,

sollen die Charakteristika dieser Kurven im folgenden Abschnitt näher erläutert werden. Insbesondere der Vergleich der Daten mit den aus SQUID Magnetometrie erhaltenen Messwerten ist aufgrund der physikalisch unterschiedlichen Messgrößen nur nach Umrechnung möglich.



Abbildung 4.2: Hysteresekurve eines ferromagnetischen Materials und die dazugehörige Suszeptibilität.

Für die Interpretation einer Suszeptibilitätskurve eines ferromagnetischen Materials vergleicht man in Abb. 4.2 die Hysteresekurve und die dazugehörige Suszeptibilitätskurve. Die schwarzen Kurven entsprechen dem oberen Ast der Hysterese, die roten dem unteren. Sofern die Hysteresekurve keine Anomalien, wie Exchange Bias oder Pinning Effekte aufweist, ist sie punktsymmetrisch bezüglich des Ursprungs. Die größte Steigung ergibt sich genau beim Durchgang bei M = 0 emu. Dementsprechend spiegeln die Maxima der Suszeptibilität das Koerzitivfeld der Hysteresekurve wieder. Durch Vergleich der Hysteresekurvenmessungen aufgenommen mit SQUID Magnetometrie kann obige Forderung für FeAl Filme als erfüllt betrachtet werden. Weiterhin lässt sich durch numerische Integration der Flächen unter den Suszeptibilitätskurven ein Maß für die Sättigungsmagnetisierung M_S angeben.

$$M_S = \frac{1}{2} \int_{-H_{DC}}^{H_{DC}} K \cdot \chi dH \tag{4.16}$$

Führt man die Integration der Fläche unter der Suszeptibilitätskurve hingegen nur von $-H_{DC}..0$ Oe, ergibt sich nach Abzug von der Sättigungsmagnetisierung die Remanenz:

$$M_R = M_S - \int_{-H_{DC}}^{H=0 \text{ Oe}} K \cdot \chi dH$$
(4.17)

Die an sich dimensionslose Größe χ muss für den Vergleich unterschiedlicher Proben zueinander auf die Masse des FeAl Filmes normiert werden. Besser eignet sich allerdings eine Normierung durch eine anschließende SQUID Magnetometriemessung, da somit nicht nur die Proben untereinander normiert sind, sondern auch in absoluten Maßeinheiten wie in Kapitel 4.3.1 vorgestellt.

4.4.2 Kryostat und Probenhalter

Der doppelwandige He-Kryostat erlaubt Probentemperaturen von 6K bis 320K, wobei die Temperaturstabilität im Bereich weniger mK liegt. Der Probenhalter ist am inneren Becher des Kyrostaten hängend montiert, wobei alle tragenden Teile aus Saphir der guten Wärmeleitung wegen gefertigt sind. Da der Kryostat keinen zweigeteilten Heliumtank besitzt, muss die Temperatur am Tankboden überwacht werden, damit nicht unvorhergesehen das flüssige Helium zur Neige geht. Die Standzeit des Kryostaten beträgt etwa sechs Stunden bei 6K.

Während der Suszeptibilitätsmessung ist der Probenhalter in waagrechter Position und die Probe liegt direkt unterhalb der Pick-up Spulen. Die beiden Erregerspulen sind in Helmholtzanordung, sodass an der Probe ein homogenes Magnetfeld wirkt. Die Streufelder der Probe werden über die in achter-form gewickelten Pick-up Spulen aufgenommen, wobei die Spulen horizontal entlang der Radialachse der Helmholtzspulen verschiebbar sind zur Detektion der in-plane als auch der out-of-plane Magnetisierung (vgl Abb. 4.3). Durch die



Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau des Probenhalters und der Spulen.

Verwendung des diamagnetischen Saphirs für alle tragenden Teile des AC-Suszeptometers sind die magnetischen Störungen des Probenhalters minimiert. Da aufgrund der nicht perfekt rechtwinkligen Anordnung der Helmholtzspulen gegenüber den Pick-up Spulen das Erregersignal auch ohne Probe gemessen wird, ist eine Kompensationsspule über einer Pickspule montiert. Diese wird mit dem Erregersignal gespeist, wobei Phase und Amplitude so eingestellt sind, dass die von der Erregerspule eingefangenen Felder zu Null $(U_{mess} < 10^{-9} \,\mathrm{V})$ abgeglichen werden.

Für die Bestrahlung klappt der Probenhalter um 90° nach unten und die Probe wird dabei in den Ionenstrahl gefahren. Über die Strahlaufweitung vor Eintritt des Strahls in den Kryostaten wird gewährleistet, dass die Probe homogen über ihre Fläche bestrahlt wird. Die auf der Probe auftreffende Fluenz wird mittels eines Faraday-Bechers, der außerhalb des Kryostaten angebracht ist, detektiert.

Zur Erfassung der Temperatur ist an dem Probenhalter eine Siliziumdiode (DT 470) montiert. Um möglichst kleine Wärmekapazitäten zu bilden, ist der Heizer ebenfalls auf dem Probenhalter montiert. Dieser besteht aus drei in Reihe geschalteten 100Ω SMD-Widerständen². Die Saphirwelle, an der der Probenhalter fixiert ist, ist thermisch über zwei Silberbändchen an den Tankboden schwach angekoppelt. Diese Anordnung erlaubt eine nahezu unabhängige Variation der Temperatur von der Temperatur des Tankbodens.

4.4.3 Mess- und Steuertechnik

Die Ansteuerung aller Kompononenten im AC-Suszeptometer erfolgt durch die in einem 19"Geräteturm eingebauten Geräte. Für die Kontrolle und Regelung der Temperatur an der Probe kommt ein Temperaturkontroller LTC-10 der Firma Conductus zum Einsatz. Die Temperatur wird über zwei Si-Dioden auf dem Probenhalter und am Boden des inneren Kryostaten gemessen.

Um eine möglichst hohe Qualität des Messsignals zu erhalten, bildet der digitale Lock-In Verstärker SR850 der Firma Stanford Research das Herzstück bei der Ansteuerung der Helmholtzspulen (vgl. Abbildung 4.4). Ein im SR850 generiertes Sinussignal wird in den Spannungs-Strom-Konverter Amp(1) gespeist. Die Amplitude des Stromsignals am Ausgang des Verstärkers kann durch eine Gleichspannung (erzeugt am A/D-Ausgang des SR850) um 40 dB variiert werden. Durch die drei Verstärkungsstufen im Verstärker ist es möglich, den maximalen Strom zwischen 0..200 mA, 0..20 mA und 0..2 mA zu wählen. Aufgrund der stromgesteuerten Versorgung der Spulen hat eine ohmsche Widerstandsänderung der Helmholtzspulen keinen Einfluss auf die Feldstärke des Erregerfeldes. Die tatsächlichen Ströme durch das Helmholtzspulenpaar werden mit zwei Multimetern (Keithley DMM 199) massefrei über einen Shunt detektiert. Dabei misst das eine Multimeter den AC-Anteil des Stromes, das andere den DC-Anteil.

Um die oben erwähnte Einkopplung des Erregersignals zu unterdrücken, ist eine Kompensationsspule oberhalb einer der Pick-up Spulen montiert. Ihre Ansteuerung Amp(2) erfolgt mit einem Amp(1) identischen Verstärker, wobei zuvor allerdings die Phase korrigiert wird. Die Korrektur geschieht mit einem Phasenschieber, der ebenfalls durch eine externe DC-Spannung gesteuert wird. Da die Phasenkompensation aus technischen Gründen nur in einem Bereich von 0° bis 60° elektronisch variabel ist, kann man manuell über einen Wahl-

²Surface Mounted Device



Abbildung 4.4: Schema der Steuerung des AC-Suszeptometers.

schalter eine fest eingestellte Phase von 0° bis 180° in 60° Schritten hinzu
addieren.

Das durch Induktion gewonnene Messsignal wird zunächst durch den Vorverstärker 5113 der Firma EG&G verstärkt, bevor es in den Lock-In Verstärker geführt wird. Um Störungen in den Signalleitungen zu vermeiden, wurden hier Triaxialkabel eingesetzt und das Messsignal symmetrisch zum Vorverstärker geführt.

Der Probenhalter kann ebenfalls elektronisch gesteuert ein- und ausgefahren werden. Auch hier erfolgt die Ansteuerung des entsprechenden Verstärkers (*Motor*) über einen D/A-Wandler des Lock-In Verstärkers. Die Position des Probenhalters wird über eine Widerstandsbahn in ein elektrisches Signal umgesetzt und durch einen A/D-Wandler des SR850 digital erfasst werden.

Die Verstärker Amp(1), Amp(2), der Phasenschieber Φ und die Endstufe für den Probenhalter wurden am Institut für Festkörperphysik gefertigt und sind so speziell auf ihre Arbeitsbereiche abgestimmt. Die Ansteuerung der Multimeter, des Temperaturkontrollers und des Lock-In Verstärkers erfolgt über die universelle Schnittstelle GPIB. Das dafür benötigte Programm wurde in der Programmiersprache Labview geschrieben.

4.4.4 Die Software für das AC-Suszeptometer

Die Software muss die Möglichkeit bieten, in mehreren Modi messen zu können. Dies bezieht sich speziell auf χ -Messungen in Abhängigkeit von der Temperatur und dem magnetischen Feld. Des weiteren können die variablen Parameter wie Temperatur, AC B-Feld, DC B-Feld, Frequenz und Harmonische bei jeder Messung frei gewählt werden. Da der Programmcode sehr umfangreich ist, sollen im Folgenden nur die angewandten Konzepte erläutert werden.

Temperatur

Da die Temperatur stets unabhängig geregelt werden muss, läuft die Ansteuerung der Temperatur über ein eigenständiges Unterprogramm. Es ist möglich, auf die Temperaturregelung aus den verschiedenen Messprogrammen zuzugreifen. Bei Erreichen der Temperatur innerhalb des angegebenen Toleranzbereiches wird dem momentan ausgeführtem Messprogramm eine Rückmeldung geliefert.

$\chi(T)$ -Messungen

Für die Messung von $\chi(T)$ -Messungen wird zunächst über eine Maske die Anzahl der Temperaturschritte eingestellt, die angefahren werden sollen. Weiterhin lassen sich obige Parameter in ihren Grenzen (vgl. 4.4.5) frei wählen. Für die Referenzmessungen wird die Probe ausgeklappt und das ohne Probe eingekoppelte Feld gemessen. Es ist einstellbar, wie oft bzw. nach wie vielen Messpunkten eine Referenzmessung vorgenommen werden soll. Dies ist insbesondere dann von Nutzen, wenn die Suszeptibilität über einen großen Temperaturbereich gemessen wird, da sich die Induktivität der Spulen und somit die Phasenbeziehung zwischen Erreger- und Antwortsignal ändert.

$\chi(H)$ -Messungen

Typischerweise werden im AC-Suszeptometer $\chi(T)$ -Kurven aufgenommen. Es ist allerdings möglich, das Hystereseverhalten von ferromagnetischen Materialien in einem $\chi(H)$ -Diagramm zu messen. Hierfür wird über ein konstantes H-Feld ein mit kleiner Amplitude alternierendes Magnetfeld gelegt. Durch schrittweises Ändern des konstanten Magnetfeldes kann in jedem Punkt die Steigung der Hysteresekurve ermittelt werden.

Über eine Eingabemaske kann die Dauer und die Samplingrate für das Durchfahren eines Hystereseastes eingestellt werden, wobei hier ein besonderes Ausstattungsmerkmal des SR850 verwendet wird: Dieser verfügt über die Möglichkeit, bis zu vier Datenspuren (Traces) gleichzeitig aufzuzeichnen. Somit ist eine synchrone Messwertaufnahme aller Parameter gewährleistet. Bessere Ergebnisse werden erzielt, wenn die Hysteresekurve mehrere Male durchlaufen und durch Mittlung das Rauschen reduziert wird. Die Erfassung einer $\chi(H)$ Kurve erfolgt nach folgendem Protokoll:

- 1. Zunächst wird die richtige Temperatur gewählt und gewartet, bis sich die Temperatur in einem einstellbaren Intervall der Solltemperatur angenähert hat.
- 2. Anschließend wird das alternierende H-Feld auf die entsprechende Amplitude gefahren und das konstante H-Feld auf Null gesetzt.
- 3. Nun folgt der Abgleich des Messsignals auf Null durch Einstellen der Kompensationspule. Dabei wird die Phase, als auch die Amplitude so variiert, dass das Messsignal nur noch Rauschen aufweist ($U_{mess} < 10^{-9}$ V).

- 4. Aufgrund von Temperaturdriften in den Erregerspulen ändert sich deren Induktivität und somit die Phasenbeziehung zwischen Erreger- und Kompensationsspule. Deswegen wird nach Erreichen der maximalen Feldstärke die Probe ausgeklappt und dann das noch nicht kompensierte Erregerfeld gemessen. Anschließend wird die Probe wieder eingeklappt und weiter gemessen. Nach erfolgreicher Messung wird der eben bestimmte Untergrund von den Messdaten abgezogen.
- 5. Um eine bessere Signalqualität zu erhalten, wird die Probe mehrere Male (1..20) gemessen und dann darüber gemittelt.

Es hat sich gezeigt, dass ein erneuter Kompensationsabgleich zu langwierig ist und die Phasendriften verursacht durch die Erregerspulen so klein sind, dass keine Messgenauigkeit am Lock-In Verstärker eingebüßt wird. Aufgrund dessen hat sich die oben beschriebene Methode bewährt.

Die erfassten Daten werden einerseits in einer Textdatei, andererseits in einem binärcodierten Format abgespeichert. Zu jeder Messung wird zusätzlich eine Protokolldatei im Ascii-Format generiert, die eine Auflistung der verwendeten Einstellungen beinhaltet.

Software zur Auswertung der Daten

Da aufgrund der Menge an Daten, die während einer Messung gewonnen werden, herkömmliche Programme wie Excel oder Origin zu unhandlich sind für eine schnelle Datenauswertung, kommt hier ebenfalls ein selbstgeschriebenes LabView Programm zum Einsatz. Mittels der Protokolldatei ist es möglich, die Normierung der Rohdaten nach Frequenz und Erregeramplitude automatisch durchzuführen. Ferner bietet das Programm die Möglichkeit, einzelne Ausreißer zu erkennen und zu eliminieren, bevor die Mittelung vollzogen wird. Die verarbeiteten Daten werden ihrerseits im Ascii-Format abgespeichert mit einer begleitenden Protokolldatei zum Nachvollziehen aller Bearbeitungsschritte. Für die endgültige Auswertung der Daten besteht die Möglichkeit sie über eine Maske in das Computerprogramm Origin zu laden.

4.4.5 Arbeitsbereich des AC-Suszeptometers

Der He-Kryostat erlaubt einen Betrieb im Temperaturbereich von 6..320 K. Eine Kalibrierung des Magnetfeldes der Helmholtzspulen erfolgte mit dem digitalen Teslameter FM210 der Firma Projekt Elektronik GmbH. Dafür wurde ein konstanter Strom an die Spulen angelegt und die Hallspannung des Sensors aufgezeichnet (vgl. Abb. 4.5 links). Der limitierende Faktor für die Erzeugung der Magnetfelder ist der Ohmsche Widerstand der Erregerspulen und ihre Selbstinduktivität. Da der Innenwiderstand der Spulen bei Raumtemperatur etwa 50 Ω beträgt, erwärmt sich der innere Aufbau bei Spulenströmen mit mehr als 50 mA sehr schnell. Damit geht einher eine apparaturbedingte Phasenverschiebung, die eine stabile Messung nicht zulässt. Bei tiefen Temperaturen (< 100 K) sinkt der Spulenwiderstand auf etwa 25 Ω , weswegen hier größere Magnetfelder bei gleichzeitig stabiler Messung angelegt werden können.



Abbildung 4.5: Links: Eichung des Magnetfeldes des Helmholtzspulenpaares nach dem Erregerstrom. Rechts: Testmessung des Übergangs Supra- nach Normalleitung an Niob.

Eine Testmessung zur Bestimmung der Temperaturgenauigkeit und der Funktionstüchtigkeit des AC-Suszeptometers ist in Abb. 4.5 rechts gezeigt. Hier wurde ein Stück massives Niob auf seinen Phasenübergang von supra- nach normalleitend untersucht. Bei der Messung lag ein AC H-Feld von 0, 1 Oe bei einer Frequenz von 530 Hz an.

Der Arbeitsbereich des AC-Suszeptometers ist in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Die Empfindlichkeit des AC-Suszeptometers kann nicht direkt angegeben werden, da sie einerseits von der Probengeometrie, andererseits von der Probenpositionierung auf dem Halter abhängt. Durch Vergleichsmessungen von derselben Probe im AC-Suszeptometer und mit SQUID Magnetometrie lässt sich das Auflösungsvermögen abschätzen. Für dünne Filme, gemessen in in-plane Orientierung ergibt sich ein Wert von $\mu \geq 5 \cdot 10^{-5}$ emu. Ein großer Vorteil gegenüber der SQUID Magnetometrie ist die vergleichsweise kurze Messdauer von 120 Minuten. In dieser Zeit werden 20 einzelne Messungen mit jeweils 800 Datenpunkten erfasst, über die mit der Nachbearbeitung gemittelt wird.

Parameter	Bereich	bei
Temperatur	$6320\mathrm{K}$	—
Frequenz	$50\mathrm{Hz10kHz}$	_
AC H-Feld	$0,00150{ m Oe}$	$f = 50 \mathrm{Hz1 kHz}$
	$0,0015\mathrm{Oe}$	$f = 50 \mathrm{Hz10 kHz}$
DC H-Feld	$-8080{ m Oe}$	$T > 100 \mathrm{K}$
	$-120120{ m Oe}$	$T < 100 \mathrm{K}$
Harmonische	010	_

Tabelle 4.2: Arbeitsbereich des AC-Suszeptometers
Kapitel 5

Untersuchung paramagnetischer FeAl Filme auf Al_2O_3

In Kapitel 5.1 werden die FeAl-Filme mittels AFM auf ihre Topographie hin untersucht. Dabei ergeben sich Unterschiede in der Oberflächenstruktur in Abhängigkeit von der Filmpräparation bezüglich des Temperschrittes.

Anschließend wird erläutert in Kapitel 5.2, was die Charakterisierung der FeAl-Filme mittels Röntgendiffraktometrie bezüglich ihrer strukturellen Eigenschaften ergibt. Da die ersten Resultate auf (0001) geschnittenen Saphir erzielt wurden, widmen sich die Kapitel 5.3 und 5.4 der Epitaxie und der chemischen Ordnung der FeAl auf dieser Saphiroberfläche. Im darauffolgenden Kapitel 5.5 werden die Ergebnisse der FeAl-Filme auf verschiedenen Schnittrichtungen des Saphirsubstrates präsentiert.

Zuletzt werden in Kapitel 5.7 die FeAl Filme auf ihre magnetischen Eigenschaften untersucht in Abhängigkeit von der Temperatur und der Substratorientierung.

5.1 Topographie der FeAl Filme

Bei der Präparation von Metallschichten auf einem kristallinen Substrat ist von anderen Materialsystemen bekannt, dass die Substrattemperatur sich auf die Art des Wachstums des darüber präparierten Metallfilms auswirkt [94]. Ähnlich verhält es sich bei dem Materialsystem FeAl auf Al_2O_3 . Ein Indiz für unterschiedliche Wachstumsmodi ist die Oberflächentopographie, die durch Rasterkraftmikroskopie (AFM) bestimmt woden ist.

Für die topographische Untersuchung wurden zwei FeAl Filme auf (000 1) Saphir präpariert. Während der erste bei Raumtemperatur deponiert wurde, war bei der zweiten Probe das Substrat während der Deposition auf 600°C geheizt. Der Vergleich beider Oberflächen lässt sich anhand Abb. 5.1 ziehen. In Bild a) ist der bei Raumtemperatur hergestellte Film dargestellt, in Bild b) ist der bei 600°C Substrattemperatur deponierte Film gezeigt. In Abbildung a) weist die Oberfläche des FeAl Films nur eine Rauigkeit identisch der des Al₂O₃ Substrats auf. Die Standardabweichung beträgt 0, 24 nm. Im Gegensatz dazu wächst FeAl

kolumnar bei geheiztem Substrat ab einer Temperatur von 500°C. Man beachte hier die unterschiedliche Skalierung der Farbkodierung für die z-Achse. Die Höhe der Säulen liegt in der Größenordnung der Filmdicke, wobei die Größe der Körner im Bereich von 50 bis 200 nm liegt. Der Film aus Abb. 5.1 b) ist jedoch elektrisch leitend, sodass der Film zumindest eine perkolierte Fläche bildet. Anhand der Literatur kann das Filmwachstum bei Umgebungstemperatur mit dem Frank-van-der-Merwe-Wachstum [35] beschrieben werden, bei erhöhten Temperaturen ist es vergleichbar mit dem Stranski-Krastanov-Wachstum [36] aufgrund des geringen elektrischen Widerstandes trotz Säulenwachstums.



Abbildung 5.1: AFM-Aufnahme von FeAl-Filmen auf $(000\ 1)$ Saphir a) bei Raumtemperatur deponiert b) Deposition von FeAl bei geheiztem Substrat $(600^{\circ}C)$ c) *ex-situ* Tempern des in a) gezeigten FeAl-Films.

Im Kapitel 5.2 wird diskutiert, dass sich mit Anlassen der Probe die kristalline Struktur des FeAl Films ändert. Für viele Applikationen ist es wünschenswert eine glatte Oberfläche zu erhalten. Dies kann erreicht werden, wenn die Probe erst nach der Deposition bei Umgebungstemperatur des FeAl Films getempert wird. Die Oberflächenrauigkeit erhöht sich beim *ex-situ* Anlassen für eine Stunde bei 600°C lediglich um einen Faktor drei im Vergleich zur Rauigkeit der ursprünglichen Probenoberfläche. Eine topographische Aufnahme der ex-situ getemperten Probe ist in Abb. 5.1 c) dargestellt. Die Rauigkeit steigt zwar auf 0,69 nm, es findet sich aber kein Säulenwachstum wie in Abb. 5.1 b).

Das kolumnare Wachstum des FeAl ist dabei nicht auf den (0001) geschnittenen Saphir beschränkt. Es tritt auch bei $(11\overline{2}0)$ und $(1\overline{1}02)$ geschnittenem Saphir auf, wobei die Orientierung und die Größe der Körner variieren. Details werden in Kapitel 5.5 diskutiert.

5.2 Röntgenstrukturanalyse der FeAl Filme

Entgegen vielen anderen Metalllegierungen erscheint FeAl nach Präparation mit Laserablation als dünner Film auf Al_2O_3 mit amorpher oder zumindest nanokristalliner Struktur. In Abb. 5.2 ist ein Röntgendiffraktogramm von einem 100 nm dicken FeAl Film auf Saphir



Abbildung 5.2: 2 Θ - Θ -Diffraktogramm eines bei Raumtemperatur deponierten FeAl-Films auf (0001) Saphir mit schrittweisem Tempern für eine Stunde bei der angegebenen Temperatur unter Benutzung von Co-K_{α} Strahlung.

 $(000\ 1)$ gezeigt, aufgenommen mit dem Röntgengerät des Instituts für Mikro- und Nanomaterialien der Universität Ulm. Die Stöchiometrie des Films beträgt Fe₅₅Al₄₅. Das schwarze Diffraktogramm in Abb. 5.2 gibt die Struktur der Probe direkt nach der Filmdeposition bei Umgebungstemperatur wieder, wobei die Auftragung der Intensität in logarithmischer Darstellung erfolgt. Die vorhandenen Reflexe können dabei wie beschriftet dem Saphirsubstrat (0006) und dem Probenhalter zugeordnet werden. Da man zunächst von einem polykristallinem Film ausgeht, wird mindestens der intensitätsreichste Reflex von FeAl (110) bei einem Winkel von $2\Theta = 51,795^{\circ}$ erwartet. Dieser kann allerdings nicht an der angegeben Position detektiert werden, was den Rückschluss auf einen nanokristallinen oder sogar amorphen FeAl Film zulässt.

Für die temperaturabhängige Untersuchung wird die Probe unter einer Ar-Schutzgasatmosphäre auf 300°C, 400°C, 500°C und 600°C angelassen und dort eine Stunde gehalten. Anschließend sind die Diffraktogramme in Abb. 5.2 bei einer Probentemperatur von 200°C gemessen worden um die gesamte Messzeit zu minimieren. Man erkennt mit steigender Anlasstemperatur die Ausbildung eines Reflexes im Bereich $51^{\circ} \leq 2\Theta \leq 52^{\circ}$, wobei das Maximum des Reflexes mit steigender Temperatur zu größeren Winkeln schiebt (siehe violette Linie in Abb. 5.2). Dies ist gleichbedeutend mit einer Verkleinerung der FeAl Gitterkonstanten *a* von anfänglich 2,9147 Å nach 2,9065 Å. Der Literaturwert für FeAl Bulkmaterial¹ liegt bei 2,8954 Å [95]. Die Defekte in dem zunächst stark gestörten, nanokristallinen Film heilen aus unter Formierung eines polykristallinen FeAl Films, dessen Körner mit steigender Temperatur wachsen. Mithilfe des Scherrer-Algorithmus [84] lässt sich bei bekannter Röntgenoptik die Größe der Kristallite des FeAl-Filmes berechnen. Zusammengefasst sind die Ergebnisse in Tabelle 5.1 dargestellt. Die Reflexe des Substrats variieren dabei wie erwartet weder in der Intensität noch im Winkel. Anhand des vorherigen Abschnitts ist bestätigt, dass sich in dem amorphen FeAl Film

Tabelle 5.1: Reflexe aus Abb. 5.2 gemessen mit Co- K_{α} Strahlung. In den letzten zwei Zeilen sind die Literaturwerte für die Reflexe und die Gitterkonstanten angegebenen.

2Θ	Zuordnung	Gitterkonstante	FWHM	Größe der
		[Å]		Kristallite [Å]
48,48°	$\operatorname{CoK}_{\alpha 1} \operatorname{Al}_2 \operatorname{O}_3 (0006)$	2,17917	$0,048^{\circ}$	∞
$48,59^{\circ}$	$\operatorname{CoK}_{\alpha 2} \operatorname{Al}_2 \operatorname{O}_3 (0006)$	2,17425	$0,048^{\circ}$	∞
51,44° @ 300°C	FeAl (110)	2,061(05)	$0,\!65(3)^{\circ}$	169
$51,46^{\circ} @ 400^{\circ}C$	FeAl (110)	2,060(45)	$0,49(0)^{\circ}$	209
$51,59^{\circ}$ @ $500^{\circ}C$	FeAl (110)	2,055(61)	$0,10(5)^{\circ}$	976
51,60° @ 600°C	FeAl (110)	2,055(24)	$0,16(3)^{\circ}$	629
51,795° @ 25°C	FeAl (110)	2,04735 [95]	_	_
$48,807^{\circ}$ @ $25^{\circ}C$	$\operatorname{CoK}_{\alpha 1} \operatorname{Al}_2\operatorname{O}_3 (0006)$	2,16533 [96]	—	_

nach Anlassen auf 600°C Kristallite mit einer Korngröße von über 60 nm ausbilden. Dies wird bestätigt durch eine Aufnahme des FeAl Films mittels Transmissionselektronenmikroskopie. In Abb. 5.3 ist eine Querschnittsaufnahme des FeAl Films auf (0001) Saphir gezeigt. Der Helligkeitsunterschied in der FeAl Schicht, der in diesem Fall durch verkippen der Probe gewonnen wird und Rückschlüsse auf die Verkippung der Kristallite zulässt, zeigt Korngrößen von bis zu 100 nm Ausdehnung. Die hier bestimmten Korngößen sind in guter Übereinstimmung mit den in Tabelle 5.1 angegebenen Werten.

Die Orientierung der Körner bezüglich der Substratoberfläche erhält man über ein großwinkliges 2 Θ - Θ -Diffraktogramm. Dafür wurden zwei Proben gleichzeitig bei Raumtemperatur präpariert. Während eine von beiden unter Vakuum ($p < 1 \cdot 10^{-8}$ mbar) auf 600°C geheizt wurde, ist die andere direkt nach der Präparation mittels Röntgendiffraktometrie im Institut für Festkörperphysik untersucht worden (siehe Abb. 5.4). Aufgrund der Cu-Röhre liegen hier die erwarteten Reflexe von Saphir und FeAl bei kleineren Winkeln im Vergleich zu den vorherigen Messungen mit einer Co-Röhre.

Klar erkennbar sind in beiden Diffraktogrammen die Reflexe des (0001) Saphirsubstrates

¹120 Stunden bei 800°C, Abkühlen auf Raumtemperatur innerhalb von 96 Stunden



Abbildung 5.3: FeAl Körner auf (0001) Saphir nach Anlassen der Probe auf 450°C für 1 Stunde.



Abbildung 5.4: 2Θ - Ω -Diffraktogramm eines bei Raumtemperatur deponierten und eines anschließend bei 600°C getemperten FeAl-Films auf (0001) Saphir.

in erster und zweiter Beugungsordnung bei den Winkeln $2\Theta = 41,683^{\circ}$ und $2\Theta = 90,705^{\circ}$. Wie in den Experimenten, durchgeführt im Institut für Mikro- und Nanomaterialien, erscheinen bei der ungetemperten Probe keine Reflexe des FeAl Films. Nach Anlassen des Films sind zwei weitere Reflexe sichtbar, die der (110) Orientierung des FeAl Films in erster und zweiter Beugungsordnung zugeordnet werden können. Die Winkel betragen $2\Theta = 44,225^{\circ}$ für (110) und $2\Theta = 97,702^{\circ}$ für (220). Entgegen der Erwartung eines polykristallinen FeAl-Films sind keine weiteren Reflexe im Diffraktogramm vorhanden, obwohl die Intensität ausreichend wäre (vgl. Anhang B.2). Dies lässt darauf schließen, dass eine Textur bezüglich der Relation Al_2O_3 (0001) || AlFe (110) vorliegt. Diese soll im folgenden Kapitel genauer erfasst werden.

5.3 Epitaxie von FeAl auf (0001) Saphir

Für die Bestimmung einer möglichen epitaktischen Beziehung zwischen FeAl Film und Saphirsubstrat muss zunächst die Orientierung des Substrats bezüglich der Röntgenapparatur ermittelt werden. Anschließend wird die Orientierung des FeAl-Filmes mit der erhaltenen Substratorientierung in Beziehung gesetzt. Anhand der beiden Polfiguren kann man auf die Orientierung zwischen Film und Substrat schließen.

Weiterhin wird die Grenzfläche des FeAl Films durch Transmissionselektronenmikroskopiemessungen untersucht. Dies gibt einerseits Aufschluss auf Verspannungen, andererseits zeigen Beugungsbilder die Orientierung eines FeAl Korns gegenüber dem Substrat. Durch Elektronenrückstreuverfahren (engl.: Electron Backscatter Diffraction; EBSD) in einem Rasterelektronenmikroskop lässt sich die Verteilung der Kornorientierungen bestimmen.

Bei (000 1)-geschnittenem Saphir kann die Orientierung am einfachsten mit Hilfe des (11 $\overline{2}$ 3) Reflex ermitteln werden, der um $\Psi = 61, 2^{\circ}$ gedreht aus der Probennormalen erscheint. Aufgrund der nicht bekannten Orientierung muss dafür die Probe um den Winkel Φ um 360° gedreht werden. Da trotz sorgfältigen Einbaus der Probe diese auf dem Probenhalter leicht gekippt sein kann, wird Ψ nicht starr eingestellt, sondern bei jedem angefahrenen Winkel Φ leicht um den zu erwartenden Reflexwinkel variiert. Selbige Prozedur wird zur Vermessung des FeAl Films benötigt. Hierbei lässt sich die Beziehung am besten mit dem (110)-Reflex der um $\Psi = 60^{\circ}$ gekippten Probe gegenüber der Probennormalen ermitteln. Die für das Substrat erhaltenen Reflexe sollten somit bei leicht größeren Ψ -Winkeln auftreten.

Die erhaltenen Reflexe der Polfigurmessung sind in Abb. 5.5 a) dargestellt. Die sechszählige Symmetrie der Reflexe in der Polfigur steht in Einklang mit der sechszähligen Symmetrie entlang der (0001)-Achse von Saphir, wobei die radiale Aufweitung der Reflexe auf die verwendete Schlitzblende vor dem Detektor zurückzuführen ist.

Anhand von Tabellen des Programms PCpdfWIN [95, 97] und dem Simulationsprogramm CARINE [98] lassen sich die Reflexe entsprechend zuordnen. Sechs der 18 erhaltenen Reflexe können dem Substrat zugewiesen werden und sind mit der entsprechenden Richtung markiert. Aufgrund der hexagonalen Struktur von Saphir werden die vier Millerschen Indizes (hjkl) verwendet. Durch Projektion der (11 $\overline{2}$ 3) Reflexe in die Ebene, erhält man die Orientierung des Substrates in der Ebene, wobei die (1 $\overline{2}$ 10)-Achse horizontal ($\Phi = 90^{\circ}$) und die (10 $\overline{1}$ 0)-Achse vertikal ($\Phi = 0^{\circ}$) ausgerichtet ist. Um die verbleibenden zwölf Reflexe zu verstehen, wurde zunächst eine Simulation zur Berechnung der erwarteten Winkel der Reflexe der (110)-Gitterebenen des FeAl-Films durchgeführt (siehe Abb. 5.5 b). Der besseren Übersicht wegen sind die (110) Reflexe in der Simulation mit roten Linien verbunden. In der Simulation sind die Winkel der markierten Reflexe in Ψ und Φ identisch zu denjenigen



Abbildung 5.5: a) Polfigur eines getemperten FeAl-Film auf (0001) Saphir. In blau ist die Orientierung des Substrats angegeben, in schwarz die des FeAl Films; b) Simulation der Reflexe von FeAl orientiert in (110) bezüglich der Probennormalen.

in Abb. 5.5 a), die ebenfalls mit einer roten Linie verbunden sind. Nun wird augenscheinlich klar, dass es mehrere mögliche Orientierungen der bcc-Zelle des FeAl-Films auf der (000 1) Saphiroberfläche gibt, da sich aus Symmetriegründen bei Drehung des Substrats um 60° um die Normale eine äquivalente Oberfläche ergibt. Die weiteren Reflexe in $\langle 110 \rangle$ Richtung aufgrund der Symmetrie sind in Abb. 5.5 a) mit einem grünen und einem orangen Rechteck markiert.

Die epitaktische Beziehung zwischen FeAl und (0001) Saphir ist insofern erstaunlich, als dass sie sich während der Deposition bei geheiztem Substrat als auch nach der Deposition mit anschließendem Tempern der Probe ausbildet. Der einzige Unterschied bei beiden Methoden liegt in der Rauigkeit der Oberfläche des FeAl Films (vgl Kapitel. 5.1). Zur Untersuchung der Grenzschicht zwischen Al₂O₃ und FeAl einer postgetemperten Probe wurden in der Abteilung "Materialwissenschaftliche Elektronenmikroskopie der Universität Ulm" Querschnitte mit Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) untersucht. Der FeAl Film wurde bei Raumtemperatur deponiert und anschließend für eine Stunde auf 450°C angelassen. Die durch RBS ermittelte Stöchiometrie des Films auf dem (0001) geschnittenen Saphir beträgt Fe₅₇Al₄₃. In Abb. 5.6 ist ein hochaufgelöstes TEM Bild (HRTEM) der Grenzschicht eines epitaktischen FeAl Films auf (0001) Saphir dargestellt. Man erkennt klar die Atomlagen des Saphirs und des FeAl Films. Die Grenzfläche weist keinerlei Defekte auf und der Film ordnet sich perfekt bezüglich der Oberflächennormalen in der Orientierung $[110]_{\text{FeAl}} || [0001]_{\text{Al}_2O_3}$ auf dem Substrat an. Innerhalb eines FeAl Korns liegt eine perfekte Epitaxie vor. Aufgrund der dreifachen Anordnungsmöglichkeit der FeAl Körner auf dem (0001) Saphir ist der Film nicht einkristallin, sondern weist Körner mit einer Größe von bis zu 100 nm auf. Die Epitaxiebeziehung kann nun wie in Tabelle 5.2 notiert werden. Es sind zwar nur zwei Ebenen zur vollständigen Beschreibung der epitaktischen Beziehung notwendig, dennoch lässt sich hier aufgrund der orthogonalen Kristallachsen der



Abbildung 5.6: HRTEM Aufnahme der Grenzschicht eines epitaktischen $Fe_{57}Al_{43}$ Films auf (0001) Saphir nach Anlassen bei 450°C für eine Stunde.



Abbildung 5.7: HRTEM Beugungsbild eines größeren Bereiches eines epitaktischen FeAl Films auf (0001) Saphir: Die FeAl Kristalle sind um 0° und $\pm 1, 4^{\circ}$ gegenüber der Probennormalen auf dem Substrat verkippt.

Vollständigkeit halber ein rechtwinkliges Dreibein angeben.

Die Epitaxie kann anhand von TEM Beugungsbilder überprüft werden. In Abb. 5.7 ist

3 Orientierungsmöglichkeiten

FeAl auf (0001) Saphir	
Probennormale:	$Al_2O_3 (0001) \parallel FeAl (110)$
Probenebene 1:	$Al_2O_3 (10\bar{1}0) \ FeAl (1\bar{1}\bar{2}) \ $
Probenebene 2:	$Al_2O_3 (1\bar{2}10) \parallel FeAl (1\bar{1}1)$

Tabelle 5.2: Epitaxiebeziehung von FeAl (110) auf (0001) Saphir

das Beugungsbild zu einem größeren Bereich des epitaktische FeAl Films und dem (0001) geschnittenen Saphirsubstrat dargestellt. Die Richtungen sind entsprechend farblich gekennzeichnet, wobei die Substratoberfläche in der vertikalen Ebene liegt. Der einfallende Elektronenstrahl steht senkrecht auf der (11 $\overline{2}$ 0) Ebene des Saphirs, respektive senkrecht auf der (111) Ebene des FeAl Kristalls. Dies steht nicht im Widerspruch zu Abbildung 5.5, da diese Richtungen äquivalent sind. Zwar ist der Winkel in FeAl zwischen der [100] und der [111] Richtung nominell 35,26° und nicht 30°, was aber durch eine Verzerrung der Einheitszelle in (0001) Richtung beim Wachstum kompensiert wird. Dies ist ersichtlich anhand des Sechsecks in Abb. 5.7, welches hier mit gleichen Kantenlängen eingezeichnet ist. Das FeAl Gitter passt sich in [110] Richtung dem Al₂O₃ Gitter in [10 $\overline{1}$ 0] Richtung an. Zusätzlich erkennt man parallel zur [0001] Richtung des Saphirs drei [110] Reflexe des FeAl Films, markiert durch jeweils ein cyanfarbenes Oval. Diese lassen auf eine Verkippung der FeAl Kristalle um 0° und ± 1 , 4° bezüglich der Probennormalen schließen. Die Diskrepanz zwischen der Epitaxie bestimmt über die Polfigur und der Epitaxie bestimmt durch TEM Beugungsbilder kann an dieser Stelle noch nicht ausreichend gedeutet werden.

Um das Wachstum innerhalb eines Korns zu bestimmen, können durch zweifache Fouriertransformation und der gezielten Filterung der Frequenzen parallel und senkrecht zur Substratoberfläche die Atomebenen senkrecht und parallel zur Oberfläche dargestellt werden. Dafür wird in Abb. 5.8 a) ein Bereich ausgewählt, der sowohl FeAl Film als auch Substrat beinhaltet. Nach der Fouriertransformation, zu sehen in Abb. 5.8 b), werden die ersten Beugungsreflexe horizontal und vertikal durch Filtern extrahiert und durch eine inverse Fouriertransformation in der Bilddarstellung wiedergegeben. In Abb. 5.8 c) und d) sind die Gitterebenen aufgetragen. Die horizontalen Ebenen des FeAl Films verlaufen parallel zu den Ebenen des Substrats, d.h. die Gitterebenen des FeAl Films sind nahezu defektfrei parallel zur Saphiroberfläche ausgerichtet. Das Wachstum senkrecht zur Oberfläche weist schon nach wenigen Atomlagen Verdrehungen und zusätzliche Gitterebenen auf, was auf die Fehlanpassung der hexagonalen Saphiroberfläche gegenüber der rechteckigen Struktur der FeAl (110) Fläche zurückzuführen ist. Dies erklärt die Unstimmigkeiten zwischen der Orientierung von FeAl zu Substrat in den hoch aufgelösten TEM Bildern und den Röntgenmessungen.

Ein weiteres Verfahren zur Bestimmung der Kristallitgrößen und der Verkippung der Körner stellt das sogenannte Elektronenrückstreuverfahren (engl.: Electron Backscatter Diffraction; EBSD) dar. Durch die EBSD-Vermessung ist es zusätzlich möglich, die Orientierung der Körner bezüglich des Substrats und zu ihren Nachbarn zu bestimmen [99].



Abbildung 5.8: Ebenenanalyse von FeAl auf (0001) Saphir: a) Bildauswahl für die Fouriertransformation; b) Beugungsbild mit den gefilterten Reflexen; c) inverse FT der horizontalen Ebenen; d) inverse FT der vertikalen Ebenen.

Anhand Abb. 5.6 und Abb. 5.7 hat man gesehen, dass die Körner in der (110)-Richtung wachsen, aber leicht verkippt sind. Dies kann durch Abb. 5.9 bestätigt werden, in der farbkodiert die Orientierungen der Kristallite bezüglich der Filmnormalen aufgetragen sind. Entsprechend dem Farbdreieck können die Richtungen [100], [111] und [110] den Farben rot, blau und grün zugeordnet werden. In den grünen Bereichen liegt die (110) Ebene des FeAl Films parallel zur (0001) Ebene des Substrats. Die schwarzen Flächen sind Bereiche, in denen eine Kikuchi-Analyse nicht möglich war. Mittels des am linken Rand angegeben Maßstabes lässt sich eine gute Übereinstimmung der Korngrößen mit den nach der Scherrerformel berechneten Werten und der TEM Abbildung in Schaubild 5.3 feststellen. Bei der statistischen Analyse der Winkel zwischen den Körnern findet man, dass über 60% der FeAl-Körner mit ihrer (110) Achse senkrecht zur Subtratoberfläche orientiert sind und somit der Winkel zwischen ihnen 0° beträgt. Ein kleiner Teil von 8% weist eine Verkippung von unter 2° auf, was in Einklang mit dem Beugungbild 5.7 steht. Zu einem kleinen Teil von jeweils unter 2% treten Verkippungen der Körner bei Winkeln, die mit den Atomebenen niedriger Millerindizes übereinstimmen, auf. Das bedeutet, dass die Körner untereinander



Abbildung 5.9: Ortsaufgelöste EBSD-Messung eines getemperten FeAl Films auf (0001) Saphir; oben links: Farbdreieck für die Kodierung der Raumrichtungen; oben rechts: Rekonstruktion der Kristallorientierung des aufgenommenen Filmbereiches bezüglich der Probennormalen; unten: Häufigkeit der Winkel zwischen den Kristalliten.

nicht beliebig verdreht sind, sondern sich bevorzugt in 30° (\angle [211][100]), 45° (\angle [110][100]) und 60° (\angle [011][110]) anordnen.

Anhand der gewonnen Daten lässt sich nun eine Rekonstruktion der Grenzschicht von FeAl auf (0001) geschnittenem Saphir erstellen. Diese ist in Abb. 5.10 gezeigt. Die relative Lage der Saphiratome ist farbkodiert eingetragen, wobei die schwarzen Kreise mit stärkerem Rand den Sauerstoffatomen an der Oberfläche entsprechen. Darüber gelegt ist die Gitterstruktur von FeAl mit gelben Kreisen gekennzeichnet. Die schwarzen Striche zwischen den Al Atomen des FeAl Gitters geben den Schnitt entlang der (110) Ebenen wieder. Anhand der eingezeichneten Richtungen lässt sich die Orientierung des FeAl Gitters auf dem Saphir entsprechend vorher angegebenen epitaktische Beziehungen nachvollziehen. Es ist davon auszugehen, dass Saphir mit einer Sauerstoffschicht den Kristall abschließt. Dies ist in Abb. 5.10 durch die dicken schwarzen Ringe dargestellt, die sich direkt an der Saphiroberfläche befinden. Alle anderen Atome des Saphirs sitzen unterhalb der Kristalloberfläche, wobei der Abstand zur obersten Atomschicht in der Farbe der Ringe entsprechend der Skala in Ångstrom kodiert ist.

Entsprechend den TEM Aufnahmen gilt die epitaktische Relation $[1\bar{1}\bar{2}]_{\text{FeAl}} \parallel [10\bar{1}0]_{\text{Al}_2O_3}$ und $[1\bar{1}1]_{\text{FeAl}} \parallel [1\bar{2}10]_{\text{Al}_2O_3}$. Weiterhin ist ersichtlich, dass eine Drehung des FeAl Gitters



Abbildung 5.10: Rekonstruktion der Grenzfläche zwischen FeAl und (0001) Saphir. Die atomaren Lagen der Saphiratome sind farbkodiert bezüglich der Saphiroberfläche (bei 0 nm) angegeben. Das FeAl Gitter liegt mit Schnitt entlang der (110) Ebenen und ist mit gelben Atomen gekennzeichnet.

in der Ebene um wenige Grad im Uhrzeigersinn auf die mittels Röntgen bestimmte epitaktische Relation führt. Dort gilt die Beziehung $[00\bar{1}]_{FeA1} \parallel [11\bar{2}\,0]_{Al_2O_3}$ bzw. $[1\bar{1}0]_{FeA1} \parallel [1\bar{1}0\,0]_{Al_2O_3}$. Die XRD Messung ist eine integrative Messmethode und vermisst den gesamten Film. Jedoch sind die bei Aufnahme der Polfigur detektierten Reflexe entlang der ϕ -Achse sehr scharf. Daraus lässt sich schließen, dass sich während des Temperprozesses eine Orientierung einstellt und die umliegenden Körner sich entlang dieser ausrichten. Anhand der statistischen Analyse durch die EBSD Messung kann der Anteil der in der Probenebene gedrehten Körner mit 8% zur Gesamtfläche angegeben werden.

5.4 Chemische Ordnung der FeAl Filme auf (0001) Saphir

Bisher wurde lediglich das Wachstum des FeAl Kristalls auf der (0001) Saphiroberfläche untersucht. Da in Kapitel 5.7 auf die Magnetisierung des FeAl Films eingegangen wird und diese mit der chemischen Ordnung korreliert, wird eine zusätzliche Methode zur Detektion der Ordnung benötigt.



Abbildung 5.11: a) Polfigur von FeAl (110) auf (0001)-Saphir gemessen in der (111)-Richtung von FeAl; b) Simulation der Reflexe mit CARINE mit zusätzlich eingetragener Substratorientierung in marineblau.

Aufgrund der unterschiedlichen Atomformfaktoren von Fe und Al sollte der in der bcc-Struktur verbotene (111) Reflex nachweisbar sein [100, 101]. Entsprechend klein ist die theoretisch zu erwartende Intensität mit 3% bezüglich des (110) Reflexes mit 100% (siehe Anhang B.2). Hinzu kommt, dass die chemische Ordnung nicht vollständig ausgebildet wurde und es folglich chemisch ungeordnete Bereiche gibt, die nicht zur Intensität des Reflexes beitragen. Weiterhin erschwert die Messung, dass der Reflex unter der Verkippung von $\Psi = 35, 26^{\circ}$ gegen die Probennormale erwartet wird und damit die effektive Probenfläche zusätzlich verringert ist.

Insofernn kann keine quantitative Aussage über den Ordnungsgrad gemacht werden. In Abb. 5.11 sind die in (111)Richtung gemessenen Reflexe gezeigt, wobei die Orientierung der Probe dieselbe ist wie in Abb. 5.5. Die Position stimmt mit den in CARINE simulierten Reflexen überein und ist ein heuristischer Hinweis auf einen guten Ordnungsgrad der FeAl Struktur. Somit ist es möglich, durch Tempern der Probe nach der Filmdeposition nicht nur eine epitaktische Orientierung bezüglich des Substrats einzustellen, sondern auch in der FeAl Legierung die B2-Phase zu induzieren.

5.5 Epitaxie von FeAl auf $(11\overline{2}0)$ Saphir

Die gewonnenen Erkenntnisse aus Kapitel 5.3 implizieren nun eine Vergleichsmessung des epitaktischen Wachstums auf Al₂O₃ Substraten anderer Schnittrichtungen. Dafür wurden Saphirproben mit Schnitt entlang der (11 $\overline{2}$ 0) und (1 $\overline{1}$ 02) Ebenen verwendet und nach gleicher Methode wie im vorherigen Kapitel präpariert und auf ihre Epitaxiebeziehung zum Substrat untersucht.

Die $(11\overline{2}\,0)$ Ebene ist ähnlich wie die $(000\,1)$ Ebene eine der Hauptachsen im Saphirkristall, wobei beide senkrecht aufeinander stehen. Entgegen der 6-zähligen Symmetrie der $(000\,1)$ Oberfläche liegt hier nur noch eine 2-zählige Symmetrie vor.

In Abb. 5.12 sind die Ergebnisse der Röntgenuntersuchung eines Fe₅₀Al₅₀ Films auf (11 $\overline{2}$ 0) Saphir dargestellt. Der Film wurde bei Raumtemperatur gewachsen und die Probe anschließend bei einer Temperatur von 600°C eine Stunde lang unter UHV Bedingungen geheizt. Anhand des Röntgendiffraktogramms in Abb. 5.12 a) erkennt man ein Wachstum des FeAl Films entlang der [110] Richtung. Da keine weiteren Reflexe auftauchen, ist von texturiertem oder epitaktischem Wachstum des FeAl Films auszugehen. Dies wird belegt durch Abb. 5.12 b), in der die Polfigur des auf (11 $\overline{2}$ 0) Saphir gewachsenen FeAl bezüglich der (110) Reflexe dargestellt ist. Zusätzlich angegeben ist die Orientierung des Substrats (blau). Weiterhin wurde eine zweite Polfigur entlang der (100) Ebenen aufgenommen (nicht abgebildet). Durch die Detektion dieses Reflexes kann einerseits auf die chemische Ordnung geschlossen werden, andererseits lässt sich die epitaktische Beziehung zwischen dem FeAl Film und dem Saphirsubstrat herleiten (vgl. Tabelle 5.3).

Tabelle 5.3: Epitaxiebeziehung von FeAl (110) auf (11 $\overline{2}$ 0) Saphir.

FeAl auf $(11\overline{2}0)$ Saphir	
Probennormale:	$Al_2O_3 (11\bar{2}0) \parallel FeAl (110)$
Probenebene 1:	$Al_2O_3 (0001) \parallel FeAl (\bar{1}10)$
Probenebene 2:	$Al_2O_3 (10\bar{1}0) \parallel FeAl (001)$
1 Orientierungsmöglichkeit	

In Abb. 5.12 d) ist die Grenzschicht zwischen dem FeAl Film und dem Substrat dargestellt. Der FeAl Film schließt sich der $(11\overline{2}0)$ Saphiroberfläche atomar glatt an.

Anhand der HRTEM Beugungsbilder in Abb. 5.13 wird die Epitaxierelation aus Tabelle 5.3 bestätigt. Der Bildbereich der Beugungsdarstellung in Abb. 5.13 links umfasst sowohl den FeAl Film als auch das Substrat. In blau sind die Reflexe des FeAl Films indiziert, in rot und gelb die des Saphirs. In dem direkten Beugungsbild in Abb. 5.13 links sind allerdings die theoretisch vorhandenen $\langle 100 \rangle$ Reflexe des FeAl Films nicht zu erkennen. Fouriertransformiert man numerisch den hoch aufgelösten FeAl Film aus Abb. 5.12 d), so können die Reflexe aufgelöst werden, was ein Indiz für die hohe chemische Ordnung in dem FeAl Film ist.



Abbildung 5.12: Epitaxie von FeAl auf $(11\bar{2}0)$ Saphir: a) $2\Theta - \Omega$ -Diffraktogramm eines bei 600°C getemperten FeAl Films; die mit * versehenen Reflexe können dem Substrat zugeordnet werden; b) Polfigur des Fe₅₀Al₅₀ Films in (100) Richtung; c) Simulation der Reflexe des FeAl Films; d) HRTEM Aufnahme der Grenzschicht zwischen FeAl und $(11\bar{2}0)$ Al₂O₃.

Vergleicht man die Netzebenen parallel und senkrecht zur Grenzfläche, erkennt man ein epitaktisches Wachstum des FeAl Films auf der $(11\bar{2}0)$ Oberfläche von Saphir. Die Gitternetzebenen in der horizontalen Ebene (parallel zur Oberfläche) laufen ohne Störung weiter. Im Gegensatz dazu fügen sich in der Probennormalen drei zusätzliche Atomreihen FeAl auf 54 Atomlagen Al₂O₃ ein. Rechnerisch ergibt sich daraus eine Fehlanpassung von 5,5% entlang der [0001] Richtung an der Saphiroberfläche. Die Stufenversetzungen sind mit schwarzen Pfeilen in Abb. 5.14c) gekennzeichnet. Nach den Literaturwerten des Volumenmaterials [95, 97] errechnet sich eine Gitterfehlanpassung von 5,6%, was in sehr



Abbildung 5.13: HRTEM Beugungsbild von FeAl auf $(11\bar{2}0)$ Saphir (links); Die $\langle 100 \rangle$ Reflexe sind im Mikroskop nicht sichtbar, da sie in der chemisch ungeordneten FeAl Legierung verboten sind; Rechts: In der Fouriertransformation eines Ausschnittes des FeAl Films aus Abb. 5.12 d) kann der $\langle 100 \rangle$ Reflex aufgelöst werden.

guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert liegt. Entlang der Richtung ($10\overline{1}0$) des Saphirkristalls weicht die Gitterkonstante von FeAl entlang der (100) Richtung um 3,7% von der von Saphir ab. Zur Illustration obiger Berechnungen ist in Abb. 5.15 die Rekonstruktion der Grenzschicht des FeAl Films zum Substrat dargestellt. Analog der Oberflächenrekonstruktion auf (0001) Saphir ist hier ebenfalls die relative Lage der Saphiratome farbkodiert eingetragen, wobei die schwarzen Kreise den Sauerstoffatomen an der Oberfläche entsprechen. Darüber gelegt ist die Gitterstruktur von FeAl mit gelben Kreisen gekennzeichnet. Die schwarzen Verbindungslinien zwischen den Al Atomen des FeAl Gitters geben den Schnitt entlang der (110) Ebenen wieder. Anhand der eingezeichneten Richtungen lässt sich die Orientierung des FeAl Gitters auf dem Saphir entsprechend



Abbildung 5.14: Ebenenanalyse von FeAl auf $(11\overline{2}0)$ Saphir: a) Bildauswahl für die Fouriertransformation; b) inverse FT der horizontalen Ebenen; c) inverse FT der vertikalen Ebenen.



Abbildung 5.15: Rekonstruktion der Grenzfläche zwischen FeAl und $(11\overline{2}0)$ Saphir. Die atomaren Lagen der Saphiratome sind farbkodiert bezüglich der Saphiroberfläche (bei 0Å) angegeben. Das FeAl Gitter liegt mit Schnitt entlang der (110) Ebenen und ist mit gelben Atomen gekennzeichnet.

vorher angegebener epitaktischer Beziehungen nachvollziehen. Es kann davon ausgegangen werden, dass der Saphir mit einer Sauerstoffschicht den Kristall terminiert. Dies ist in Abb. 5.15 durch die schwarzen Ringe dargestellt, die sich direkt an der Saphiroberfläche befinden. Alle anderen Sauerstoffatome des Saphirs sitzen unterhalb der Kristalloberfläche, wobei der Abstand zur höchsten Atomschicht in der Farbe der Ringe entsprechend der Skala in Ångstrom kodiert ist. Lediglich eine Reihe Aluminiumatome oberhalb der Sauerstoffatome ist zur besseren Orientierung im Saphirkristall mit eingezeichnet.

Im Gegensatz zu (0001) geschnittenem Saphir ergibt sich hier nur eine Orientierungsmöglichkeit des FeAl Kristalls auf der $(11\overline{2}0)$ Saphiroberfläche. Nichtsdestotrotz lässt sich experimentell eine thermisch getriebene Epitaxie des FeAl Films bezüglich der Saphiroberfläche feststellen.

5.6 Epitaxie von FeAl auf $(1\overline{1}02)$ Saphir

Im Vergleich zu $(000\ 1)$ und $(11\overline{2}\ 0)$ geschnittenem Saphir konnte bei $(1\overline{1}0\ 2)$ geschnittenem Saphir keine Epitaxie zwischen Film und Substrat durch Anlassen der Probe nach der Filmdeposition festgestellt werden. Die Proben wurden hierfür analog der Probenpräparation der ersten beiden Schnittrichtungen nach der Präparation bei Raumtemperatur eine Stunde lang bei 600°C getempert. Auch Polfigurmessungen zeigen keine ausgezeichnete Orientierung für die (110) Reflexe von FeAl.

Deponiert man den FeAl Film hingegen bei geheiztem Substrat (600°C), erhält man das in Kapitel 5.1 erwähnte kolumnare Wachstum der FeAl Kristallite. Anhand von Röntgenbeugung lässt sich eine epitaktische Beziehung vermuten, da im XRD Diffraktogramm (Abb. 5.16 a) lediglich die intensitätsschwachen (100) und (200) Reflexe von FeAl zu erkennen sind. Aus der Messung der Polfigur entlang des (110) Reflexes von FeAl lässt sich



Abbildung 5.16: Epitaxie von FeAl auf $(1\bar{1}02)$ Saphir: a) $2\Theta - \Omega$ -Diffraktogramm eines *insitu* getemperten FeAl Films; die mit * versehenen Reflexe sind dem Substrat zuzuordnen; b) Polfigur des Fe₅₀Al₅₀ Films in (110) Richtung; c) Simulation der Reflexe des FeAl Films; d) TEM Aufnahme der Grenzschicht zwischen FeAl und $(1\bar{1}02)$ Al₂O₃.

das Schichtwachstum wie in Tabelle 5.4 angeben. Dies wird bestätigt durch HRTEM Bilder, wie sie in Abb. 5.16 d) zu sehen sind. Anhand der HRTEM Beugungsbilder in Abb. 5.17 ist ersichtlich, dass der FeAl Film auf dieser Saphirschnittrichtung keine derart ausgezeichnete epitaktische Beziehung gegenüber dem Substrat aufweist, wie es bei (0001) und (11 $\overline{2}$ 0) Saphir festgestellt werden konnte.

Es existieren zwei Hauptdomänen, die gegenüber der Probennormalen leicht verkippt sind. Dies lässt sich an der Aufspaltung des [100] Reflexes von FeAl in Abb. 5.17 links erkennen. In der Ebene weisen diese Domänen unterschiedliche Gitterkonstanten mit $a_1[110] =$

Tabelle 5.4: Epitaxiebeziehung von FeAl (100) auf $(1\overline{1}02)$ Saphir

FeAl auf $(1\overline{1}02)$ Saphir	
Probennormale:	$Al_2O_3 (1\overline{1}02) \parallel FeAl (100)$
Probenebene:	$Al_2O_3 (11\bar{2}0) \ FeAl (0\bar{1}1)$
1 Orientierungsmöglichkeit	

3,97(2) Å und $a_2[110] = 3,90(0)$ Å auf. Nominell sollte die Gitterkonstante von FeAl in der [110] Richtung $a_{\text{Lit.}}[110] = 4,087$ Å betragen [95]. Weiterhin sind Nebendomänen erkennbar über deren Kristallphase und Orientierung sich nichts aussagen lässt. Die Reflexe der Nebendomänen sind in Abb. 5.17 orange markiert. Eine Auswertung der Gitterebene



Abbildung 5.17: HRTEM Beugungsbild von dem separat erstellten Beugungbild von FeAl auf $(1\bar{1}02)$ Saphir. Die Richtungen der Hauptdomänen sind mit roten und gelben Kreisen markiert. In Orange sind Reflexe von Nebendomänen gekennzeichnet (links); Beugungsbild des $(1\bar{1}02)$ Saphirsubstrats. In beiden Beugungsbildern liegt die FeAl Oberfläche an der Oberseite des Bildes (rechts).

durch inverse Fouriertransformation analog den vorher gezeigten ist hier nicht möglich, da die Epitaxie stark gestört ist.

Entsprechend schwierig ist die Rekonstruktion der Grenzfläche zwischen FeAl und $(1\overline{1}02)$ geschnittenem Saphir. In Abb. 5.18 ist die FeAl Gitterstruktur der Saphiroberfläche überlagert. Die Fe Atome der FeAl Struktur sind mit gestrichelten Linien verbunden und repräsentieren die (100) Ebene des FeAl Films. Aufgrund der schwierig zu indizierenden Atomlagen des Saphirkristalls ist lediglich eine Farbskala ohne Tiefenangabe für die Höhenzuordnung der Atome in der Oberflächennormalen angegeben.

Wie man anhand der Polfigurmessungen erkennen kann, wächst der FeAl Film zwar bevorzugt in die (100) Richtung und ist in der Ebene in epitaktisch $(1\overline{1}02)||(110)$ orientiert, ist aber stark gestört aufgrund der fehlenden einfachen Anordnungsmöglichkeit auf der Saphiroberfläche. Dies belegen die TEM Untersuchungen, die sowohl Nebendomänen



Abbildung 5.18: Rekonstruktion der Grenzfläche zwischen FeAl und $(1\overline{1}02)$ Saphir. Die gelb gefüllten Kreise symbolisieren den FeAl Film mit Schnitt in der (100) Ebene.

als auch Verkippungen zu der oben genannten Orientierung aufweisen. Jetzt wird auch verständlich, warum der bei Raumtemperatur deponierte FeAl Film nicht thermisch getrieben eine epitaktische Beziehung zum Substrat ausbildet, wie im Falle von (0001) und (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir. Die (1 $\overline{1}$ 02) Oberfläche von Saphir bietet weder die passenden Gitterabstände noch eine entsprechende Symmetrie für die Ausbildung eines epitaktischen FeAl Films.

5.7 Magnetismus als Maß für die chemische Ordnung der FeAl Filme

FeAl Filme, die chemisch geordnet sind, sollten nur paramagnetisches, aber kein ferromagnetisches Verhalten aufweisen. In Kapitel 5.2 wurde gezeigt, dass dünne FeAl Filme, die mit der Laserablation bei Raumtemperatur präpariert wurden, eine nanokristalline Struktur und keine chemische Ordnung besitzen. Dieser Sachverhalt geht der Literatur nach einher mit einem ferromagnetischen Verhalten des FeAl Films bei Raumtemperatur [26, 73, 102]. In Abb. 5.19 ist die Hysteresekurve eines bei Raumtemperatur präparierten FeAl Films dargestellt. Dieser weist ein Koerzitivfeld von $H_K \leq 10$ Oe und eine Sättigungsmagnetisierung von $M_s = 0,87 \mu_{\rm B}/{\rm f.u.}$ auf. Ähnliches Verhalten ist auch bei der Präparation von FeAl Filmen mittels Sputtern [103, 104] beobachtet worden.

Wie in Kapitel 5.4 belegt, findet nach dem Tempern der FeAl Filme ein Phasenübergang von einer nanokristallinen Phase in einen epitaktisch Film statt. Zudem findet ein Ordnungsprozess der ungeordneten A2 Phase in die chemisch geordnete B2 Phase statt. Anhand der in Kapitel 2.1 vorgestellten Beobachtungen sollte während des Temperns ein magnetischer Phasenübergang von ferro- nach paramagnetisch vonstatten gehen. Nachdem die Probe für eine Stunde bei 600°C getempert wurde, ordnet sich der FeAl Film strukturell und chemisch, wie bereits in den Kapiteln 5.3 und 5.4 beschrieben worden ist. Dies hat zur Folge, dass die ferromagnetische Kopplung verschwindet und der Film nur noch paramagnetisch mit einem äußeren Feld wechselwirkt (vgl. Abb. 5.19).

Für die Untersuchung einer möglichen Abhängigkeit von der Korngröße, deren Orientierung und dem Überführen des FeAl Films in die paramagnetische Phase, sind äquivalente FeAl Filme auf Al_2O_3 Substrate unterschiedlicher Schnittrichtungen deponiert worden. Durch schrittweises Anlassen und der anschließenden Struktur- und Magnetometriemessung lassen sich Schlüsse auf den Einfluss der Substratorientierung, auf die Ausbildung der strukturellen sowie der chemischen Ordnung ziehen.

Experimentell wurden die FeAl Filme auf eine bestimmte Temperatur angelassen und für exakt eine Stunde gehalten. Der Vergleichbarkeit wegen sind präparierte, aber noch nicht getemperte Filme in mehrere Stücke geteilt worden, die einzeln untersucht wurden. Damit wird ausgeschlossen, dass ein vorheriger Temperschritt Einfluss auf die Magnetisierung der nächsten Ausheizstufe hat. Die Temperschritte erfolgten stets unter Vakuum $(p \leq 5 \cdot 10^{-8} \text{ mbar})$, um einer Oxidation der Filme vorzubeugen. Die auf Raumtemperatur abgekühlten Proben wurden mit Röntgendiffraktometrie- und SQUID Magnetometriemessungen auf ihre Eigenschaften untersucht. Anhand der Röntgenanalyse in Bragg-Brentano Geometrie kann über die Verbreiterung der Reflexe auf die Korngröße geschlossen werden. Die hier interessante Größe ist die Sättigungsmagnetisierung M_S des ferromagnetischen Anteils des FeAl Films. Da der Sättigungsmagnetisierung ein paramagnetischer Anteil für alle $H \neq 0$ Oe überlagert ist, wird in dem linearen Bereich der Sättigung eine Regressionsgerade angepasst und deren Achsenabschnitt bei H = 0 Oe als Maß für die Sättigung M_S des ferromagnetischen Anteils des FeAl Films herangezogen (vgl. Abb. 5.19). Dabei ist zu



Abbildung 5.19: Hysteresekurven von gleichzeitig präparierten FeAl Filmen auf (1120) geschnittenem Saphir für verschiedene Temperaturen. Aufgrund des der Hysterese überlagerten paramagnetischen Anteils wird der in Sättigung getriebene ferromagnetische Anteil mit einer Regressionsgeraden angepasst, wobei die Ordinate H = 0 Oe die ferromagnetische Sättigung M_S wiedergibt.

erwähnen, dass die Proben durchweg auf die Magnetisierung in der Filmebene vermessen wurden.

Abb. 5.20 zeigt für verschiedene Schnittrichtungen des Saphirsubstrates die Sättigungsmagnetisierung und die Korngröße in Abhängigkeit von der Temperatur. Alle FeAl Filme besitzen nach der Deposition eine Magnetisierung zwischen $0,75 \,\mu_B/f.u.$ und $0,85 \,\mu_B/f.u.$, welche beim Anlassen monoton abnimmt. Dabei wurde festgestellt, dass bei (000 1) und (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir ein drastischer Abfall der Magnetisierung bei einer Temperatur von etwa 300°C einsetzt. Ab einer Temperatur von 400°C sinkt die Magnetisierung auf unter 6% der ursprünglichen Magnetisierung. Vergleicht man dies mit FeAl auf (1 $\overline{10}$ 2) geschnittenem Saphir, liegt die Temperatur, bei der die Magnetisierung signifikant abnimmt, oberhalb von 470°C. Das ferromagnetische Moment lässt sich bei einer Temperatur von 520°C lediglich auf 18% des ursprünglichen Wertes erniedrigen.

Betrachtet man die Korngröße, so ergibt sich nach der Filmdeposition bei Raumtemperatur eine nanokristalline Struktur mit Körnern von unter 100 Å, die statistisch orientiert auf dem Substrat haften. Bei allen Substratschnittrichtungen wird die Korngröße aus dem (110) Reflex von FeAl bestimmt. Dabei vergrößert sich die Korngröße ab einer Temperatur von 360°C in den Filmen auf (000 1) und (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir stark. Während bei



Abbildung 5.20: Sättigungsmagnetisierung M_S und Korngrößen von Fe
Al Filmen auf unterschiedlich geschnittenen Al₂O₃ Substraten.

470°C auf (0001) Saphir lediglich Körner mit einer mittleren Größe von 1000Å gemessen werden können, ergeben sich in den FeAl Filmen auf (11 $\overline{2}$ 0) Saphir einerseits Körner mit einer Größe von 2000Å, anderseits auch Körner einer anderen Gitterkonstante mit 500Å. Bei den Filmen auf (1 $\overline{1}$ 02) geschnittenen Substraten ist der (110) Reflex von FeAl sehr schwach ausgeprägt und verschwindet vollständig bei höheren Temperaturen, weshalb die Korngrößenbestimmung mit dieser Methode mit einem großen Fehler behaftet ist. Im Vergleich dazu tritt der Phasenübergang von ferro- nach paramagnetisch bei den FeAl Filmen auf (1 $\overline{1}$ 02) geschnittenem Saphir erst bei einer Temperatur oberhalb von 470°C auf. Gleichzeitig wachsen die FeAl Körner nur schwach in ihrer Größe. Da sich die Korngrößen erst ab einer Temperatur von 350°C dramatisch ändern, kann bei (0001) und (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenen Substraten davon ausgegangen werden, dass sich die chemische Ordnung unabhängig von der Korngröße einstellt, da die Magnetisierung schon unterhalb von 350°C deutlich absinkt.

Im Gegensatz dazu scheint die Diffusion der Fe und Al Atome, welche zur Ausbildung der chemischen Ordnung notwendig ist, bei $(1\bar{1}02)$ geschnittenem Saphir gehemmt. Einerseits kann keine vollständige Epitaxie durch nachträgliches Tempern des FeAl Films erreicht werden, andererseits liegt die Temperatur für den Übergang in die paramagnetische Phase oberhalb von 470°C. Daraus lässt sich der Schluss ziehen, dass bei den hier deponierten Filmdicken (< 50 nm) ein starker Einfluss der Substratoberfläche vorliegt. Diese kann im Fall von (0001) und (11 $\bar{2}$ 0) geschnittenem Saphir eine thermisch getriebene Epitaxie unterstützen, welche Vorraussetzung für den magnetischen Phasenübergang ist. Bei dem (1 $\bar{1}02$) geschnittenem Saphir hingegen hemmt die Oberfläche nicht nur die Ausbildung der chemischen Ordnung sondern auch das Wachstum der Körner. Daraus resultiert eine wesentlich höhere Anlasstemperatur für den magnetischen Phasenübergang in dem FeAl Film.

Für die Bestimmung von Verspannungen in den FeAl Filmen wurden die Gitterkonstanten der FeAl Filme anhand der Röntgendiffraktogramme berechnet. Die Gitterkonstanten der FeAl Filme sind in Abb. 5.21 in Abhängigkeit von der Temperatur gezeigt. Die mit steigender Anlasstemperatur abnehmende Gitterkonstante ist in guter Übereinstimmung mit den Beobachtungen anderer Arbeitsgruppen [26], bei welchen die FeAl Legierung durch Kugelmahlen nanokristallin pulverisiert wurde. Weiterhin ist in Abb. 5.21 oben die relative Intensität der (110) Reflexe des FeAl Films aufgetragen. Aufgrund der nanokristallinen Struktur beträgt unmittelbar nach der Deposition die Intensität der Reflexe unter 2% der maximalen Intensität des zuletzt getempertem Films. Überdies skaliert die Intensität der Reflexe einerseits mit der Korngröße, andererseits mit dem Gitterabstand des FeAl Films. Bei (0001) und (1120) geschnittenem Saphir erreicht die Intensität des FeAl(110)Reflexes schon sehr große Werte (> 900 Å) bei einer Temperatur von $T < 430^{\circ}$ C. Dies entspricht auch der Temperatur, bei der die FeAl Körner an Ausdehnung gewinnen. Dem entgegen steht das Kornwachstum und die Reflexintensität von FeAl auf (1102) geschnittenem Saphir. Die Ausbildung größerer Körner wird durch die fehlende geeignete Kristalloberfläche behindert, was sich in der hohen Anlasstemperatur von $T > 500^{\circ}$ C widerspiegelt.

Anhand der Gitterkonstanten lassen sich keine Unterschiede beim Tempern der FeAl Filme auf den unterschiedlich geschnittenen Saphirsubstraten feststellen. Betrachtet man die Korngröße, ergeben sich die größten Körner mit 2000 Å in FeAl Filmen auf ($11\overline{2}0$) geschnittenem Saphir bei einer Temperatur von etwa 470°C. Auf (0001) geschnittenem Saphir bleibt die Korngröße ab einer Temperatur von 420°C konstant mit 1000 Å.

Auf allen Substratschnittrichtungen kann der chemisch geordnete Zustand der FeAl Films eingestellt werden. Allerdings differieren die dafür notwendigen Temperaturen sehr stark. Außerdem variiert die erhaltene Korngröße ebenfalls mit dem verwendeten Substrat. Aus der Sichtweise mutmaßlicher Anwendungen wäre ein FeAl Film auf (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir die beste Lösung, da sich hier ein nahezu perfekter paramagnetischer Film mit einer großen Korngröße einstellt, der schon mit Temperaturen unterhalb von $T = 500^{\circ}$ C erreicht werden kann.



Abbildung 5.21: Die relative Intensität der FeAl (110) Reflexe steigt mit wachsender Korngröße an. Dies gilt für alle Substratschnittrichtungen, wobei die Korngröße bei (0001) und (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir bei kleineren Temperaturen deutlich ansteigt (oben). Die Lage der (110) FeAl Röntgenreflexe schiebt mit höherer Temperatur zu größeren 2 Θ -Winkeln, was einer Verkleinerung der Gitterkonstanten entspricht (unten).

Kapitel 6

Ionenbestrahlung von FeAl Filmen

Zur Untersuchung des schrittweisen Übergangs eines kristallinen Materials in einen strukturell gestörten oder sogar amorphen Zustand ist die Ionenbestrahlung ein elegantes Werkzeug. Sie erlaubt die Modifikation oberflächennaher Bereiche, wobei die Eindringtiefe und der damit verknüpfte differentielle Strahlenschaden durch Variation der Ionenenergie auf die dünnen FeAl Filme optimiert werden kann. Typischerweise werden die zu untersuchenden Proben flächig bestrahlt, wobei die Idee der selektiven Modifikation durch lokal fokussierte Ionenbestrahlung, speziell bei dem durch Bestrahlung induzierten magnetischen Phasenübergang in FeAl, durchaus einige sehr interessante funktionelle Aspekte aufweist [31, 105]. Mit dem Wissen um die Präparation dünner und in der B2-Phase geordneter FeAl-Filme stellt sich die Frage, ob sich die Filme analog den bisher auf Magnetismus untersuchten FeAl Vollmaterialproben verhalten. Charakteristische Messgrößen sind die Suszeptibilität und das Koerzitivfeld, sowie nach numerischer Integration der Fläche unter den Suszeptibilitätskurven die Sättigungsmagnetisierung und die Remanenz. Einen Zugang zu diesen Größen erhält man durch die *in-situ* Messtechnik mittels des am Ionenbeschleuniger angeflanschten AC-Suszeptometers.

Um die Ionenbestrahlungen mit unterschiedlichen Projektilmassen und Energien vergleichen zu können, wurde der Strahlenschaden eines 65 nm dicken FeAl Films in einer Tiefe von 30 nm als Referenzwert herangezogen. Durch SRIM-Simulationen [47, 52] konnten für einen 65 nm dicken FeAl Film die in Tabelle 6.1 angegebenen Schädigungen/Fluenz simuliert werden. Die Fluenzen in den Bestrahlungen wurden dabei anhand der Simulationen

Projektil	Energie	Kollisionen	Strahlenschaden	Sputterrate
	(keV)	$\left(\frac{\#}{\text{\AA-Ion}}\right)$	$\left(\frac{\mathrm{dpa}}{1\cdot10^{14}\mathrm{Ionen}}\right)$	$\left(\frac{\text{Atome}}{\text{Ion}}\right)$
Ne ⁺	300	0,28	0,034	0,4
Ar ⁺	350	$1,\!00$	0,121	$1,\!0$
Kr ⁺	350	$3,\!00$	0,364	3,5

Tabelle 6.1: Schädigung eines 65 nm dicken FeAl Films in 30 nm Tiefe und Sputterkoeffizient der Oberfläche von FeAl errechnet mit SRIM [52].

so gewählt, dass die Strahlenschäden zwischen einem und maximal zwei dpa betragen. Sämtliche Bestrahlungen wurden bei T = 310 K durchgeführt, da bei dieser Temperatur FeAl in die ferromagnetische Phase überführt werden kann und Vergleichsmessungen mit SQUID Magnetometrie durchgeführt werden können, ohne dass Temperaturänderungen die Proben beim Transport (T = 295 K) nach der Bestrahlung verfälschen.

Durch die Messung der AC-Suszeptibilität lassen sich leicht das Koerzitivfeld H_C und die Sättigungsmagnetisierung M_S als Funktion der Fluenz bestimmen. Für diese Messungen wurden eine paramagnetische Fe₅₂Al₄₈ Probe mit einfach geladenen Neonionen bei einer Beschleunigungsenergie von 300 keV bei T = 310 K beschossen. In Abb. 6.1 ist die Änderung der Suszeptibilität dargestellt. Aufgetragen ist dabei der Realteil der Suszeptibilität χ' als Funktion der magnetischen Feldstärke H_{DC} , wobei die Amplitude des alternierenden Felds mit $H_{ac} = 0, 25$ Oe gewählt worden ist.



Abbildung 6.1: Suszeptibilität eines anfänglich paramagnetischen $Fe_{52}Al_{48}$ Films, der mit 300 keV Ne⁺ Ionen bei T = 310 K bestrahlt wurde.

Der zunächst paramagnetische Film gewinnt ab einer Fluenz von $\phi = 3 \cdot 10^{14} \text{ Ne}^+/\text{cm}^2$ an ferromagnetischem Anteil, erkennbar an der sich vergrößernden Fläche unterhalb der Suszeptibilitätskurve. Diese ist ein Äquivalent für die Sättigungsmagnetisierung (vgl. Gleichung 4.16).

An Proben derselben Charge wurden ebenfalls Bestrahlungen mit Ar⁺ Ionen und Kr⁺ Ionen bei 350 keV durchgeführt. Die Suszeptibilitätskurven für Argon und Krypton sind in Abb. 6.2 dargestellt. Vergleicht man die Suszeptibilitätskurven miteinander, fällt bei der



Abbildung 6.2: Suszeptibilität von $Fe_{52}Al_{48}$ unter Ionenbestrahlung; oben: Bestrahlung von FeAl mit 350 keV Ar⁺ Ionen; unten: Bestrahlung von FeAl mit 350 keV Kr⁺ Ionen.

mit dem relativ leichten Neon bestrahlten Probe die scharfen Flanken neben den Maxima der Suszeptibilitätskurve auf. Bei den mit den schwereren Ionen Ar und Kr bestrahlten Filmen verbreitert sich die Suszeptibilitätskurve. Jede Suszeptibilitätskurve weist nur ein einziges Maximum auf, das zu beiden Seiten monoton abfällt. Dies bedeutet im Rückschluss, dass die Hysteresekurven nach der Bestrahlung mit leichten Ionen eine höhere Squareness im Vergleich zu den mit schwereren Ionen bestrahlten Proben besitzen.

6.1 Magnetisierung von ionenbestrahlten FeAl Filmen

Der Strahlenschaden hängt von der Masse der verwendeten Projektile ab, d.h. je schwerer die Ionensorte gewählt wird, desto weniger Fluenz wird für die Erzeugung der Defekte in dem FeAl Film benötigt [52, 60]. Zur absoluten Skalierung des ferromagnetischen Verhaltens von FeAl Filmen wurde unmittelbar nach der letzten Bestrahlung die Sättigungsmagnetisierung mittels SQUID-Magnetometrie bestimmt. Aus den später im Detail diskutierten Hysteresekurven (Abb. 6.6) ist ersichtlich, dass die Filme bereits ab sehr kleinen magnetischen Feldern mit H < 50 Oe in Sättigung getrieben werden können. Unter Verwendung von Gleichung 4.16 kann die aus den Suszeptibilitätskurven numerisch bestimmte Fläche in eine relative Sättigungsmagnetisierung umgerechnet werden, die auf den Absolutwert skaliert werden kann. In Abb. 6.3 sind die Sättigungsmagnetisierungen bei Bestrahlung mit verschiedenen Projektilen über der Fluenz in logarithmischem Maßstab aufgetragen.

Diese Messergebnisse stehen qualitativ in Einklang mit Resultaten anderer Gruppen bezüglich des Magnetisierungsverhaltens bei Verwendung verschieden schwerer Projektile [60]. Dabei wurde ebenfalls ein rascherer Anstieg der Sättigungsmagnetisierung als Funktion der Fluenz beobachtet, je mehr Masse die Ionensorte aufwies. Betrachtet man die Defekttypen, die bei den Stoßprozessen generiert werden, ergeben sich bei den leichten Ionen hauptsächlich Paare von Zwischengitteratomen und Leerstellen, die im Allgemeinen aufgrund ihrer hohen Diffusionsgeschwindigkeit schnell ausheilen können. Bei den schweren Ionen hingegen bilden sich räumlich dicht gepackte Stoßkaskaden aus, wobei die in den Subkaskaden erzeugten Defekte instantan nach ihrer Erzeugung einfrieren. Daher wird mit steigendem Atomgewicht des Projektils für den gleichen Zuwachs der Magnetisierung weniger Fluenz benötigt [106]. Allerdings ist es nicht möglich mit Ionenbestrahlung bei 310 K die nach der Präparation vorherrschende Sättigungsmagnetisierung zu erreichen. Diese ist in Abb. 6.3 durch die gestrichelte Linie gekennzeichnet. In andere Gruppen konnte eine Sättigungsmagnetisierung erreicht werden, wobei experimentell Unterschiede bezüglich der Bestrahlung und der Messmethodik bestehen. Zum einen erfolgte die Bestrahlung an FeAl Vollmaterial mit Edelgasionen der Energie 2..45 keV, zum anderen wurde die Magnetisierung mittels des magneto-optischen Kerreffekts gemessen.

Für einen Vergleich der verschiedenen Projektile untereinander wurde die Fluenz mit den in Tabelle 6.1 vorgestellten Simulationsdaten in den jeweiligen Strahlenschaden (dpa) umgerechnet. Trägt man die auf die Sättigung normierte Magnetisierung aller Bestrahlungen



Abbildung 6.3: Sättigungsmagnetisierung der $Fe_{52}Al_{48}$ Filme nach Ionenbestrahlung mit Projektilen unterschiedlicher Masse (Ne⁺, Ar⁺, Kr⁺).

über dem Strahlenschaden auf, zeigen die Magnetisierungskurven denselben Trend, wobei die ersichtlichen Abweichungen einerseits auf die relative Unsicherheit von 10% in der Fluenz, andererseits auf die unterschiedlichen Defekttypen des FeAl Films zurückgeführt werden können (vgl. Abb. 6.4).

Hieraus lässt sich schließen, dass nach der Deposition der FeAl Filme diese einen stabilen, ungeordneten und ferromagnetischen Anfangszustand besitzen, der nicht durch Ionenbestrahlung bei Raumtemperatur mit Fluenzen kleiner einem dpa erreicht werden kann (vgl. Abb. 6.4). Da hier davon ausgegangen werden kann, dass es sich bei dem Phasenübergang von para- nach ferromagnetisch um ein Perkolationsproblem handelt [107–110], sollte sich eine statistische Besetzung der Fe und Al Atome in der bcc-Gitterstruktur spätestens dann eingestellt haben, wenn jedes Atom im Mittel einmal versetzt wurde (1 dpa). Entgegen den bisher bekannten Modellen bei der Beschreibung einer Widerstandserhöhung durch Bestrahlung in amorphen und nanokristallinen Metallen passt hier aber kein einfaches Exponentialgesetz der Form $M = M_0 \cdot [1 - \exp(-b \cdot \phi)]$ für die Beschreibung der wachsenden Magnetisierung mit zunehmender Fluenz [53, 57]. Für einen Vergleich der Magnetisierungsänderung und der Widerstandsänderung von dünnen, legierten FeAl Filmen (B2-Phase) unter Ionenbestrahlung gibt es bisher keine Veröffentlichungen. Hauptsächlich wurde das Widerstandsverhalten von FeAl Multilagen während des Ionenstrahlmischens



Abbildung 6.4: Sättigungsmagnetisierung der $Fe_{52}Al_{48}$ Filme als Funktion des Strahlenschadens für verschiedene Projektile (Ne⁺, Ar⁺, Kr⁺). Bei einem Strahlenschaden von einem dpa zeichnet sich kein Sättigungsverhalten der Magnetisierung gegenüber der Fluenz ab, wie man im einfachsten Modell atomarer Unordnung erwarten würde.

untersucht, wobei die dabei verwendeten Fluenzen sehr viel größer sind (450 keV Xe⁺ mit maximal $1 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm²) [51, 57]. Dies entspräche umgerechnet auf die hier gezeigten Bestrahlungen einem Strahlenschaden von 72 dpa, wobei ein Vergleich zu obigen Bestrahlungen schon aufgrund des unterschiedlichen Ausgangszustands der Filme (FeAl Multilagen \leftrightarrow nanokristalliner FeAl Film) nicht zulässig ist.

Eine Erklärung dieses ungewöhnlichen magnetischen Verhaltens lässt sich durch Ausschluss verschiedener Kriterien eingrenzen. Da bei der hier durchgeführten Ionenbestrahlung immer Sputtereffekte an der Oberfläche auftreten, könnte ein Abtrag des FeAl Films an der Oberfläche zu einer verringerten Sättigungsmagnetisierung aufgrund der fehlenden magnetischen Momente der Eisenatome führen. Im Fall der Kr⁺ Bestrahlung würde nach Berechnung anhand der aus SRIM gewonnenen Daten die Schichtdicke des FeAl Films um 13% geschmälert pro geschossenem dpa. Die zunächst angenommenen Sputterkoeffizienten stimmen allerdings nicht mit den experimentellen Beobachtungen überein. Dies kann anhand von RBS Messungen belegt werden, die sowohl vor, als auch nach der Bestrahlung an den FeAl Filmen durchgeführt wurden. In Abb. 6.5 sind die RBS Spektren gezeigt, wobei die Messwerte als Symbole dargestellt und die mit XRUMP simulierten Kurven über die Messpunkte gelegt sind. Weiterhin sind, unter Berücksichtigung der verwendeten



Abbildung 6.5: RBS Spektren von $Fe_{52}Al_{48}$ Filmen vor und nach den angegebenen Bestrahlungen: Je höher die Projektilmasse, desto stärker findet ein Ionenstrahlmischen an der Grenzschicht FeAl zu Saphir statt. Zusätzlich angegeben sind die mit XRUMP erstellten Simulationen für die Bestimmung der Schichtdicken und der Stöchiometrie. Die Pfeile markieren die Rückstreuenergie der He²⁺ Ionen für die entsprechenden Elemente an der Probenoberfläche.

Strahlparameter (He^{2+} , 700 keV), die Rückstreuenergien von Fe, Al und O für sich an der Probenoberfläche befindende Atome markiert.

Die Schichtdicken aller Filme bleiben bei allen Proben nahezu erhalten, erkennbar an der Energieverteilung der Rückstreuenergie von Eisen. Dies ist in Abb. 6.5 mit dem violett schraffierten Bereich markiert. Anhand der Simulation mit XRUMP beträgt die FeAl Filmdicke nach dem Tempern der Probe 64 nm bei einer Stöchiometrie von $Fe_{50}Al_{50}$ (vgl. Tab 6.2). Da das Energiespektrum im Bereich zwischen 400 keV und 450 keV nicht Null ist, weist dies auf Ionenstrahlmischen von Eisen in den Saphirkristall hin, wobei der relative Anteil von Fe in dem Al_2O_3 Kristall unter 4 atom-% liegt. In der Simulation ist der vorliegende Gradient der Eisendiffusion mit einem linearen Abfall über eine Schichttiefe von 180 nm simuliert worden. Bei den ionenbestrahlten Filmen kann zunächst bei allen drei Proben eine Oxidschicht an der Oberfläche konstatiert werden, die im Falle von Ne⁺ und Ar⁺ zu einer Dicke von 3 nm simuliert wurde. Gleichzeitig tritt an der Grenzschicht zwischen dem FeAl Film und der Saphiroberfläche durch die Bestrahlung ein Ionenstrahlmischen beider Schichten auf, wodurch sich Sauerstoff aus dem Saphirkristall in dem FeAl Film einlagert. Am deutlichsten ist dieser Effekt im Falle der Kr⁺ Bestrahlung zu erken-

	getempert	Ne^+	Ar^+	Kr ⁺
Ionenbestrahlung	—	$300\mathrm{keV}$	$350\mathrm{keV}$	$350\mathrm{keV}$
		$3,7\cdot 10^{15}1/{ m cm}^2$	$2,0\cdot 10^{15}1/{\rm cm}^2$	$5,5\cdot 10^{14}1/{ m cm}^2$
Schicht 1		$3\mathrm{nm}$	$3\mathrm{nm}$	$50\mathrm{nm}^\dagger$
(Oberfläche)		$\mathrm{Fe}_{25}\mathrm{Al}_{25}\mathrm{O}_{50}$	$\mathrm{Fe}_{25}\mathrm{Al}_{25}\mathrm{O}_{50}$	$Fe_{16,6}Al_{33,3}O_{50}$
				$\mathrm{Fe}_{20}\mathrm{Al}_{20}\mathrm{O}_{60}$
Schicht 2	$65\mathrm{nm}$	$60\mathrm{nm}$	$62\mathrm{nm}$	$38\mathrm{nm}^\dagger$
(FeAl Film)	$\mathrm{Fe}_{50}\mathrm{Al}_{50}$	$\mathrm{Fe}_{50}\mathrm{Al}_{50}$	$Fe_{43,9}Al_{55,8}O_{0,3}$	$Al_{50}Fe_{50}$
				$Al_{28,5}Fe_{28,5}O_{42,8}$

Tabelle 6.2: Parameter zur Simulation der RBS Spektren mittels XRUMP [88].

 † Hier wurde eine linearer Stöciometriegradient vom oberen zum unteren Wert angenommen.

nen anhand der häufigen Detektionsereignisse in dem Energiebereich zwischen 400 keV und 450 keV. Dementsprechend ergeben sich auch die Stöchiometrien der FeAl Filme, wobei im letzten Fall eine lineare Änderung der Stöchiometrie über der Schichttiefe für eine stimmige Simulation des Kr⁺ bestrahlten FeAl Films angenommen werden musste.

Durch den Vergleich zwischen den experimentellen und den simulierten RBS Spektren lassen sich Sputtereffekte ausschließen, da die Schichtdicken der bestrahlten Proben nahezu der nach dem Tempern beobachteten Schichtdicke entsprechen. Somit kann Oberflächensputtern als Ursache des abnormalen magnetischen Verhaltens ausgeschlossen werden. Die durch RBS Messungen und auch durch TEM Untersuchungen bestätigte Oxidation der Oberfläche der FeAl Filme (vgl. Kap. 5.2) würde zu einer Erniedrigung des magnetischen Gesamtmoments aufgrund des antiferro- und ferrimagnetischen Verhaltens von Eisenoxiden führen [90]. Zur Messung einer elementspezifischen Oxidation derart, dass nur Aluminium oxidiert und das Eisen metallisch und damit ferromagnetisch bleibt, ist obige Messung nur bedingt geeignet, leider allerdings nicht sensitiv genug (vgl. [45]). Insofern kann die Oxidation der Oberfläche ebenfalls nicht das magnetische Verhalten erklären.

Anhand obiger RBS Messungen erkennt man bei fortlaufender Bestrahlung, dass sich einerseits Eisen in dem Saphirsubstrat, andererseits Sauerstoff in dem FeAl Film befindet. Der Grund dafür liegt in der ionenstrahlgetriebenen Durchmischung der Grenzschicht aufgrund von Kollisionen der penetrierenden Ionen mit dem Targetmaterial. Sauerstoff kann dabei einerseits von der Oberfläche in den FeAl Film getrieben werden, andererseits über Stoßkaskaden aus der Saphirschicht in den FeAl Film gelangen. Beide Prozesse führen zu einer Anreicherung von Sauerstoff in dem FeAl Film mit steigender Fluenz. Unter der Annahme, dass Sauerstoff in der FeAl Schicht defektstabilisierend wirkt [111], gelangt man zu folgendem Modell: Bei kleinen Fluenzen heilt ein Großteil der durch den Ionenstrahl induzierten Defekte in dem FeAl Film auf sehr kurzer Zeitskala aus, was sich in einem nur geringen Anstieg der Magnetisierung darstellt. Mit fortschreitender Bestrahlung erhöht sich die Anzahl der defektstabilisierenden Sauerstoffatome, was bei Raumtemperatur zu einem nahezu linearen Anstieg der Magnetisierung mit der Fluenz führt. Für eine folgerichtige Interpretation obigen Verhaltens mit der letzten Annahme würde eine Bestrahlung mit Sauerstoffionen Aufschluss geben, da bei geeigneter Implantationsenergie der Sauerstoff in dem FeAl Film deponiert werden kann. Das daraus resultierende magnetische Verhalten sollte denselben Verlauf über der Fluenz aufweisen.

6.2 Koerzitivfeld von ionenbestrahlten FeAl Filmen

Unabhängig von den ermittelten Sättigungsmagnetisierungen der FeAl Filme lassen sich die Koerzitivfelder aus den Suszeptibilitätskurven direkt ablesen. Für die Bestimmung der Koerzitivfelder nach Ionenbestrahlung wird davon ausgegangen, dass das Maximum der Suszeptibilität mit dem Nulldurchgang der Hysteresekurve übereinstimmt. Diese Annahme konnte durch Messung von Hysteresekurven mittels SQUID-Magnetometrie bei ausgewählten Fluenzen bestätigt werden. In Abb. 6.6 sind die Koerzitivfelder der zuvor beschriebenen Suszeptibilitätskurven dargestellt. Zusätzlich sind die Hysteresekurven ausgewählter Fluenzen bei der Bestrahlung mit Ar⁺-Ionen als Inset eingetragen. Auffällig an den über dem Strahlenschaden aufgetragenen Koerzitivfeldern ist das Maximum des Koerzitivfeldes bei einem Strahlenschaden von 0,2 dpa, welches unabhängig von der Ionensorte auftritt. Bei höheren Fluenzen sinkt die Sättigungsmagnetisierung ab, bis sie bei etwa 0,6 dpa einen konstanten Wert annimmt.

Der Grund des ausgeprägten Maximums des Koerzitivfeldes bei 0,2 dpa liegt in einer inhomogenen Filmmagnetisierung bei Bestrahlungen mit kleinen Fluenzen. Die geschädigten Volumina verhalten sich ferromagnetisch aufgrund der statistischen Besetzung der Fe und Al Atome in der A2-Phase. Am Anfang tritt keine Kopplung zwischen den durchmischten, chemisch ungeordneten Bereichen auf. Jedes ferromagnetische Volumen spürt nur die es umgebende paramagnetische Matrix und kann deswegen als unabhängiges, magnetisches Teilchen in einer nahezu isotropen Umgebung angenommen werden. Belegt wird dies durch die bei 0,1 dpa gezeigte Hysteresekurve in Abb. 6.6. Das langsame Erreichen der Sättigungsmagnetisierung nach Durchlaufen der Remanenz weist Parallelen zu dem Hystereseverhalten von eindomänigen, magnetisch entkoppelten Teilchen auf [112].

Mit steigendem Strahlenschaden fangen die einzelnen ferromagnetischen Bereiche an zu überlappen. Dies muss nicht zwangsläufig bedeuten, das auch die strukturell gestörten Bereiche schon überlappen, da die Kopplungslänge der ferromagnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung sehr viel größer ist als das strukturell geschädigte Volumen. Bei fortlaufender Bestrahlung überlagern sich die ferromagnetischen Bereiche in der Filmebene, weswegen eine Formanisotropie auftritt, welche die Magnetisierung in die Filmebene zwingt [113]. Eine kristalline Anisotropie sollte einerseits aufgrund der statistischen Anordnung der Fe Atome im bcc-Gitter, andererseits wegen der großen Zahl ionenstrahlinduzierter Gitter-



Abbildung 6.6: Koerzitivfeld ionenbestrahlter $Fe_{52}Al_{48}$ Filme als Funktion des Strahlenschadens in dpa. Die Hysteresekurven bei ausgewählten Fluenzen zeigen die Übereinstmmung zwischen maximaler Suszeptibilität und dem Nulldurchgang der Hysteresekurven.

defekte klein sein. Interessant ist nun genau der Punkt, ab dem die magnetischen Volumina anfangen wechselzuwirken und sich aufgrund der Formanistropie die leichte Achse der Magnetisierung entlang des FeAl Films einstellt. Im Experiment sollte dies Auswirkungen auf die Magnetisierungskomponenten parallel und senkrecht zur Filmoberfläche haben.

Dafür wurde ein weiterer Fe₄₈Al₅₂ Film mit einer Dicke von d = 32 nm präpariert und anschließend bei 500°C für 1 Stunde getempert. Das magnetische Moment wurde nach jedem Bestrahlungsschritt in der Filmebene und senkrecht dazu mittels SQUID-Magnetometrie bestimmt. Die gewonnen Hysteresekurven sind in der Abb. 6.7 gezeigt. Die Bestrahlung des Films erfolgte mit 350 keV Ar⁺-Ionen mit den Fluenzen $\phi_1 = 1 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm², $\phi_2 = 2 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² und $\phi_3 = 1 \cdot 10^{15}$ Ionen/cm² bei Raumtemperatur. Für die Auswertung wurde die Hälfte des Hubs der Hysterese herangezogen, welcher in der Filmebene äquivalent der Sättigungsmagnetisierung ist. In der schweren Achse der Magnetisierung senkrecht zur Filmebene ist der Hub der Hysterese wesentlich geringer aufgrund der oben beschriebenen Formanisotropie. Anhand von Abb. 6.7 erkennt man eine Restmagnetisierung in der Filmebene von $M = 0,017 \mu_B/f.u.$ bei H = 0 Oe. Entsprechend hartmagnetisch verhält sich die Magnetisierung des Films nach der Präparation in der Senkrechten


Abbildung 6.7: Hystereseverhalten eines $Fe_{48}Al_{52}$ Films gemessen mit SQUID Magnetometrie in der Filmnebene (links) und senkrecht dazu (rechts).

zur Filmoberfläche, wobei der Hub der Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche um einen Faktor 2,5 geringer ist als parallel zu ihr. Der FeAl Film zeigt nach der thermischen Behandlung ein remanentes Verhalten, was auf nicht vollständig chemisch geordnete Bereiche zurückgeführt werden kann.

Wie zu erwarten steigt nach der Argonbestrahlung mit einem äquivalenten Strahlenschaden von 0,1 dpa der Hub der Hysterese in beiden Orientierungen an (vgl. Abb. 6.8). Die Sättigungsmagnetisierung in der Ebene ist etwa einen Faktor 13 größer als die erreichte Magnetisierung senkrecht zur Filmebene. Dies kann einerseits mit der anfänglichen Restmagnetisierung, andererseits mit der zufälligen Erzeugung des Strahlenschadens in dem FeAl Film begründet werden. Mit fortschreitender Bestrahlung wächst die Magnetisierung in der Filmebene monoton an, wohingegen die Magnetisierung senkrecht dazu ein Maximum bei 0,2 dpa durchläuft. Das ist genau dann der Fall, wenn die ferromagnetischen Bereiche noch nicht überlappen, zwischen den ferromagnetischen Volumina aber bereits eine Dipol-Dipol-Wechselwirkung einsetzt. Wegen der noch schwach ausgeprägten Formanisotropie ergibt sich daher für eine Änderung der Magnetisierungsrichtung entlang der Filmebene ein größeres Koerzitivfeld, welches in Abb. 6.6 dem bei einem Strahlenschaden von 0,2 dpa auftretenden Maximum zugeordnet werden kann. Durch weitere Bestrahlung wachsen die ferromagnetischen Volumina an, bis der gesamte Film homogen strukturell geschädigt ist.

In Abb. 6.9 ist obige Interpretation der Messdaten grafisch dargestellt. Zunächst liegt der paramagnetische FeAl Film in der B2-Phase auf einem perfekt geordneten Saphirkristall (Abb. 6.9 a). Nach Bestrahlung mit kleinen Fluenzen bilden sich, je nach verwendetem Projektil, verschieden große Bereiche, deren Kristallstruktur respektive chemische Ordnung gestört ist. In Abb. 6.9 b) ist dies durch die schattierten Bereiche dargestellt. Zusätzlich schematisch dargestellt ist der Bereich starker Dipol-Dipol-Wechselwirkung mit einer ge-



Abbildung 6.8: Hub der Hysteresekurve eines $Fe_{48}Al_{52}$ Films in der Filmebene (oben) und senkrecht dazu (unten) als Funktion der Fluenz.



Abbildung 6.9: Schematische Darstellung des Phasenübergangs von para- nach ferromagnetisch: Die dunklen Bereiche sind durch den Ionenstrahl gestört. Die Linie um die gestörten Bereiche markiert die Reichweite der magnetischen Dipol-Dipol-Kopplung.

strichelten Linie um die ferromagnetischen Volumina. Bei Bestrahlung oberhalb von 0,2 dpa überlappen diese Bereiche und der Film zeigt ein formanisotropes Magnetisierungsverhalten eines kontinuierlichen ferromagnetischen Films (Abb. 6.9 c). Dabei wird der komplette Film strukturell gestört, wobei der Hysteresehub in der Filmsenkrechten abnimmt, was der wachsenden Formanisotropie und der damit verbundenen harten Richtung zuzuschreiben ist (Abb. 6.9 d).

6.3 Reversible Prozessführung

Insbesondere für Anwedungen ist eine reversible Prozessführung bezüglich des Phasenübergangs von para- nach ferromagnetisch und umgekehrt zu fordern. Da der Phasenübergang lediglich auf der atomaren Umbesetzung der Atome bezüglich ihrer Position in der Gitterstruktur beruht, sollte eine Umkehrung des Übergangs von Unordnung zu Ordnung durch Tempern möglich sein. Dies konnte in den hier beschriebenen Experimenten bestätigt werden.

Ein FeAl Film wird nach jedem Prozessschritt auf seine Magnetisierung mittels SQUID-Magnetometrie untersucht. Die zunächst jungfräuliche Probe nach der Filmdeposition bei Raumtemperatur auf (11 $\overline{2}$ 0) geschnittenem Saphir (Fe₅₂Al₄₈; Filmdicke 65 nm) weist eine Sättigungsmagnetisierung von 0, 36 μ_B auf (siehe Abb. 6.10, schwarze Quadrate). Nach einem ersten Temperschritt bei 480°C für eine Stunde ordnet sich der FeAl chemisch und verliert dabei sein ferromagnetisches Verhalten. Dies ist in Abb. 6.10 anhand der roten Kreise zu erkennen. Nach Bestrahlung mit 5,5 · 10¹⁵ Kr⁺/cm² bei 350 keV wird die che-



Abbildung 6.10: Hysteresekurve aufgenommen mit SQUID Magnetometrie nach der Filmdeposition (schwarz), nach dem ersten Tempern (rot), nach der Bestrahlung mit $5, 5 \cdot 10^{15} \text{ Kr}^+$ bei 350 keV (grün) und nach dem zweiten Tempergang (blau). Die eingezeichneten Pfeile geben die chronologische Reihenfolge der Präparationsschritte wieder.

mische Ordnung zerstört und es bildet sich wieder eine makroskopische Magnetisierung aus. Aufgrund von Ionenstrahlmischen des FeAl Films mit dem Substrat, sowie teilweiser Oxidation an der Oberfläche des FeAl Films, erreicht der Film nach Bestrahlung nicht mehr die Sättigungsmagnetisierung direkt nach der Präparation. Sie beträgt lediglich noch $0,28\mu_B/f.u.$, wobei die Hysteresekurve an Squareness gewonnen hat. Mit einem weiteren Temperschritt kann der FeAl Film wieder in seine paramagnetische Phase überführt werden. Dafür wurde er analog dem ersten Heizschritt bei 480°C für eine Stunde unter UHV getempert (blaue Kurve). Durch erneutes Einstellen der paramagnetischen Phase lässt sich eine reversible Sequenz bezüglich der Magnetisierung konstatieren, trotz der chemischen Oxidation der Oberfläche und des ionenstrahlgemischten Grenzbereichs zwischen FeAl Film und Saphirsubstrat.

Die Röntgenstrukturanalyse gibt Aufschluss über die Gitterkonstante und die Kristallitgröße bei den verschiedenen Präparationsschritten. In Abb. 6.11 sind die $2\Theta - \Theta - D$ iffraktogramme der untersuchten Probe dargestellt. Unmittelbar nach der Filmpräparation konnte



Abbildung 6.11: Röntgenstrukturanalyse eines FeAl Films nach verschiedenen Präparationsschritten. Die mit Stern (*) gekennzeichneten Reflexe sind dem $(11\overline{2}0)$ geschnittenen Saphir zuzuordnen. Nach der Filmdeposition konnte kein FeAl Reflex detektiert werden, weswegen dieses Diffraktogramm nicht in dem Diagramm eingetragen ist. Nach dem ersten Tempern (rot) und dem zweiten Tempern (blau) ist der FeAl Film paramagnetisch, nach der Bestrahlung (grün) verhält er sich ferromagnetisch.

kein FeAl Reflex beobachtet werden, weswegen dieses Diffraktogramm nicht abgebildet ist (vgl. Kap. 5.2). Die Ergebnisse der Analyse der Röntgenstrukturdaten sind in Tabelle 6.3 aufgelistet.

Nach dem Tempern der Probe bei 480°C für eine Stunde stellt sich eine kristalline, epi-

	1. Tempern	Bestrahlung	2. Tempern	
	$480^{\circ}C$ 1h	$350 \text{ keV Kr}^+ 5, 5 \cdot 10^{14} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2}$	$480^{\circ}C$ 1h	
2Θ	$44,23(13)^{\circ}$	43,84(93)°	$44,33(68)^{\circ}$	
Gitterkonstante	0,289(36)	0,291(75)	0,288(70)	
[nm]				
Abweichung zum	0,99937	1,00765	0,99712	
Volumenwert				
FWHM	$0,27(6)^{\circ}$	$0,33(8)^{\circ}$	$0,26(6)^{\circ}$	
Korngröße [nm]	42,0	32,2	43,5	

Tabelle 6.3: Ergebnisse der Röntgenstruktur
analyse eines gezykelten Fe $_{52}Al_{48}$ Films mit einer Dicke von
 $d=65\,{\rm nm}$

taktische FeAl Schicht auf dem Saphir ein. Die Gitterkonstante des geheizten FeAl Films liegt sehr nahe am FeAl Volumenwert ($d_{\text{FeAl}} = 0, 28953 \text{ nm}$). Die geringe Abweichung von 0,07% kann dabei auf vom Substrat verursachte Verspannungen zurückgeführt werden. Die Korngröße des Films beträgt nach Berechnung mit der Scherrerformel 42 nm. Nach der Bestrahlung vergrößert sich die Gitterkonstante von FeAl um 0,8% gegenüber dem unbestrahlten Film, was aus den durch die Ionenbestrahlung induzierten Defekten resultiert. Die atomare Struktur wie auch die epitaktische Beziehung bleibt bei der Bestrahlung mit Kryptonionen bei 310 K erhalten. Simultan sinkt dabei die Korngröße auf etwa 32 nm. Mit dem zweiten Temperschritt erreicht man ein Ausheilen der Gitterdefekte und die Gitterkonstante sinkt nahezu auf ihren ursprünglichen Wert. Dabei tritt der (110) FeAl Reflex noch ausgeprägter auf als nach dem ersten Temperschritt. Dies könnte ein Hinweis sein, dass mit der Ionenbestrahlung die nach dem ersten Temperschritt verbleibenden Defekte zerstört wurden und mit dem zweiten Anlassen des FeAl Films größere homogene Bereiche geformt werden können. Diese Annahme steht auch in Übereinstimmung mit der wachsenden Korngröße im Vergleich zu dem ersten Heizschritt.

Die anfangs geforderte reversible Prozessführung kann mit Ausnahme des verminderten magnetischen Moments nach der Bestrahlung gewährleistet werden. Es ist möglich, den ursprünglich ferromagnetischen FeAl Film in seine paramagnetische Phase zu überführen und durch anschließende Ionenbestrahlung die Eisenatome im Film wieder ferromagnetisch zu koppeln. Durch wiederholtes Tempern stellt sich erneut die paramagnetische Phase im FeAl Film ein.

6.4 Magnetische Relaxation von bestrahlten FeAl Filmen

Für die Gewährleistung einer dauerhaften absoluten Magnetisierung respektive Orientierung der Magnetisierung sollte der strukturell gestörte FeAl Film einen bei Raumtemperatur stabilen Zustand eingenommen haben. Nach der Bestrahlung wurden die Suszeptibilitätsmessungen ohne Verzögerung durchgeführt. Es hat sich gezeigt, dass bei Raumtemperatur die Suszeptibilitätskurven im Laufe der Zeit ihre Form ändern. Nach der Bestrahlung mit 350 keV Krypton mit einer Fluenz von 4, 0.10^{14} Ionen/cm² wurden über einen Zeitraum von mehreren Stunden Suszeptibilitätskurven eines Fe₅₂Al₄₈Films aufgenommen. Mit fortlaufender Zeit nimmt dabei sowohl die maximale Suszeptibilität als auch die Fläche unter der Kurve ab (vgl. Abb. 6.12 oben).

Nach zwei Wochen wurde die Probe erneut mit weiteren $1, 5 \cdot 10^{14} \,\mathrm{Kr^+/cm^2}$ bestrahlt, wobei selbiges Verhalten beobachtet werden konnte. Da die Probe unter Vakuum gehalten wurde, ist eine chemische Änderung des Films und seines magnetischen Verhaltens auszuschließen. Insofern liegt der Schluss nahe, dass in dem bestrahlten FeAl Film bereits bei $T = 310 \,\mathrm{K}$ strukturelle Relaxationsprozesse auftreten, die die Suszeptibilität, wie auch die Sättigungsmagnetisierung vermindern. Anhand Abb. 6.12 b) unten ist ersichtlich, dass sich während des Relaxationvorgangs das Koerzitivfeld nicht ändert ($\Delta H_C < 1 \,\mathrm{Oe}$). Dem gegenüber steht eine dramatische Abnahme der Suszeptibilität und der Sättigungsmagnetisierung. Die quantitative Auswertung der Suszeptibilitätskurven ist in Abb. 6.13 a) gezeigt. Anhand der in Kapitel 4.4.1 vorgestellten Integration lassen sich die relativen Sättigungsmagnetisierungen aus den Flächen der Suszeptibilitätskurven bestimmen. Durch die Absolutwertbestimmung anhand des letzten Messpunktes der Messreihen in Abb. 6.13 a) mittels SQUID Magnetometrie lässt sich die Magnetisierungskurve in Abb. 6.13 b) kalibrieren.

Aufgetragen über der Zeit sinkt die maximale Suszeptibilität in beiden Fällen nach etwa 170 Stunden bei der Bestrahlung mit $4, 0 \cdot 10^{14}$ Kr⁺ Ionen/cm², respektive 250 Stunden bei der Bestrahlung mit $5, 5 \cdot 10^{14}$ Kr⁺ Ionen/cm² auf die Hälfte ihre Startwertes. Eine Kurvenanpassung mit einem rein exponentiellen Abfall beschreibt den Kurvenverlauf nicht, vor allem bei kurzen Zeiten. Daher wurde für die Kurvenanpassung ein gestreckter exponentieller Verlauf in der Zeit angenommen [62–64]. Sowohl für die Suszeptibilität, als auch die Magnetisierung kann das gleiche exponentielle Verhalten angepasst werden:

$$\chi(t) = \chi_0 + \Delta \chi \cdot \exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^{\beta}\right]$$
(6.1)

bzw.

$$M(t) = M_0 + \Delta M \cdot \exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^{\beta}\right]$$
(6.2)

Während der Messung der einzelnen Messpunkte konnte allerdings keine merkliche Relaxation festgestellt werden, was in Einklang mit der großen zeitlichen Konstante ($t_0 = 70$ h)



Abbildung 6.12: a) Änderung der Suszeptibilitätskurven nach Bestrahlung mit 350 keV Kr⁺ mit einer Fluenz von $5, 5 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² bei T = 310 K. Die Messungen sind zeitlich von oben nach unten aufgetragen. In dem eingefügten Graphen ist nur der rechte Ast der Suszeptibilität aufgetragen. b) Die Position des Maximums der Suszeptibilität beschreibt das Koerzitivfeld der Hysteresekurve und bleibt während der Relaxation konstant. Das Koerzitivfeld ist über der Relaxationszeit aufgetragen im Maßstab des bei der Bestrahlung (vgl. Abb. 6.6) durchlaufenen Bereiches.

steht. Diese Zeitkonstante wird einerseits bei der Kurvenanpassung der Suszeptibilität, andererseits bei der Kurvenanpassung der Magnetisierung verwendet und beschreibt in beiden Fällen sehr gut das Abklingverhalten der Suszeptibilität χ wie auch das Abklingverhalten



Abbildung 6.13: a) Abnahme der maximalen Suszeptibilität bei einer Fluenz von $4, 0 \cdot 10^{14}$ und $5, 5 \cdot 10^{14}$ Kr⁺ Ionen/cm² bei T = 310 K. b) Abnahme der kalibrierten Magnetisierung gewonnen aus den Suszeptibilitätskurven nach Integration. Die universellen Parameter beider Kurvenanpassungen sind $t_0 = 70$ h und $\beta = 0, 66$.

der Magnetisierung M. Ebenso bleibt der Streckungsfaktor β in beiden Kurvenanpassungen derselbe mit $\beta = 0, 66$.

Die Relaxation des bestrahlten FeAl Films ist mit über 50% Verlust der relativen Magnetisierung ein stark ausgeprägter Effekt. Dieses Verhalten ist insofern ungewöhnlich, als dass der energetisch günstigste Zustand der Kristallstruktur in diesem Fall paramagnetisch ist und die Relaxation mit einer sehr großen Zeitkonstante bei Raumtemperatur auftritt. Bisher konnte solch eine Änderung des magnetischen Verhaltens bei Raumtemperatur nicht nachgewiesen werden. Nach der Fachliteratur konnten magnetische Relaxationen bis dato nur in Systemen beobachtet werden, die ebenfalls eine amorphe Phase besitzen, im geordneten Zustand jedoch ferromagnetisch sind. Dazu zählen unter anderem die Legierungen $Fe_{80}B_{20}$, $Co_{43}Fe_5Ni_{30}Si_{8,8}B_{13,2}$ und $Fe_{40}Ni_{40}P_{14}B_6$ [114, 115]. Eine magnetische Relaxation bei T = 310 K mit ähnlich großer Zeitkonstante konnte bisher nur in dem Materialsystem Fe_xBi_{1-x} gefunden werden, wobei hier die Magnetisierung mit fortlaufender Zeit zunimmt [116]. Außerdem ist der Effekt mit etwa 5% hier wesentlich geringer ausgeprägt als in dem Materialsystem FeAl.

Durch das Ergebnis, dass das System FeAl zwar durch Ionenbestrahlung in den ferromagnetischen Zustand überführt werden kann, sich aber Relaxationseffekte schon bei Raumtemperatur einstellen, sind Messungen bei verschiedenen Temperaturen zur Bestimmung der Defekttypen notwendig, um genauer die Spezies der ausheilenden Defekte zu charakterisieren. Daneben bieten Widerstandsmessungen eine hervorragende Alternative zur Bestimmung der Ausheilstufen [53, 56, 117–119], ebenso wie kalorimetrische Messungen. Zudem bleibt zu erforschen, wie sich solche Relaxationsprozesse vermeiden lassen, da im Hinblick auf mögliche Applikationen der Wert der Magnetisierung zeitlich konstant sein sollte. Eventuell lässt sich über Implantation von Fremdatomen die Diffusionsgeschwindigkeit in dem geschädigten Material so stark herabsetzen, dass das Ausheilen der Defekte auf sehr viel größeren Zeitskalen stattfindet oder sogar gänzlich unterdrückt wird [120]. 6.4 Magnetische Relaxation von bestrahlten FeAl Filmen

Kapitel 7

Nanostrukturierte magnetische FeAl Filme nach Ionenbestrahlung

Im Hinblick auf Speichermedien bieten FeAl Filme die Möglichkeit eines magnetisch arbeitenden Massenspeichers. Vorteilhaft ist hier die flache Oberfläche nach Herstellung der Filme wie beschrieben in Kapitel 3.2. In der Grundidee soll dabei die Speicherdichte erhöht werden durch Einbetten ferromagnetischer Volumina in eine paramagnetische Matrix. Dies wurde bereits in größerem Maßstab durch Ionenbestrahlung mit einer Focused Ion Beam Anlage (FIB) erreicht [105]. In einer paramagnetischen FeAl Folie wurden Kreise und Rechtecke mit 30 keV Ga⁺ und Xe⁺ Ionen bestrahlt und anschließend mit magnetischer Kraftmikroskopie (MFM) vermessen worden. Die kleinsten Abmessungen, die dabei geschrieben werden konnten, liegen im Bereich von 100 nm.

Nachteilig bei dieser Prozedur ist die serielle Herstellungstechnik der ferromagnetischen Bereiche in der FeAl Folie. Da die Ionenstrahltechnik, wie in Kapitel 3.3.2 vorgestellt, eine flächige Bestrahlung zulässt, könnte bei geeigneter Maskenwahl die serielle in eine parallele Verarbeitung überführt werden. Der Kontrast zwischen ferromagnetischem und paramagnetischen Material wird dabei durch eine Abschattung bestimmter Bereiche vor dem Ionenstrahl erreicht. Somit werden an die Maske hohe Anforderungen gestellt: Einerseits muss die Maske so dick sein, dass die einfliegenden Ionen sie nicht durchdringen können, andererseits soll sie eine großflächige geordnete Porenstruktur bzw. Antidotstruktur aufweisen, um den dahinter liegenden FeAl Film in die ferromagnetische A2-Phase zu überführen.

Ein Ansatz für die Präparation einer solchen Maske mit Polystyrolkolloiden (PS-Kolloide) wird im nachfolgenden Kapitel vorgestellt. Durch Simulation der Bestrahlung mit den Daten der erstellten Maske mittels SRIM lassen sich die Bestrahlungsparameter ermitteln. Die Änderung des magnetischen Kontrastes aufgrund der Bestrahlung wurde mit SQUID Magnetometrie vermessen.

7.1 Maskenpräparation auf den FeAl Filmen mittels unkonventioneller Lithographie

Die Erfahrung auf dem Gebiet der kolloidalen und mizellaren Präparation monolagiger Filme am Institut für Festkörperphysik lässt es zu, eine nanostrukturierte Maske auf einen paramagnetischen FeAl Film aufzubringen. Diese soll während der Bestrahlung die Bereiche schützen, die nicht in die ferromagnetische A2-Phase überführt werden sollen. Die einzelnen Arbeitsschritte für die Herstellung der Maske werden im Folgenden kurz erläutert:

1. Herstellung des FeAl Films

Als Basismaterial dient ein FeAl Film, der mittels PLD auf ein (0001) geschnittenes Saphirsubstrat aufgebracht wurde. Die Deposition des Metallfilms erfolgt bei Raumtemperatur zur Bewahrung der glatten Oberfläche. Anschließend wird die Probe bei 500°C für eine Stunde getempert um den chemischen Ordnungsprozess zu induzieren. Das Röntgendiffraktogramm in Abb. 7.1 bestätigt das epitaktische Wachstum des FeAl Films.



Abbildung 7.1: Röntgendiffraktogramm des getemperten Fe
Al Films. Die mit * versehenen Reflexe sind dem
 $(000\,1)$ Saphir
substrat zuzuordnen.

2. Aufbringen und Ätzen der PS-Kolloide

In dem zweiten Schritt soll eine Monolage von PS-Kolloiden mit einem Durchmesser von 100 nm aufgebracht werden. Für eine homogene Bedeckung ist der Herstellungsprozess bisher auf Silizium optimiert worden, da Silizium die für die Ausbildung der langreichweitigen Ordnung notwendige negative Oberflächenladung in wässriger Lösung bietet. Da bei der direkten Deposition der PS-Teilchen auf den FeAl Filmen keine Monolage ausreichender Qualität erzielt werden konnte, wurden 2 nm Silizium durch thermisches Verdampfen auf dem FeAl Film deponiert. Anschließend wurde die Silizium Oberfläche mit einem O₂-Plasma aktiviert, was aufgrund der hydrophileren Oberfläche zu einem besseren Benetzungsverhalten des Kolloidlösungsmittels führt. Die Deposition der Kolloide erfolgte durch Stefan Wiedemann mittels Auftropfen der Kolloidlösung [121, 122]. Da die Kolloide sich bei perfekter hexagonaler Ausrichtung berühren, ergäbe sich bei thermischen Bedampfen durch die Abschattung der Kolloide unter ihnen ein Fischerpattern, welches nach Abtrag der Kolloide zu wenig Maskenmaterial aufweist für einen ausreichenden Schutz des FeAl Films bei Ionenbestrahlung. Deswegen wurden die Kolloide mit einem reaktiven Ionenätzschritt (RIE) auf die Hälfte ihres Durchmessers verkleinert unter Beibehaltung ihrer Position [123]. Eine REM Aufnahme dieses Arbeitsschrittes ist in Abb. 7.2 a) gezeigt.



Abbildung 7.2: REM Aufnahmen der einzelnen Herstellungsschritte eines nanostrukturierten FeAl Films: a) Aufbringen und Ätzen der Kolloide unter Beibehaltung der Position (Probe um 30° gekippt) auf einer 2 nm dicken Si Schicht; b) Thermisches Aufdampfen von 25 nm Si; c) Entfernen der Kolloide durch chemomechanisches Polieren; d) Ionenbestrahlung der Probe mit 3 keV Ar⁺ Ionen; e) Glätten der Probe durch nasschemisches Ätzen der Si Maske. Die Breite aller REM Aufnahmen beträgt 1 μ m.

3. Aufdampfen des Maskenmaterials und Abnehmen der Kolloide

Über die geordnete hexagonale Anordnung aus Kolloiden auf der Siliziumschicht kann nun eine weitere Schicht Silizium aufgedampft werden (vgl. Abb. 7.2 b). Diese sollte in jedem Fall dünner sein als der halbe Durchmesser der Kolloide, da sonst die Gefahr besteht, dass die Siliziumschicht nach der Deposition die Kolloide bedeckt und diese sich nicht mehr ablösen lassen. Aufgrund der starken Haftung der Kolloide auf dem Si Film reicht es nicht, die Probe in Aceton zu legen und mit Ultraschall ein Auflösen der PS-Kolloide zu erzwingen. Daher wurde alternativ mit einem mit Aceton getränkten Reinraumtuch die Oberfläche unter schwachem Druck manuell poliert. Diese chemomechanische Behandlung löst einen Großteil der Kolloide, wie in Abb. 7.2 c) zu sehen ist.

4. Ionenbestrahlung des strukturierten FeAl Films

Für eine erfolgreiche Bestrahlung der freiliegenden Bereiche mit Argonionen wurde mit dem Simulationsprogramm SRIM zunächst eine Simulation zur Abschätzung der optimalen Ionenenergie und des resultierenden Strahlenschadens durchgeführt. Es stellt sich heraus, dass der Ionenbeschleuniger am Institut für Festkörperphysik mit seiner minimalen Beschleunigungsspannung von 50 keV für diese Bestrahlung ungeeignet ist aufgrund der langen Reichweite der Ionen im Vergleich zur Maskendicke. Deswegen kam eine niederenergetische Penningquelle zum Einsatz. Mit ihr können Edelgasionen auf kinetische Energien zwischen 600 eV und 6 keV beschleunigt werden, wobei die größtmögliche homogen bestrahlte Fläche bei einer Energie von 3 keV erzielt wird. Die Simulation des zu erwartenden Schadensprofils und die Eindringtiefe der Argonionen bei einer Beschleunigungsspannung von 3 keV sind in Abb. 7.3 dargestellt.



Abbildung 7.3: SRIM Simulationsdaten von 3 keV Ar⁺ Ionen zur Bestrahlung eines FeAl Films mit a) und ohne b),c) Si Maske. In a) und b) sind die Ionenprofile im Schnitt gezeigt. In c) ist der Strahlenschaden des FeAl Films als Funktion der Schichttiefe dargestellt.

Anhand von Abb. 7.3 a) kann vorhergesagt werden, dass bei Ionenbestrahlung unter senkrechtem Einfall mit 3 keV Ar⁺ die Siliziummaske nicht durchdrungen wird. Im Gegensatz dazu bildet sich bei der Bestrahlung der Freiflächen der maximale Schaden im FeAl Film in einer Tiefe von 10 nm aus. Die laterale Strahlaufweitung ist mit $< \pm 10$ nm kleiner als der Abstand zwischen zwei benachbarten Lochrändern. Bei einem Ionenfluss von 4, 4·10¹² Ar⁺/s benötigt man für den Strahlenschaden von einem dpa eine Bestrahlungsdauer von etwa einer Minute. Mit diesen Parametern wurde die Bestrahlung bei Raumtemperatur durchgeführt. Aufgrund der kurzen Bestrahlungsdauer konnte keine Oberflächenmodifikation durch Sputtern des Siliziums festgestellt werden. Dies ist ersichtlich in Abb. 7.2 d). Allerdings lösen sich mit diesem Schritt die vorher noch verbliebenen Reste der Kolloide. Insofern wird die Oberfläche durch die Ionenbestrahlung insbesondere von den Kohlenstoffmolekülen der Kolloide gereinigt.

5. Abnehmen der Siliziumdeckschicht

Im Hinblick auf heutige magnetische Speichermedien ist eine glatte Oberfläche obligatorisch, da sich der Lese- und Schreibkopf einer modernen Festplatte in einem Abstand von 10 nm bis 20 nm oberhalb der Magnetscheibe befindet [124]. Die plane Oberfläche des FeAl Films kann durch einen nachträglichen Silizium Nassätzschritt mit 30%-iger KOH-Lösung erreicht werden. Das Ergebnis ist in Abb. 7.2 e) dargestellt. Der sehr hohe Kontrast zwischen bestrahlter und unbestrahlter Fläche in Abb. 7.2 e) ist vermutlich auf einen Materialkontrast aufgrund des nicht vollständig abgelösten Siliziumfilms zurückzuführen. Weiter ist anzumerken, dass die FeAl Schicht nicht von der KOH-Lösung angegriffen wurde. Hier ist die chemische Beständigkeit des FeAl Films von entscheidender Bedeutung (siehe Kap. 1).

7.2 Einfluss der Ionenbestrahlung auf die Magnetisierbarkeit

Die Magnetisierbarkeit des durch die Siliziummaske bestrahlten FeAl Films wurde mit der des unbestrahlten FeAl Films verglichen. Dabei zeigt sich eine eindeutige, auf die Ionenbestrahlung zurückzuführende Änderung der ferromagnetischen Komponenten des FeAl Films. Dies konnte mittels SQUID Magnetometriemessungen mit dem Erregerfeld parallel und senkrecht bezüglich der Probenoberfläche beobachtet werden, wie in den Diagrammen in Abb. 7.4 dargestellt.



Abbildung 7.4: SQUID Magnetometriemessung des nanostrukturierten FeAl Film entlang des FeAl Films (links) und senkrecht zur Oberfläche (rechts) vor und nach der Bestrahlung mit $2, 6 \cdot 10^{14} \,\mathrm{Ar^+/cm^2}$ bei $3 \,\mathrm{keV}$.

Aufgrund der nicht vollständigen Phasentransformation in den paramagnetischen Zustand weist die Probe bereits unbestrahlt ein ferromagnetisches Sättigungsmoment von $0, 48 \mu_B/f.u.$

bei H = 0 Oe auf (vgl. Abb. 7.4 links). In der Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Probenoberfläche äußert sich dieses ferromagnetische Sättigungsmoment in einer äußert hartmagnetischen Hysteresekurve mit einem Hub von $0,050 \,\mu_B/f.u.$ bei H = 0 Oe (vgl. Abb. 7.4 rechts). Nach der Bestrahlung mit 3 keV Ar⁺ bei einer Fluenz von 2, $6 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² erhöht sich die Sättigungsmagnetisierung in der Filmebene um 20% auf $0,58 \,\mu_B/f.u.$ Dramatischer ändert sich dagegen der Hub der Hysteresekurve der Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Oberfläche. Der Hub vergrößert sich auf $0, 26 \,\mu_B/f.u.$, was auf die lokal eingebrachte statistische Besetzung der Fe und Al Gitterpunkte zurückgeführt werden kann.

Dieses Ergebnis steht in Koinzidenz mit den Resultaten aus Kapitel 6.2. Insbesondere die Erklärung des wachsenden Koerzitivfeldes bei noch nicht untereinander wechselwirkenden ferromagnetischen Bereichen kann hier nochmals nachvollzogen werden. Durch die räumlich getrennten gestörten Kristallstrukturen findet keine Kopplung der ferromagnetischen Volumina untereinander statt. Damit einher geht ein Koerzitivfeld von $H_C = 100$ Oe senkrecht zur Probenoberfläche.

Durch die hier dargestellten Messungen wurde gezeigt, dass die eingesetzte Technik für die Päparation eines magnetisch nanostrukturierten Filmes funktioniert. Für den endgültigen Beweis einer magnetischen Nanostruktur in dem FeAl Film steht der Nachweis noch aus. Zwar konnten mit den integrativen SQUID Magnetometriemessungen die Modifikation der durch die Ionenbestrahlung lokal veränderten Magnetisierungen an dem FeAl nachgewiesen werden, allerdings fehlt noch eine mikroskopische, magnetisch sensitive Messung. So könnte entweder durch Magnetkraftmikroskopie (MFM) oder nach entsprechender Probenpräparation durch rasternde Röntgentransmissionsmikroskopie (STXM) ein solcher Nachweis erbracht werden.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden erstmalig epitaktische FeAl Filme hergestellt. Ausgehend von den bei Raumtemperatur aufgebrachten ferromagnetischen FeAl Filmen ergaben sich unterschiedliche Ubergangstemperaturen für die Ausbildung der paramagnetischen B2-Phase bei Deposition auf unterschiedlichen Substratoberflächen des Saphirkristalls. Ferner ergibt sich ein topologischer Unterschied seitens des granularen Wachstums der FeAl Filme bei geheiztem Saphirsubstrat. Mit der Ionenbestrahlung der paramagnetischen FeAl Filme wurde die Transformation in die ferromagnetische Phase initiiert, wobei eine für alle verwendeten Ionen geltende Gesetzmäßigkeit bezüglich des Strahlenschadens und des Koerzitivfeldes festgestellt wurde. Dieses Verhalten konnte mithilfe eines entwickelten Modells heuristisch erklärt werden. Des weiteren konnte eine reversible Prozessführung hinsichtlich des Phasenübergangs von ferro- nach paramagnetische und umgekehrt nachgewiesen werden. Uberdies belegt der zeitliche Einbruch der Magnetisierung ionenbestrahlter FeAl Filme ohne äußeren Einfluss, dass strukturelle Relaxationsprozesse auftreten, die sich bei Raumtemperatur mit charakteristischen Zeiten von mehreren Tagen erstrecken. Im Hinblick auf die Anwendung des in der A2-Phase vorliegenden ferromagnetischen FeAl Films als Speichermedium konnten mittels unkonventioneller Lithographie separierte ferromagnetische Volumina in einen paramagnetischen Film durch selektive Ionenbestrahlung erzeugt werden. Der erfolgreiche Einsatz einer kolloidalen Technik zur Präparation der Bestrahlungsmaske führt dabei zu Abmessungen der bestrahlten Bereiche von unter 100 nm.

Im ersten Teil der Arbeit erfolgte die Präparation epitaktischer FeAl Filme auf den Saphiroberflächen (0001), (11 $\overline{2}$ 0) und (1 $\overline{1}$ 02). Abhängig davon, ob die Probe während oder nach der Filmdeposition angelassen wird, kann dabei die Topologie der FeAl Filme eingestellt werden. Beim Heizen während der Deposition ergeben sich kolumnare Strukturen, wohingegen die Deposition bei Raumtemperatur und dem nachfolgenden Anlassen der Proben sehr glatte Oberflächen liefert.

Anhand von Röntgendiffraktogrammen und HRTEM Aufnahmen sind sowohl die epitaktischen Beziehungen bestimmt worden, als auch atomar aufgelöst die Grenzschicht zwischen den FeAl Filmen und dem Saphirsubstrat charakterisiert worden. Dabei kann man konstatieren, dass die epitaktische Ordnung von FeAl sich bestmöglich auf $(11\overline{2}0)$ geschnittenem Saphir mit der epitaktischen Beziehung AlFe(110)[110] || Al₂O₃(1120)[0001] ausbildet. Einzigartig ist dabei, dass sich die epitaktische Ordnung bei Deposition mit geheizter Probe und bei Deposition bei Raumtemperatur mit einem anschließenden Temperschritt ausbildet. Selbiges wurde auch für das Verhalten von FeAl auf (0001) geschnittenem Saphir entdeckt, wobei hier mehrere Anordnungsmöglichkeiten der FeAl Kristallite auf der Saphiroberfläche existieren (AlFe(110)[112] || Al₂O₃(0001)[1010]. Im Falle des (1102) hingegen ist eine thermisch getriebene Festkörperepitaxie nicht beobachtet worden. In diesem Fall muss für die Präparation eines epitaktischen FeAl Films das kolumnare Wachstum aufgrund des bei der FeAl Deposition geheizten Substrats mit der epitaktischen Beziehung AlFe(001)[110] || Al₂O₃(1102)[1120] in Kauf genommen werden. Außergewöhnlich ist hier allerdings die Wachstumsrichtung entlang der (100) Ebenen von FeAl, da bei den vorher beschriebenen Substraten in beiden Fällen der FeAl Film entlang der (110) Ebenen gewachsen ist.

Für die Charakterisierung der chemischen Ordnung der epitaktisch gewachsenen FeAl Filme ergaben SQUID Magnetometriemessungen ein unterschiedliches Kristallisationsverhalten der FeAl Filme nach Deposition auf verschiedenen Saphiroberflächen. Nach Vergleich der Filmmagnetisierungen auf den oben angegebenen Saphiroberflächen stellt sich die chemische Ordnung auf den Oberflächenschnitten entlang der Al₂O₃ (000 1) und (11 $\overline{2}$ 0) bei niedrigeren Temperaturen ein als auf (1 $\overline{10}$ 2) geschnittenen Saphir. Daraus folgt, dass die chemische Ordnung in dem FeAl Film bevorzugt auf den Substratoberflächen ausbildet, die sich für ein epitaktisches Wachstum des FeAl Films eignen. Bei dem in (1 $\overline{10}$ 2) Richtung geschnittenen Saphir setzt der Ordnungsprozess zur Ausbildung der paramagnetischen Phase erst später ein. Aufgrund der durch das Substrat vorgegebenen ungünstigen Oberflächenstruktur kann auf eine Hemmung des Kornwachstums geschlossen werden. Gleichwohl können die FeAl Filme, deponiert auf allen betrachteten Saphirschnittrichtungen mit der entsprechenden Präparationsmethode, in die paramagnetische und damit chemisch geordnete Phase überführt werden.

Unter Ionenbestrahlung lassen sich die paramagnetische FeAl Filme in ihre ferromagnetische Phase überführen. Der Grad der Unordnung und die damit einhergehende ferromagnetische Phase werden mit einem in Ulm entwickelten AC-Suszeptometer *in-situ* gemessen. Mit diesem wird die Suszeptibilität entlang der Hysteresekurve bestimmt, woraus sich nach Integration ein Maß für den Hub der Hysteresekurve ergibt. Die Auswertung des magnetischen Verhaltens bei Bestrahlung der FeAl Filme mit verschiedenen Ionensorten der Edelgasreihe weist eine auf die Ionensorte skalierbare Gemeinsamkeit der Magnetisierung und des Koerzitivfeldes auf. Entgegen dem bisher bekannten Verlauf der Magnetisierung an Vollmaterial über der Ionenfluenz zeigt sich hier kein Sättigungsverhalten bei den verwendeten Fluenzen. Einen Fingerzeig für die Interpretation liefern RBS Daten, die die Hypothese eines durch Sauerstoff am Relaxieren verhinderten FeAl Films untermauern.

Die Auswertung der Koerzitivfelder anhand der Suszeptibilitätskurven weist ein Maximum bei einem Strahlenschaden von 0,2 dpa auf, welches unabhängig von der Ionensorte (Ne⁺, Ar⁺, Kr⁺) nach Skalierung auf den Strahlenschaden an dieser Stelle auftritt. Während bei kleinen Strahlenschaden (<0,2 dpa) die durch die Bestrahlung induzierten ferromagnetischen Volumina noch räumlich separiert sind, tritt bei 0,2 dpa eine Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Bereiche untereinander auf, die zu einem erhöhten Koerzitivfeld führt. Bei weiterer Bestrahlung wird die Magnetisierungsrichtung aufgrund der sich ausbildenden Formanisotropie in die Filmebene gezwungen. Wegen der nun statistisch gleichverteilten Gitterdefekte zeigt der FeAl Film ein formanisotropes Magnetisierungsverhalten eines kontinuierlichen ferromagnetischen Films.

Im Hinblick auf eine reversible Prozessführung bezüglich des Phasenübergangs von paranach ferromagnetisch und umgekehrt konnte mittels SQUID-Magnetometrie und Röntgendiffraktometrie ein wiederholbarer Prozess nachgewiesen werden. Durch erstmaliges Tempern kann der FeAl Film chemisch geordnet und in die paramagnetische Phase überführt werden. Die mit der anschließenden Ionenbestrahlung induzierte chemische und strukturelle Unordnung ist gepaart mit dem Ausbilden ferromagnetischer Bereiche, wobei die nach der Präparation im Film vorliegende ferromagnetische Magnetisierung nicht mehr vollends erreicht wird. Durch erneutes Tempern ist es wiederum möglich, den FeAl Film wiederkehrend in die paramagnetische Phase zu transformieren unter Beibehaltung der epitaktischen Beziehung.

Von amorphen Materialien ist bekannt, dass sie nach Bestrahlung strukturell relaxieren können. Zwar ist FeAl nicht amorph im Sinne einer zerstörten Fernordnung, trotzdem lassen sich Relaxationsprozesse beobachten. Gemessen als Funktion der Suszeptibilität weisen mit Argon bestrahlte FeAl Filme eine Verminderung der Magnetisierung aufgrund von strukturellen Relaxationen bei Raumtemperatur auf. Dies ist insofern neu, als dass Relaxationsphänomene an magnetischen Materialien bisher nur an amorphen Legierungen mit einem energetisch günstigsten Zustand, der ferromagnetisch ist, gefunden wurden.

Im letzten Kapitel wurde eine Präparationsmethode zur Herstellung magnetischer Datenspeicher mit einer potentiell höheren Speicherdichte vorgestellt. Durch die parallele Bestrahlung eines paramagnetische FeAl Films durch eine nanostrukturierte Lochmaske ist es möglich, selektiv ferromagnetische Volumina in eine paramagnetische Matrix einzubetten. Anhand der SQUID Magnetometriemessungen ließ sich ein Bestrahlungseffekt des FeAl Films nachweisen.

Unter Bezugnahme auf die magnetischen Eigenschaften der FeAl Filme bleiben dennoch offene Fragestellungen, wie die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung, respektive Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen. Insbesondere der Phasenübergang von para- nach ferromagnetisch durch ionenstrahlinduzierte Gitterdefekte weist vermutlich einige Besonderheiten auf, speziell in dem Temperaturbereich um 80 K, bei dem ein miktomagnetisches Verhalten des FeAl Vollmaterials beobachtet wurde. Ebenfalls ist das Bestrahlungsverhalten bei Raumtemperatur bezüglich der Magnetisierung nicht vollständig geklärt. Auch hier sollte einerseits eine unter tiefen Temperaturen durchgeführte Bestrahlung, oder die Variation des Kompositionsverhältnisses tiefergehende Erkenntnisse liefern. Weiterhin bleibt zu klären, wie das Filmwachstum mittels thermisch getriebener Festkörperepitaxie im Detail funktioniert. Einblick könnten hier HRTEM Messungen während eines *in-situ* Heizprozesses eröffnen.

Kapitel 9

Summary

In the presented thesis epitaxial FeAl thin films on sapphire have been prepared by pulse laser deposition (PLD). The thin films deposited at room temperature exhibits ferromagnetism and subsequent annealing is necessary to transform the thin films to paramagnetic B2-phase, where the transition temperature depends on the crystalline orientation of the sapphire substrate. Alternatively, by deposition at higher substrate temperature the B2phase is obtained directly. However, morphology of the FeAl film is influenced by different growth modes resulting from different substrate temperatures. The paramagnetic FeAl films can then be transformed to ferromagnetic phase by successive ion irradiation. Independent of the ion species used for irradiation, the same universal relation between thin films' coercive fields and irradiation damage is identified. The ion irradiation ferromagnetism can be transformed back to paramagnetism by subsequent annealing. The mutual transition between ferromagnetic and paramagnetic phases has been performed several times and shows full reversibility. The ferromagnetic phase induced by Kr⁺ irradiation exhibits structural relaxation, where the saturate magnetization of FeAl thin film gradually decreases in several days. Later, ion irradiation has been performed selectively on defined areas of the thin film with the help of an unconventional lithography technique. The subsequent thin film is composed of ordered hexagonal array of ferromagnetic nano-cylinders separated by a paramagnetic matrix, suggesting a promising system for magnetic data storage. In this chapter, the main results of this thesis will be summarized.

FeAl thin films are deposited on sapphire substrates with (0001), $(11\bar{2}0)$ and $(1\bar{1}02)$ orientations by PLD. Thin films deposited at elevated substrate temperature generally show epitaxy with column-like morphology, while deposition at room temperature leads to a very smooth film with with amorphous structure. Such smooth films may be transformed to epitaxy by subsequent annealing. More specifically, the FeAl films deposited on sapphire (0001) and $(11\bar{2}0)$ substrates at room temperature are transformed to epitaxy after above $500 \,^{\circ}$ C, respectively, where their epitaxial relations are AlFe $(110)[1\bar{1}2] \parallel Al_2O_3(0001)[10\bar{1}0]$ and AlFe $(110)[1\bar{1}0] \parallel Al_2O_3(11\bar{2}0)[0001]$, respectively. These epitaxial relations are identical to those obtained by depositing at elevated substrate temperature. Such thermally driven solid phase epitaxy is not observed for FeAl films deposited on $(1\bar{1}02)$ cut sapphire, but the epitaxy is only obtained by deposition at high temperature, resulting in AlFe(001)[110] || Al₂O₃(110 $\bar{2}$)[11 $\bar{2}$ 0] relation. The difference might be due to different matching of FeAl and sapphire lattices in different orientations, and FeAl (001) on Al₂O₃(1 $\bar{1}$ 0 2) leads to relatively large lattice mismatch. Indeed, the epitaxial film obtained on (1 $\bar{1}$ 0 2) cut sapphire by high temperature deposition contains subdomains and tilted grains, as observed by HRTEM.

Different substrate orientation as well as the substrate temperature also influence the chemical order of FeAl. Generally, higher degree of chemical order is obtained with good lattice matching between FeAl and sapphire, where both lower transformation temperature to epitaxy and larger average grain size are observed. The best results is obtained for FeAl deposited on $(11\overline{2}0)$ sapphire with subsequent annealing at 500°C °C for 1 hour, where chemical order and an average grain size of 200 nm is achieved. These thin films are then mainly used for the subsequent studies in this thesis.

The paramagnetic FeAl thin films are transformed to ferromagnetic phase by successive ion irradiation. Degree of chemical order is measured indirectly from the magnetic susceptibility of the film using a self-developed ac-susceptometer, which can monitor the evolution of susceptibility during ion irradiation in-situ. Contrary to common susceptometer, the differential susceptibility is measured along the full hysteresis with maximum field of 120 Oe at room temperature. By integrating the differential susceptibility, full hysteresis loop can be restored and the signal scale can be calibrated by comparing to SQUID measurements of the identical sample. The FeAl thin films have been irradiated with different types of rare gas ions (Ne⁺, Ar⁺, Kr⁺). The relation between magnetization and irradiation damage is identical among different ion species. In contrary to common irradiation theories, where observed parameter increases according to an exponential transient function ($y = a \cdot (1 - e^{-b \cdot \phi})$), the magnetization increase linearly with irradiation damage.

The irradiation also influences coercive field of FeAl thin film. Starting from paramagnetism, the coercivity increases with more irradiation damage and reaches maximum at 0.2 dpa. Under relative low fluences, the local ferromagnetic regions that is statistically created by the ion damage are magnetic uncoupled, and during hysteresis moments in each small region switches independently, leading to relatively large coercivity. Further increasing irradiation damage, however, increase the ratio of ferromagnetic volume, leading to magneto-static and eventually exchange coupling between the ferromagnetic regions. This coupling helps to switch the moments in each region, which is observed as decreasing coercivity. At very high fluences the complete film is transformed into ferromagnetic phase with in-plane easy direction.

While the chemically ordered FeAl film can be transformed to disordered phase by ion irradiation, subsequent annealing of the disordered film will restore the chemical order, which has essentially the same crystalline structure and magnetic properties as the thin film before ion irradiation, as proven by XRD and SQUID magnetometry, respectively. As a result, the mutual transition between ferromagnetic and paramagnetic phases in FeAl is fully reversible.

The ferromagnetism in FeAl induced by ion irradiation is due to the introduction of extrinsic defects, which are thermodynamically unstable and can relax at elevated temperature. It is observed experimentally that even at room temperature, the ion irradiation induced magnetization (350 keV, Kr⁺) decays exponentially with a characteristic time constant of t = 70 hours.

In the last chapter the ion irradiation is applied to FeAl thin film selectively on defined areas. This is achieved by formation of a SiO_2 film with hexagonal array of nanometer sized holes on top of FeAl by an unconventional lithography technique. This antidot films acts as a mask for ion irradiation, where only areas of FeAl film in the holes are irradiated and transformed to ferromagnetic. The resulting film contains regular arrangement of nanometer-sized ferromagnetic volumes embedded in a paramagnetic film, suggesting a promising system for magnetic data storage. While such variation of magnetic contrast in nanometer scale has not yet been observed directly, SQUID magnetometry shows increased remanence as well as squareness of hysteresis in the out-of-plain direction after ion irradiation, which confirms the formation of such nanometer-sized magnetic structure.

Anhang A

Fehlertoleranzen

Für die Berechnung der Magnetisierungen und der zur Normierung benötigten Größen sind folgende Fehlergrenzen gegeben:

Bedeutung	Variable	Standardwert	Toleranz
Probengewicht	m_{Probe}	_	$1 \cdot 10^{-5} \mathrm{g}$
Probendicke	$d_{Al_2O_3}$	m r,a-cut~0,53mm	$\pm 25\mu{ m m}$
		$ ext{c-cut } 0,50 ext{mm}$	
Dichte Al_2O_3	$\rho_{Al_2O_3}$	$3,98{ m g/cm^3} @ 24^{\circ}{ m C}$	$0,02\mathrm{g/cm^3}$
Filmdicke	d_{Film}	_	$\pm 1\mathrm{nm}$
Gitterkonstante von FeAl	d_{FeAl}	$0,28954{ m \AA}@24^{\circ}{ m C}$	$1\cdot 10^{-5}{ m \AA}$
Magnetische Moment im SQUID	m	_	$1 \cdot 10^{-6} \mathrm{emu}$
Felderregung im SQUID	H	_	$\pm 2 \mathrm{Oe}$

Die Dichte von Korund (Al₂O₃) variiert zwischen den Herstellern. Crystec gibt $3,97 \text{ g/cm}^3$ an und bei GWI und Valley Design Corp. beträgt die Dichte $3,98 \text{ g/cm}^3$ bei 20°C respektive 24°C.

In Kapitel 4.3.1 wird angenommen, dass der Metallfilm keinen messbaren Einfluss auf die Masse der Probe hat. Es wird das Gewicht eines 50 nm dicken Films abgeschätzt:

$$m_{FeAl} = \rho_{FeAl} \cdot V_{Film} \tag{A.1}$$

$$= 5,576 \frac{g}{cm^3} \cdot 0,5 cm \cdot 1,0 cm \cdot 5 \cdot 10^{-6} cm$$
(A.2)

$$= 13,95\,\mu g$$
 (A.3)

Bei einem typischen Probengewicht von 100 mg wird die Masse um etwa $1, 4 \cdot 10^{-4}$ verfälscht, was im Hinblick auf die anderen Unsicherheiten als vernachlässigbar betrachtet werden kann. Die Unsicherheit beim Wägen beträgt 1%.

Anhang B

Kristallographie

B.1 Kristallographische Notationen

Die Schreibweisen der Richtungen und Ebenen in Kristallsystemen führt aufgrund der nicht einheitlichen Benutzung zu Verwirrung. In dieser Arbeit sind sie nach der Definition von [100, 125] verwendet.

Ebenen sind mit runden Klammern und den Millerschen Indizes beschrieben. Da FeAl ein kubisches System ist, stehen die gleichlautenden Richtungsvektoren im direkten Gitter mit eckigen Klammern senkrecht auf den Ebenen. Somit können beide Notationen äquivalent verwendet werden: (100) = [100]

Da die orthogonale Beziehung zwischen den Ebenen und dem direkten Gitter nicht für hexagonale Systeme gilt, wird hier zur Beschreibung des Saphirs die Viererschreibweise verwendet. In dieser ist die Äquivalenz gegeben: $(11\overline{2} 0) = [11\overline{2} 0]$

Für negative Richtungen kann einerseits ein Minuszeichen verwendet werden, wenn die Zahlen durch Kommata getrennt sind oder die negative Richtung wird durch einen Strich über dem Index gekennzeichnet. Beide Schreibweisen sind äquivalent.

Das Programm CARINE benutzt zur Beschreibung der Reflexe die Darstellung im direkten Gitter mit negativen Indizes. Daher sind in dieser Arbeit alle Polfiguren mit Richtungen beschrieben. Anhand der obig beschriebenen Äquivalenz stellen sie gleichzeitig die Gitterebenen des reziproken Gitters mit den Millerschen Indizes dar.

Weiterhin muss man wissen, dass für Saphir zwei Notationen zur Beschreibung der Einheitszelle gebräuchlich sind. In dieser Arbeit werden die Flächen und Richtungen immer in dem strukturellen System mit den vier Vektoren (hjkl) beschrieben. Daneben existiert das morphologische System, dass die primitive Einheitszelle beschreibt und in der c-Achse halb so lang ist wie das strukturelle System.

B.2 Röntgenreflexe

Für den Strukturfaktor von Fe Al mit CsCl-Struktur ergibt sich mit den Punktlagen in der Elementarzelle Al: 000 und Fe
: $\frac{1}{2}\,\frac{1}{2}\,\frac{1}{2}$:

$$F_{hkl} = f_{Al} + f_{Fe} \cdot e^{i\pi(h+k+l)} \tag{B.1}$$

- h+k+l=2n gerade: $F_{hkl}=f_{Al}+f_{Fe}$
- h+k+l=2n+1 ungerade: $F_{hkl}=f_{Al}-f_{Fe}$

Die auftretenden Röntgenreflexe sind in Tabelle B.1 für FeAl und Al_2O_3 gelistet. Da verschiedene Röntgenröhren zum Einsatz kamen, sind die Winkel sowohl für die Wellenlänge von Cu als auch Co angegeben.

	FeAl				Al_2O_3	3	
Millersche			Int.	Millersche			Int
Indizes				Indizes			
hkl	Cu $K_{\alpha 1}$	Со	in $\%$	hjkl	Cu $K_{\alpha 1}$	Со	in $\%$
100	30,844°	$35,911^{\circ}$	8	1102	$25,598^{\circ}$		72
110	$44,225^{\circ}$	$51,795^{\circ}$	100	$11\bar{2}0$	37,800°	$44,\!171^{\circ}$	44
111	$54,906^{\circ}$	$64,767^{\circ}$	3	0006	$41,720^{\circ}$	$48,807^{\circ}$	1
200	$64,376^{\circ}$	$76,\!352^{\circ}$	14	$11\bar{2}3$	$43,378^{\circ}$		100
210	73,075°	$87,383^{\circ}$	2	$2\bar{2}04$	$52,595^{\circ}$		48
211	81,418°	$98,358^{\circ}$	25	$22\overline{4}0$	80,773°		7
220	$97,702^{\circ}$	$121,781^{\circ}$	8	$3\bar{3}06$	$83,292^{\circ}$		1

Tabelle B.1: Tabellarisierte Röntgenreflexe für FeAl [95] und Al₂O₃ [97]

B.3 Eulerwinkel und stereographische Projektionen spezieller Richtungen von FeAl

Für eine klare Definition der Polardiagramme sind in Abb. B.1 die in der Arbeit gebrauchten Winkel dargestellt. Anschaulich lässt sich daraus auch die Erstellung einer Polfigur herleiten. Erwartet man einen Röntgenreflex in dem Punkt P₁, so wird er entlang der Verbindungslinie zum Südpol S in die Ebene projiziert auf den Punkt P₂. Der Abstand des Punktes P₂ zum Kugelursprung ist ein Äquivalent für den Winkel Ψ in reicht von 0..90°. Der Winkel Φ behält seine ursprüngliche Orientierung.

Nachstehend sind in Abb. B.2 Polfiguren von FeAl in ausgewählten Richtungen gezeigt.



Abbildung B.1: Definition der Eulerwinkel, wie sie in der Arbeit verwendet werden.



Abbildung B.2: Polfigur von FeAl in (110) und (100) Projektion.

 $102 \qquad {\rm B.3 \ Eulerwinkel \ und \ stereographische \ Projektionen \ spezieller \ Richtungen \ von \ FeAl$

Anhang C Umrechnung von cgs in SI Einheiten

Der Übersichtlichkeit ist die Tabelle mit den Umrechungen der magnetischen Einheitensysteme auf der nächsten Seite dargestellt. Diese wurde aus [92] entnommen.

A. TABLE OF CONVERSIONS

Ouantity	Symbol	Gaussian & cgs emu ^{a}	Conversion factor. C ^b	SI & rationalized mks c
Magnetic flux density, magnetic induction	В	gauss (G) ^d	10 ⁻⁴	tesla (T), Wb/m ²
Magnetic flux	φ	maxwell (Mx), G*cm ²	10 ⁻⁸	weber (Wb), volt second (V*s)
Magnetic potential difference, magnetomotive force	U, F	gilbert (Gb)	$10/4\pi$	ampere (A)
Magnetic field strength, magnetizing force	Н	oersted (Oe), ^e Gb/cm	$10^{3}/4\pi$	A/m ^f
(Volume) magnetization ^g	Μ	emu/cm ^{3 h}	10 ³	A/m
(Volume) magnetization	$4\pi M$	G	$10^{3}/4\pi$	A/m
Magnetic polarization intensity of magnetization	J, I	emu/cm ³	$4\pi \times 10^{-4}$	T, Wb/m ^{2 i}
(Mass) magnetization	σ, Μ	emu/g	$1 4\pi \times 10^{-7}$	A∗m²/kg Wb∗m/kg
Magnetic moment	m	emu, erg/G	10 ⁻³	A*m ² , joule per tesla (J/T)
Magnetic dipole moment	j	emu, erg/G	$4\pi \times 10^{-10}$	Wb*m ⁱ
(Volume) susceptibility	χ, κ	dimensionless, emu/cm ³	4π $(4\pi)^2 \times 10^{-7}$	dimensionless henry per meter (H/m), Wb/(A*m)
(Mass) susceptibility	$\chi_{ m ho}$, $\kappa_{ m ho}$	cm ³ /g, emu/g	$4\pi \times 10^{-3}$ $(4\pi)^2 \times 10^{-10}$	m ³ /kg H*m ² /kg
(Molar) susceptibility	χ mol , Kmol	cm ³ /mol, emu/mol	$4\pi \times 10^{-6}$ $(4\pi)^2 \times 10^{-13}$	m ³ /mol H*m ² /mol
Permeability	μ	dimensionless	$4\pi \times 10^{-7}$	H/m, Wb/(A*m)
Relative permeability ^{<i>j</i>}	$\mu_{ m r}$	not defined		dimensionless
(Volume) energy density, energy product ^k	W	erg/cm ³	10-1	J/m ³
Demagnetization factor	D, N	dimensionless	$1/4\pi$	dimensionless

UNITS FOR MAGNETIC PROPERTIES

a. Gaussian units and cgs emu are the same for magnetic properties. The defining relation is $B = H + 4\pi M$.

b. Multiply a number in Gaussian units by C to convert it to SI (e.g., $1 \text{ G} \times 10^{-4} \text{ T/G} = 10^{-4} \text{ T}$).

c. SI (*Système International d'Unités*) has been adopted by the National Bureau of Standards. Where two conversion factors are given, the upper one is recognized under, or consistent with, SI and is based on the definition $B = \mu_0(H+M)$, where $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H/m. The lower one is not recognized under SI and is based on the definition $B = \mu_0 H + J$, where the symbol *I* is often used in place of *J*.

d. 1 gauss= 10^5 gamma (γ).

e. Both oersted and gauss are expressed as $\text{cm}^{-1/2} * \text{g}^{-1/2} * \text{s}^{-1}$ in terms of base units.

f. A/m was often expressed as "ampere-turn per meter" when used for magnetic field strength.

g. Magnetic moment per unit volume.

h. The designation "emu" is not a unit.

i. Recognized under SI, even though based on the definition $B = \mu_0 H + J$. See footnote *c*.

j. $\mu_{\mathbf{r}} = \mu / \mu_0 = 1 + \chi$, all in SI. $\mu_{\mathbf{r}}$ is equal to Gaussian μ .

k. B * H and $\mu_0 M * H$ have SI units J/m³; M * H and $B * H/4\pi$ have Gaussian units erg/cm³.

R. B. Goldfarb and F. R. Fickett, U.S. Department of Commerce, National Bureau of Standards, Boulder, Colorado 80303, March 1985 NBS Special Publication 696 For sale by the Superintendent of Documents, U.S. Government Printing Office, Washington, DC 20402

Literaturverzeichnis

- [1] REUTHER, HELFRIED: Structure, properties and applications of thin Fe-Al layers. Hyperfine Interactions, 111(1):135–140, Dezember 1998.
- [2] VERIN, A.S. und M.A. VERIN: Intermetallids NiAl and FeAl with directional structure as future materials. Anti-Corrosion Methods and Materials, 48(5):298 – 304, 2001.
- [3] SCHNEIDER, A.: Strukturen und mechanische Eigenschaften von Eisen-Aluminium-Legierungen. Tätigkeitsbericht, Max-Planck-Institut für Eisenforschung GmbH, schneider@mpie.de, 2003.
- [4] SUNDAR, R. S. und S. C. DEEVI: *High-temperature strength and creep resistance of FeAl*. Materials Science and Engineering A, 357(1-2):124 133, 2003.
- [5] SAUTHOFF, G.: Entwicklung neuartiger Eisen-Chrom- und Eisen-Aluminium-Legierungenen für Anwendungen bei hohen Temperaturen. Technischer Bericht, Max-Planck-Institut für Eisenforschung, Düsseldorf, 2004.
- [6] CEBULSKI, J., S. LALIK und R. MICHALIK: Corrosion resistance of FeAl intermetallic phase based alloy in water solution of NaCl. Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering, 27:15 – 18, 2008.
- [7] M. HANSEN, K. ANDERKO: Constitution of Binary Alloys. McGraw-Hill Book Company, 1958.
- [8] BESNUS, M. J., A. HERR und A. J. P. MEYER: Magnetization of disordered coldworked Fe-Al alloys up to 51 at.% Al. Journal of Physics F: Metal Physics, 5(11):2138, 1975.
- CHÉRIF, S.M., K. BOUZIANE, Y. ROUSSIGNÉ und M. AL-BUSAIDY: Growth and magnetic study of sputtered Fe/Al multilayers. Materials Science and Engineering: B, 138(1):16 - 21, 2007.
- [10] ISHAUG, B. E., S. M. SEUTTER, A. M. DABIRAN, P. I. COHEN, R. F. C. FAR-ROW, D. WELLER und S. S. P. PARKIN: Nucleation, growth and magnetic properties of epitaxial FeAl films on AlAs/GaAs. Surface Science, 380(1):75 – 82, 1997.

- [11] KELLER, R., A. WOWCHAK, J. ANGELO, J. KUZNIA, P. COHEN und W. GER-BERICH: Growth and characterization of iron aluminide films on compound semiconductors. Journal of Electronic Materials, 20:319–324, 1991. 10.1007/BF02657898.
- [12] KÖSTER, W. und T. GÖDECKE: Physical Measurements of Iron-Aluminum Alloys with 10-50 at% Al Contents - 1. Confirmation and Extension of the Fe-Al Phase Diagram. Zeitschrift für Metallkunde, 71:765, 1980.
- [13] KUENTZLER, R.: Ordering effects in the Fe-Al system. J. Phys. France, 44(10):1167– 1178, 1983.
- [14] SCHMIDT, K.-H, H HUNEUS, K HARTIG und G POSPIECH: Bildung von oxidschichten von eisen-silizium-und eisen-aluminium-legierungen während der glühbehandlung. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 13(1-2):22 – 26, 1979.
- [15] BOOTH, J.G.: Landolt-Börnstein, Condensed Matter, III/19B, 1987, Band 1.5.3.3.6
 Fe-Al; Tables 57 86, pp. 295-307. Landolt Börnstein, 1987.
- [16] TAYLOR, A. und R. M. JONES: Constitution and magnetic properties of iron-rich iron-aluminum alloys. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 6(1):16-37, 1958.
- [17] CHI, JI, YANG LI, F. G. VAGIZOV, V. GORUGANTI und JOSEPH H. ROSS: NMR and Mössbauer study of spin-glass behavior in FeAl₂. Phys. Rev. B, 71(2):024431, Jan 2005.
- [18] ARROTT, ANTHONY und HIROSHI SATO: Transitions from Ferromagnetism to Antiferromagnetism in Iron-Aluminum Alloys. Experimental Results. Phys. Rev., 114(6):1420–1426, Jun 1959.
- [19] SHULL, R. D., H. OKAMOTO und P. A. BECK: Transition from ferromagnetism to mictomagnetism in Fe-Al alloys. Solid State Communications, 20(9):863 – 868, 1976.
- [20] SHUKLA, PRABODH und MICHAEL WORTIS: Spin-glass behavior in iron-aluminum alloys: A microscopic model. Phys. Rev. B, 21(1):159–164, Jan 1980.
- [21] GREST, G. S.: Monte Carlo study of the transition from a ferromagnet to a spin glass in Fe-Al alloys. Phys. Rev. B, 21(1):165–168, Jan 1980.
- [22] TAKAHASHI, S, X G LI und A CHIBA: Spin distribution in plastically deformed Fe

 Al intermetallic compounds. Journal of Physics: Condensed Matter, 8(50):11243, 1996.
- [23] HEBER, G: Spingläser Einige typische physikalische Eigenschaften und Modelle. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2(1-3):47 – 58, 1976.

- [24] CASKEY, G.R., J.M. FRANZ und D.J. SELLMYERC: Electronic and magnetic states in metallic compound-II: Electron transport and magnetic susceptibility in NiAl and FeAl. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 34(7):1179 – 1198, 1973.
- [25] BAGHAT, S.M. und E.P. CHICKLIS: Landolt-Börnstein, Condensed Matter, III/19A, 1987. 1.2.1.2.4 Fe-Co-Ni; Fig 63, pp. 247, 1987.
- [26] HERNANDO, A., X. AMILS, J. NOGUÉS, S. SURIÑACH, M. D. BARÓ und M. R. IBARRA: Influence of magnetization on the reordering of nanostructured ball-milled Fe-40 at. powders. Phys. Rev. B, 58(18):R11864-, November 1998.
- [27] GIALANELLA, S., X. AMILS, M. D. BARÒ, P. DELCROIX, G. LE CAËR, L. LUTTE-ROTTI und S. SURIÑACH: Microstructural and kinetic aspects of the transformations induced in a FeAl alloy by ball-milling and thermal treatments. Acta Materialia, 46(9):3305 – 3316, 1998.
- [28] DOMKE, H. und L. K. THOMAS: Vacancies and magnetic properties of FeAl alloys. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 45(2-3):305–308, November 1984.
- [29] SHABASHOV, V A, I G BRODOVA, A G MUKOSEEV, V V SAGARADZE und A V LITVINOV: Deformation-induced phase transformations in the Al-Fe system under intensive plastic deformation. Journal of Physics: Condensed Matter, 19(38):386222, 2007.
- [30] YANG, Y. und I. BAKER: On the mechanism of the paramagnetic to ferromagnetic transition in FeAl. PHILOSOPHICAL MAGAZINE B, 79(3):449–461, 1999.
- [31] THOMÉ, L., C. JAOUEN, J.P. RIVIÈRE und J. DELAFOND: Phase transformation in ion irradiated NiAl and FeAl. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 19-20(Part 2):554 – 558, 1987. Proceedings of the Fifth International Conference on Ion Beam Modification of Materials.
- [32] JAOUEN, C., J.P. RIVIÈRE und J. DELAFOND: Ion-induced phase formation in Ni-Al and Fe-Al thin films: Role of chemical disordering energy on amorphization. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 19-20(Part 2):549 – 553, 1987. Proceedings of the Fifth International Conference on Ion Beam Modification of Materials.
- [33] PLENET, J. C., A. PEREZ, J. RIVORY und O. LABORDE: Amorphous and quasicrystalline AlMn and AlFe phase synthesis by ion beam mixing and related transport properties. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 80-81(Part 1):379–385, Juni 1993.
- [34] TAKAHASHI, S. und Y. UMAKOSHI: Magnetic transition due to plastic deformation in an Fe-40 at% Al single crystal. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 90-91:735 – 736, 1990.

- [35] FRANK, F. C. und J. H. VAN DER MERWE: One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 198, 1053:205–216, 1949.
- [36] STRANSKI, N. und L. KRASTANOV: Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander. Akad. Wiss. Wien. Math.-Naturwiss, 146:797–810, 1938.
- [37] FRANK, A.: Inselwachstum auf Festkörperoberflächen unter Ionenbestrahlung. Doktorarbeit, Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart, 2004.
- [38] WANG, J. F., F. Z. CUI, Y. WANG und YU DIAN FAN: Structure and magnetic properties of Fe/Al multilayers synthesized by planar magnetron sputtering. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 89(1-2):153 – 158, 1990.
- [39] ZAYER, N.K., K.-U. NEUMANN und K.R.A. ZIEBECK: Transport and magnetic properties of thin Fe—Al films. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 140-144(Part 1):679 – 680, 1995. International Conference on Magnetism.
- [40] SLEZAK, T., M. KUBIK und J. KORECKI: Indirect exchange coupling and spin polarization in Fe/AlFe/Fe trilayers. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 198-199:405-407, Juni 1999.
- [41] BOBO, JEAN-FRANÇOIS, PIERRE DELCROIX, JEAN-CLAUDE OUSSET, MARIE-FRANÇOISE RAVET und MICHEL PIECUCH: Magnetic properties of sputtered Fe/Al multilayers. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 93:452 – 456, 1991.
- [42] FERMIN, J. R., A. AZEVEDO, F. M. DE AGUIAR, F. L. A. MACHADO und S. M. REZENDE: Effect of Al overlayers on the magnetic properties of Fe thin films. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 226-230(Part 2):1621–1623, Mai 2001.
- [43] CHECCHETTO, R., A. MIOTELLO, C. TOSELLO, G. PRINCIPI und P. MENGUCCI: Deuterium thermal desorption from FeAl thin films. J. Phys.: Condens. Matter, 14:6307–6320, 2002.
- [44] WANG, X., P. LUBITZ und J. H. LINN (Herausgeber): Nano-magnetic FeAl and FeAlN thin films via sputtering. American Ceramic Society, 2003.
- [45] GRAUPNER, H., L. HAMMER, K. HEINZ und D. M. ZEHNER: Oxidation of lowindex FeAl surfaces. Surface Science, 380(2-3):335 – 351, 1997.
- [46] KIZILKAYA, O., D. A. HITE, D. M. ZEHNER und P. T. SPRUNGER: Formation of aluminum oxide thin films on FeAl(1 1 0) studied by STM. Surface Science, 529(1-2):223 – 230, 2003.
- [47] BIERSACK, J.P. und L.G. HAGGMARK: A Monte Carlo Computer Program for the transport of energetic ions in amorphous targets. Nucl. Instrum. Methods, 174:257– 269, 1980.
- [48] TESMER, J.R. und M.NASTASI: Handbook of modern ion beam materials analysis. Material Research Society, 1995.
- [49] KINCHIN, G.H. und R.S. PEASE: The displacement of atoms in solids by radiation. Reports on Progress in Physics, 18(1), 1955.
- [50] SIGMUND, P.: On the number of atoms displaced by implanted ions or energetic recoil atoms. Applied Physics Letters, 14(3):114–117, 1969.
- [51] RIVIÈRE, J. P., J. DELAFOND, C. JAOUEN, A. BELLARA und J. F. DINHUT: Ion-beam mixing kinetics of Fe-Al multilayers studied by in situ electrical resistivity measurements. Applied Physics A: Materials Science & amp; Processing, 33:77–82, 1984. 10.1007/BF00617611.
- [52] JAMES F. ZIEGLER, J. P. BIERSACK und MATTHIAS D. ZIEGLER: Stopping and Range of Ions in Matter. SRIM.com, 2008. SRIM-2008.
- [53] MÜLLER, T.: Untersuchung der Dynamik bestrahlungsinduzierten Fehlstellen in amorphen Metallen. Doktorarbeit, Universität Ulm, Abteilung für Festkörperphysik, 2004.
- [54] ZIEMANN, P.: Amorphization of metallic systems by ion beams. Mater. Sci. Eng, 69:95, 1985.
- [55] SCHMID, A. und P. ZIEMANN: Amorphization of AlAu by low temperature ion irradiation. Nucl. Instruments and Methods, B7/8:581, 1985.
- [56] MIEHLE, W.: In-situ Untersuchung amorpher Gold-Indium-Filme hergestellt durch Ionenbestrahlung und Ionenstrahlmischen bei tiefen Temperaturen. Doktorarbeit, Universität Konstanz, 1992.
- [57] JAOUEN, C., J.P. RIVIÈRE, A. BELLARA und J. DELAFOND: Ion mixing in Fe-Al, Ni—Al and Co—Al multilayered thin films. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 7-8(Part 2):591 – 596, 1985.
- [58] LUBORSKY, F.E.: Magnetic properties of amorphous alloys. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 7(1-4):143 – 149, 1978.
- [59] GONZALEZ, G., A. SAGARZAZU, D. BONYUET, L. D'ANGELO und R. VILLALBA: Solid state amorphisation in binary systems prepared by mechanical alloying. Journal of Alloys and Compounds, 483(1-2):289 – 297, 2009. 14th International Symposium on Metastable and Nano-Materials (ISMANAM-2007).
- [60] FASSBENDER, J., M. O. LIEDKE, T. STRACHE, W. MÖLLER, E. MENÉNDEZ, J. SORT, K. V. RAO, S. C. DEEVI und J. NOGUÉS: Ion mass dependence of irradiation-induced local creation of ferromagnetism in Fe₆₀Al₄₀ alloys. Phys. Rev. B, 77(17):174430, May 2008.

- [61] AVERBACK, R.S., R. BENEDEK und K.L. MERKLE: Efficiency of defect production in cascades. Journal of Nuclear Materials, 69-70:786 – 789, 1978.
- [62] PALMER, R. G., D. L. STEIN, E. ABRAHAMS und P. W. ANDERSON: Models of Hierarchically Constrained Dynamics for Glassy Relaxation. Phys. Rev. Lett., 53(10):958–961, Sep 1984.
- [63] PHILLIPS, J. C.: Kohlrausch relaxation and glass transitions in experiment and in molecular dynamics simulations. Journal of Non-Crystalline Solids, 182(1-2):155 – 161, 1995.
- [64] PHILLIPS, J. C.: Kohlrausch relaxation in electronic and molecular glasses. Chemical Physics, 212(1):41 – 46, 1996. Rate Processes with Kinetic Parameters Distributed over Time and Space.
- [65] ALCAZAR, G A PEREZ und E GALVAO DA SILVA: Mossbauer effect study of magnetic properties of Fe_{1-q} Al_q , $0 < q \leq 0, 5$ alloys in the disordered phase. Journal of Physics F: Metal Physics, 17(11):2323, 1987.
- [66] BLAAS, C., J. REDINGER, S. MANNINEN, V. HONKIMÄKI, K. HÄMÄLÄINEN und P. SUORTTI: High Resolution Compton Scattering in Fermi Surface Studies: Application to FeAl. Phys. Rev. Lett., 75(10):1984–1987, Sep 1995.
- [67] LALENA, J., D. CLEARY, E. CARPENTER und N. DEAN: Inorganic Materials Synthesis and Fabrication. Wiley-Interscience, 2008. ISBN 9780471740049.
- [68] D'ANGELO, L., L. D'ONOFRIO und G. GONZALEZ: Nanophase intermetallic FeAl obtained by sintering after mechanical alloying. Journal of Alloys and Compounds, 483(1-2):154 – 158, 2009. 14th International Symposium on Metastable and Nano-Materials (ISMANAM-2007).
- [69] HAJALIGOL, M. R., S. C. DEEVI, V. K. SIKKA und C. R. SCOREY: A thermomechanical process to make iron aluminide (FeAl) sheet. Materials Science and Engineering A, 258(1-2):249–257, Dezember 1998.
- [70] RAUSCHENBACH, B. und K. HOHMUTH: Ion beam mixing in Al/Fe multilayered thin films. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 23(3):323 – 328, 1987.
- [71] JACKSON, T J und S B PALMER: Oxide superconductor and magnetic metal thin film deposition by pulsed laser ablation: a review. Journal of Physics D: Applied Physics, 27(8):1581, 1994.
- [72] NOGUES, J., E. APINANIZ, J. SORT, M. AMBOAGE, M. D'ASTUTO, O. MATHON, R. PUZNIAK, I. FITA, J. S. GARITAONANDIA, S. SURINACH, J. S. MUNOZ, M. D. BARO, F. PLAZAOLA und F. BAUDELET: Volume expansion contribution to the

magnetism of atomically disordered intermetallic alloys. Phys. Rev. B, 74(2):024407–5, Juli 2006.

- [73] ZAMORA, LIGIA E., G. A. PÉREZ ALCÁZAR, G. Y. VÉLEZ, J. D. BETAN-CUR, J. F. MARCO, J. J. ROMERO, A. MARTÍNEZ, F. J. PALOMARES und J. M. GONZÁLEZ: Disorder effect on the magnetic behavior of mechanically alloyed $Fe_{1-x}Al_x$ (0.2 $\leq x \leq$ 0.4). Phys. Rev. B, 79(9):094418, Mar 2009.
- [74] RÖSSNER, S.: Aufbau einer Laser Ablations Apparatur zur Herstellung von Oxidfilmen. Diplomarbeit, Universität Ulm, Abt. Festkörperphysik, 1998.
- [75] LENGL, G.: Aufbau einer Laser-Ablations-Apparatur. Diplomarbeit, Univerität Ulm, Abt. Festkörperphysik, 1998.
- [76] STEINER, ROLAND: Magnetotransport in Spinventil-Systemen mit amorphen magnetischen und supraleitenden Teilschichten. Doktorarbeit, Universität Ulm, 2006.
- [77] KLIMMER, ANDREAS: Ioneninduzierte Effekte an metallischen Nanoteilchen. Doktorarbeit, Universität Ulm, Abteilung für Festkörperphysik, 2009.
- [78] BAUMANN, H. und K. BETHGE: The Frankfurt PIG Ion Source. Nucl. Instrum. Methods, 189:107, 1981.
- [79] BAUMANN, H. und K. BETHGE: PIG Ion Source with End Extraction for Multiply Charged Ions. Nucl. Instrum. Methods, 122:517, 1974.
- [80] RANDLE, V. und G. L. F. POWELL: Application of electron backscatter diffraction to orientation measurements of individual carbides in a white cast iron. Journal of Materials Science Letters, 12:779–781, 1993. 10.1007/BF00626720.
- [81] CAUL, MARK und VALERIE RANDLE: Microtexture analysis of interstitial-free steel. Materials Characterization, 38(3):155 – 163, 1997.
- [82] GRUPPE, BUCHER (Herausgeber): Elektronenmikroskopie: Elektronenmikroskop, Rasterelektronenmikroskop, Transmissionselektronenmikroskop, Elektronenbeugung. Books Llc, 2010.
- [83] KOCKS, U.F., C. TOMÉ und H.-R. WENK: Texture and Anisotropy. Cambridge University Press, 1998.
- [84] SCHERRER, P.: Estimation of the size and internal structure of colloidal particles by means of röntgen. Nachr. Ges. Wiss. Göttingen, 2:96–100, 1918.
- [85] WILSON, A.J.C.: X-ray Optics. Methuen, London, 1949.
- [86] KLUG, H.P. und L.E. ALEXANDER: X-ray Diffraction Procedures. Wiley, New York, 1974.

- [87] DOOLITTLE, LAWRENCE R.: Algorithms for the rapid simulation of Rutherford backscattering spectra. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 9(3):344 – 351, 1985.
- [88] ANALYSIS, RUTHERFORD BACKSCATTERING DATA: Rutherford Backscattering Data Analysis Plotting and Simulation Package. Computer Grafik Service, 52 Genung Circle, Ithaca NY, 1997-1998.
- [89] QUANTUMDESIGN: Magnetic Property Measurement System MPMS MultiVu Application User's Manual. Quantum Design, 11578 Sorrento Valley Rd., San Diego, CA, 2. Edition Auflage, October 1999.
- [90] WEAST, ROBERT C. (Herausgeber): Handbook of Chemistry and Physics. CRC-Press, 1982.
- [91] YOUSSIF, A. BAHGAT und I. ALI: AC Magnetic Susceptibility Technique for the Characterization of High Temperature Superconductors. Egypt. J. Sol., 23:2, 2000.
- [92] GOLDFARB, R. und F. FICKETT: Table of conversions: Units for magnetic properties. NBS Special publication 696 US Government Printing Office, 1985.
- [93] SCHOLTEN, P.C.: Which SI? Journal of Magn and Magn Materials, 149:57 59, 1995.
- [94] WIEDWALD, ULF und MARKUS BENDELE: Wachstum von Pt auf MgO. Privater Kontakt, 2008.
- [95] (U.S.), NAT. BUR. STAND.: Diffraction data of Fe₅₀Al₅₀. Technischer Bericht Monogr. 25, 18, 5, Nat. Bur. Stand. (U.S.), 1981.
- [96] WINCHELL, A. und H. WINCHELL: Microscopic character fo artificial inorganics. Solid Sub., 60, 1964.
- [97] WINCHELL, A. und H. WINCHELL: *Diffraction Data of Al_2O_3*. Technischer Bericht 42-1468, International centre for diffraction data, 1996.
- [98] BOUDIAS, CYRILLE: *CaRine Crystallography*. Software CaRIne Crystallography, 17, rue du Moulin du Roy 60300 SENLIS FRANCE, Version 3.0 Auflage, 1989.
- [99] NISHIKAWA, S. und S. KIKUCHI: The Diffraction of Cathode Rays by Calcite. Proc. Imperial Academy of Japan, 4:475–477, 1928.
- [100] ASHCROFT, N.W. und N.D.MERMIN: *Festkörperphysik*. Oldenburg Verlag München, Wien, 2001.
- [101] SPIESS, L., G. TEICHERT, R. SCHWARZER, H. BEHNKEN und C. GENZEL: *Moderne Röntgenbeugung*, Band 2. Auflage. Vieweg + Teubner, 2005.

- [102] SZYMANSKI, K., D. SATULA, L. DOBRZYNSKI, E. VORONINA, E. P. YELSUKOV und T. MIYANAGA: Arrangements of magnetic moments in nanocrystalline Fe₄₈Al₅₂. Phys. Rev. B, 72(10):104409, Sep 2005.
- [103] SUMIYAMA, KENJI, YASUHIRO HIROSE und YOJI NAKAMURA: Structural and Magnetic Properties of Nonequilibrium Disordered Fe-Al Alloys Produced by Facing Target Type DC Sputtering. Journal of the Physical Society of Japan, 59(8):2963–2970, 1990.
- [104] NAOE, M., S. YAMANAKA und Y. HOSHI: Facing targets type of sputtering method for deposition of magnetic metal films at low temperature and high rate. Magnetics, IEEE Transactions on, 16(5):646 – 648, September 1980.
- [105] MENENDEZ, E., O. LIEDKE, J. FASSBENDER, T. GEMMING, A. WEBER, L. HEY-DERMAN, K. RAO, S. DEEVI, S. SURIACH, M. BARO, J. SORT und J. NOGUES: Direct Magnetic Patterning due to the Generation of Ferromagnetism by Selective Ion Irradiation of Paramagnetic FeAl Alloys. Small, 5(2):229–234, 2009.
- [106] GRATTON, L.M., A. MIOTELLO und C. TOSELLO: Thermal spike regime during ion implantation: New aspects. Defect and Diffusion Forum, 57-58:221–228, 1988.
- [107] BENYOUSSEF, A., D. DOHMI und A. ELKENZ: *Phase Diagrams of bcc Binary Alloy. Finite Cluster Approximation.* Physica Scripta, 58:518–524, 1998.
- [108] BOGNER, J., W. STEINER, M. REISSNER, P. MOHN, P. BLAHA, K. SCHWARZ, R. KRACHLER, H. IPSER und B. SEPIOL: Magnetic order and defect structure of $Fe_x Al_{1-x}$ alloys around x = 0.5: An experimental and theoretical study. Phys. Rev. B, 58(22):14922-, Dezember 1998.
- [109] RESTREPO, J., G. A. PEREZ ALCAZAR und D. P. LANDAU: Room temperature magnetic properties of quenched-disordered FeAl alloys: A simulational study. Journal of Applied Physics, 87(9):6528–6530, 2000.
- [110] SMIRNOV, A. V., W. A. SHELTON und D. D. JOHNSON: Importance of thermal disorder on the properties of alloys: Origin of paramagnetism and structural anomalies in bcc-based $Fe_{1-x}Al_x$. Phys. Rev. B, 71(6):064408, Feb 2005.
- [111] HITZFELD, M., P. ZIEMANN, W. BUCKEL und H. CLAUS: Ferromagnetism of Pd-Fe alloys produced by low-temperature ion implantation. Phys. Rev. B, 29(9):5023–5030, May 1984.
- [112] STONER, E. C. und E. P. WOHLFARTH: A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. Phil. Trans. of the Royal Society A: Physical, Mathematical and Engineering Sciences, 240:599–642, 1948.
- [113] STÖHR, J. und H. C. SIEGMANN: *Magnetism*. Springer, 2006.

- [114] RIVAS, J., M.A. LÓPEZ-QUINTELA NAD D. MARTÍNEZ und H. KRONMÜLLER F. WALZ: Magnetic relaxation in amorphous metals. Journal of Non-Crystalline Solids, 131-133, Part 2:1235–1239, 1991.
- [115] KALOSHKIN, S. D. und I. A. TOMILIN: The crystallization kinetics of amorphous alloys. Thermochimica Acta, 280-281:303 – 317, 1996. Vitrification, Transformation and Crytallization of Glasses.
- [116] HSU, JEN-HWA, J.T. LEE, CHING-RAY CHANG und M.T. LIN: Long magnetic relaxation time of Fe-Bi spin-glass system. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 226-230(Part 1):502 – 504, 2001. Proceedings of the International Conference on Magnetism (ICM 2000).
- [117] SEYFFERT, M.: Erzeugung metastabiler Phasen durch Grenzflächenreaktionen weniger Monolagen in ionengesputterten Au-In-Vielfachschichten. Doktorarbeit, Universität Konstanz, 1992.
- [118] DAGGE, K.: Widerstandsrauschen von bestrahlten Metallschichten. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1992.
- [119] KARPE, N.: Using electrical resistivity to analyze the kinetics of irradiation induced amorphization of metals. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 95(4):485 – 490, 1995.
- [120] GANGULEE, A.: Effects of oxygen ion implantation on the structure and properties of aluminum thin films. Vacuum, 30(8-9):335 335, 1980.
- [121] MANZKE, A., C. PFAHLER, O. DUBBERS, A. PLETTL, P. ZIEMANN, D. CRESPY, E. SCHREIBER, U. ZIENER und K. LANDFESTER: Etching Masks Based on Miniemulsions: A Novel Route Towards Ordered Arrays of Surface Nanostructures. Adv. Mater., 19(10):1337–1341, 2007.
- [122] PLETTL, ALFRED, FABIAN ENDERLE, MARC SAITNER, ACHIM MANZKE, CHRISTI-AN PFAHLER, STEFAN WIEDEMANN und PAUL ZIEMANN: Polystyrene Arrays: Non-Close-Packed Crystals from Self-Assembled Polystyrene Spheres by Isotropic Plasma Etching: Adding Flexibility to Colloid Lithography (Adv. Funct. Mater. 20/2009). Adv. Funct. Mater., 19(20):n/a-n/a, 2009.
- [123] BROMBACHER, C, M SAITNER, C PFAHLER, A PLETTL, P ZIEMANN, D MA-KAROV, D ASSMANN, MH SIEKMAN, L ABELMANN und M ALBRECHT: Tailoring particle arrays by isotropic plasma etching: an approach towards percolated perpendicular media. Nanotechnology, 20(10):105304, 2009.
- [124] WOOD, ROGER: Future hard disk drive systems. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 321(6):555 – 561, 2009. Current Perspectives: Perpendicular Recording.

[125] FRANK, F. C.: On Miller-Bravais Indices and four-dimensional Vectors. Acta Cryst, 18:862, 1964.

Erklärung

Ich versichere hiermit, daß ich die Arbeit selbständig angefertigt habe und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Ulm, den 17. Februar 2011

.....

Unterschrift

Publikationen

Applied Physics A: Materials Science and Processing, 93 2008, 2, 415-419

Jumping nanodroplets: a new route towards metallic nano-particles

J. Boneberg¹ , A. Habenicht¹, D. Benner¹, P. Leiderer¹, M. Trautvetter², C. Pfahler², A. Plettl² and P. Ziemann²

(1) University of Konstanz, 78457 Konstanz, Germany

(2) University of Ulm, 89081 Ulm, Germany

Applied Physics A: Materials Science and Processing, 2010, 1-6

Thermally driven solid-phase epitaxy of laser-ablated amorphous AlFe films on $(000\,1)$ -oriented sapphire single crystals

M. Trautvetter¹, U. Wiedwald¹, H. Paul², A. Minkow² and .P Ziemann¹

- (1) University of Ulm, 89081 Ulm, Germany, Institut für Festkörperphysik
- (2) University of Ulm, 89081 Ulm, Germany, Institut für Mikro- und Nanomaterialien

Kooperationen und Messzeiten an Großforschungsanlagen

M. Trautvetter, P. Ziemann, M.A. Ewiss Installation eines Messsystems zur Bestimmung der dielektrischen Konstanten in metallischen Gläsern Cairo University 23.09.2007 - 30.09.2007

U.Wiedwald, M. Trautvetter, L. Han, P. Ziemann Bestimmung der magnetischen Eigenschaften von nanomizellaren Teilchen durch XMCD Bessy Berlin 05.02.2008 - 18.02.2008

Tagungsbeiträge

1. M. Trautvetter, T. Müller, P. Ziemann

Characterization of 1/f-noise during the transition from crystalline to the amorphous state of the binary metal alloy AuIn₂ by ion bombardment at cryogenic temperatures 70. Jahrestagung der DPG Dresden 2006, DS 24.68 (Poster)

 P. Kächler, A. Klimmer, H.G. Boyen, C. Pfahler, M. Trautvetter, P. Ziemann^{*}, J. Biskupek, U. Kaiser
 Selective Diffusion durch Ionenbestrahlung: Gold in amorphes Silizium
 Jahrestagung der DPG Regensburg 2007, DS 24.4 (Vortrag)

3. A. Habenicht, P. Leiderer, J. Boneberg, M. Trautvetter, D. Told, C. Pfahler, A. Plettl,
P. Ziemann, M. Kinyanjui, U. Kaiser *Dynamics of Metal Nanodroplets*71. Jahrestagung der DPG Regensburg 2007, O 44.33 (Poster)

4. M. Trautvetter^{*}, A. Klimmer, P. Kächler, P. Ziemann Selektive Diffusion durch Ionenbestrahlung: Gold in amorphem Silizium Ionenstrahlkonferenz Bochum 2007 (Vortrag)

5. M. Trautvetter, P. Ziemann
Low temperature ion bombardment combined with in-situ ac-susceptibility measurements
72. Jahrestagung der DPG Berlin 2008, MA 32.35 (Poster)

6. X. Wang, M. Trautvetter*, A. Klimmer, P. Ziemann Diffusion contrasts of Gold in Silicon induced by ion bombardment
72. Jahrestagung der DPG Berlin 2008, DS 28.3 (Vortrag)

7. M. Trautvetter, U. Wiedwald, P. Ziemann
Magnetic and structural properties of FeAl thin films
73. Jahrestagung der DPG Dresden 2009 (Poster)

8. A. Klimmer, M. Trautvetter, B. Kuerbanjiang, P. Ziemann^{*}, J. Biskupek und U. Kaiser Ion induced Burying Effect of Au Nanoparticles on SiO2: Influence of Sputtering 73. Jahrestagung der DPG Dresden 2009, DS 11.3 (Vortrag)

9. M. Noske, M. Trautvetter, P. Ziemann
In-situ noise measurements on ion bombarded thin films: 1/f-noise as a fingerprint for amorphization
73. Jahrestagung der DPG Dresden 2009, DS 26.49 (Poster)

10. M. Trautvetter^{*}, U. Wiedwald, P. Ziemann Low temperature ion bombardment combined with in-situ ac-susceptibility measurements Ionenstrahlkonferenz Jena 2009 (Vortrag) 11. M. Trautvetter, U. Wiedwald, P. Ziemann

Preparation of epitaxial FeAl films and irradiation effects on the magnetic properties ICMFS Berlin 2009 (Poster)

12. M. Trautvetter^{*}, U. Wiedwald, P. Ziemann Epitaxial growth of FeAl films on Al_2O_3 by pulsed laser deposition 74. Jahrestagung der DPG Regensburg 2010 (Vortrag)

13. M. Trautvetter, U. Wiedwald, P. Ziemann Low temperature ion bombardment combined with in-situ ac-susceptibility measurements on FeAl thin films
IBMM Montreal, Kanada 2010 (Poster)

14. A. Klimmer, D. T. Rasonabe, M. Trautvetter, U. Wiedwald, Paul Ziemann*, J. Biskupek, and U. Kaiser

Ion Bombardment of Gold Nanoparticles: Experimental Evidence for Size-dependent Sputtering

IBMM Montreal, Kanada 2010 (Vortrag)

Lebenslauf

Persönliche Angaben:

Name: Geburtstag, -ort:	Klaus Moritz Trautvetter 28. November 1979 in Offenbach/Main
Familienstand:	ledig
Anschrift:	Mozartring 5
	89346 Bibertal
Schulbildung:	
09/86 - 04/90	Grundschule Neuhausen a.d.F.
05/90 - 07/90	Grundschule Oberelchingen
09/90 - 07/99	Bertha-von-Suttner Gymnasium Neu/Ulm / Pfuhl
	Abschluss: Abitur
Wehrdienst:	
07/99 - 04/00	Ableistung des Grundwehrdienstes
	im Kalibrierlabor der Elektronikstaffel des Geschwaders
	Lager-Lechfeld
Studium:	
10/ 00 - 06/06	Studium der Physik an der Universität Ulm
	Abschluss: Diplom
seit 04/02	wissenschaftlicher Angestellter an der Universität Ulm,
	Forschungsarbeit auf dem Gebiet der Elektronenstrahl-
	lithographie und Schichtpräparation
08/04 - 10/04	Auslandspraktikum an der Arizona State University
	in Phoenix/Arizona/USA,
	Abteilung für Elektronenstrahlmikroskopie
seit 08/06	wissenschaftlicher Angestellter an der Universität Ulm,
	Forschungsarbeit auf dem Gebiet der Präparation epi-
	taktischer Metallfilme mittels Laserablation, deren Un-
	tersuchung auf Magnetismus, Ionenbestrahlung
	tersuchung auf Magnetismus, Ionenbestrahlung

Ulm, Februar 2011

Danksagung

Da zum Gelingen dieser Arbeit sehr viele Leute beigetragen haben, möchte ich hier die Gelegenheit ergreifen, ihnen zu danken.

Danke an

- Herrn Prof. Dr. Paul Ziemann für die Möglichkeit einer Promotion in dem Institut für Festkörperphysik, die ständige Diskussionsbereitschaft und die finanzielle Unterstützung insbesondere bei der Bereitstellung von Hilfskräften rund um die Anlagen.
- PD Dr. Joachim Bansmann für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens.
- Dr. Ulf Wiedwald für die Betreuung während dieser Arbeit, die Unterstützung beim Verfassen von Veröffentlichungen und das Korrekturlesen der Arbeit. Insbesondere danke ich ihm für die "Rundum"-Betreuung, sowie zahlreiche Kegelabende in der Magnetismusgruppe mit interessanten Diskussionen.
- Dr. Johannes Biskupek, Oliver Klein und Frau Prof. Dr. U. Kaiser aus der AG Materialwissenschaftliche Elektronenmikroskopie für die hervorragenden TEM-Bilder und die anschließende Diskussion der gewonnen Daten.
- Barat Kurbajan, Dr. Heiko Paul und Prof. Dr. C. Krill aus dem Institut für Mikround Nanomaterialien der Universität Ulm für ihre Hilfe bei der temperaturabhängigen Röntgenmessung und der Bereitstellung des Gerätes. Ebenfalls danke ich Herrn Alexander Minkow aus dem Institut für Mikro- und Nanomaterialien der Universität Ulm für die Durchführung und Analyse der EBSD-Messung.
- AOR Dr. Alfred Plettl für die Ausbildung im Reinraum und im Elektronikpraktikum, und das stetig offene Ohr bei kleinen Nöten und Problemen.
- Volker Besserer für die Entwicklung der Endstufen für das AC-Suszeptometer und der schnellen Abhilfe, wenn es am Beschleuniger Probleme gab.
- Herrn Hartmut Schimming, dem ehemaligen Leiter der Elektronikwerkstatt, für seinen beherzten Einsatz über mehrere Wochen an der Hochspannungskaskade des Beschleunigers.
- Luyang Han, Felix Häring, sowie allen jetzigen und ehemaligen Mitgliedern der Magnetismusgruppe, für die vielen zahlreichen Diskussionen und das immer kollegiale und freundliche Arbeitsumfeld.
- Manuel Thoma für die zahlreichen RBS-Messungen und die Unterstützung am Beschleuniger.

- Enno Giese, er half mir bei der Laserablation, insbesondere bei der Programmierung einer komplexen Steuerungssoftware.
- Stefan Wiedemann, der mir bei der Umsetzung der Nanostrukturierung der Filme half.
- Hans-Dieter Kerpes, Sven Pernes und Walter Kaufmann für die stetige Hilfe beim Warten der Maschinen und der unkomplizierten Einsatzbereitschaft, wenn es mal schnell gehen musste.
- Gabriele Dinger und Tanja Hager, für die Hilfe bei allen administrativen Problemen und ihre immer freundliche Art.
- das komplette Reinraumteam, das jederzeit mit seinem Fachwissen zur Verfügung stand.
- die STM-Gruppe, speziell an Holger Pfeifer, der mir jederzeit mit seinen Gerätschaften ausgeholfen hat.
- all den jetzigen und ehemaligen Mitgliedern des Instituts für Festkörperphysik für die entspannenden Biergartennachmittage und die zerstreuenden Tischkickerspiele. Vor allen Dingen danke ich Andreas Klimmer, der mir über lange Zeit als Zimmergenosse mit Rat und Tat zur Seite stand.

Insbesondere möchte ich meiner Freundin Marion danken, die mir vor allem in der Schlussphase eine starke Schulter zum Anlehnen gegeben hat, sowie meinen Eltern, die stets mit Rat und Tat hinter mir standen.