

# **Der flüssige Ferromagnet – Magneto-optische Messungen**

**Dissertation**

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich - Wilhelms - Universität Bonn

vorgelegt von

**Lucian Marius Stefan**

aus Deva (Rumänien)

Bonn im Oktober 2005



Angefertigt mit Genehmigung der Mathematisch - Naturwissenschaftlichen  
Fakultät der Rheinischen Friedrich - Wilhelms - Universität Bonn

1. Referent: Prof. Dr. Karl Maier  
2. Referent: Priv. Doz. Dr. Reiner Vianden  
Tag der Promotion: 12. Dez. 2005

Diese Dissertation ist auf dem Hochschulschriftenserver  
der ULB Bonn [http://hss.ulb.uni-bonn.de/diss\\_online](http://hss.ulb.uni-bonn.de/diss_online)  
elektronisch publiziert

Erscheinungsjahr 2005



## Zusammenfassung

Der Existenz magnetischer Ordnung in einer Flüssigkeit steht theoretisch nichts entgegen. In der Natur begegnet man dieser aber nicht, denn die magnetische Übergangstemperatur – die sogenannte Curie-Temperatur - liegt bei allen bisher bekannten Substanzen weit unterhalb der Schmelztemperatur. Erst Unterkühlungsexperimente mit Hilfe elektromagnetischer Levitation ermöglichten die Untersuchung an einer flüssigen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze im Bereich des magnetischen Phasenübergangs und brachten 1997 über Streufeldmessungen den ersten Nachweis magnetischer Ordnung in einer Flüssigkeit.

Die Drehung der Polarisationssebene des Lichtes bei der Reflexion an magnetisierten Oberflächen, der sogenannte **magneto-optische Kerr-Effekt (MOKE)**, ermöglicht Rückschlüsse auf magnetische Eigenschaften und Zustand von Oberflächen. In Kombination mit einer Levitationsanlage wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit Kerr-Effekt-Messungen an der Oberfläche einer  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze durchgeführt.

Kerr-Winkel-Messungen an der flüssigen unterkühlten Probe ergaben einen starken Anstieg der Messkurven bzw. eine Drehung des Kerr-Winkels am magnetischen Phasenübergang, was auf das Auftreten magnetischer Ordnung schließen lässt. Die ermittelte Curie-Temperatur der flüssigen Phase liegt bei 1253K und lässt sich somit durchaus mit in früheren Experimenten gewonnenen Werten vergleichen. Die Messergebnisse zeigen ein Unterschreiten der Curie-Temperatur um 2-3K für wenige Millisekunden.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Physikalische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1 Magnetismus	3
2.1.1 Diamagnetismus	4
2.1.2 Paramagnetismus	5
2.1.3 Kollektiver Magnetismus	7
2.2 Magnetischer Phasenübergang und Temperaturabhängigkeit	11
2.2.1 Die Zustandsgleichung	11
2.2.2 Der kritische Bereich der magnetischen Phasenumwandlung	12
2.2.3 Ferro- und Paramagnetische Phase	14
2.3 Domänenstruktur	15
2.3.1 Beiträge der magnetischen freien Enthalpie	16
2.3.2 Magnetische Domänen und Bloch-Wände	18
2.4 Ferromagnetismus in der flüssigen Phase	20
2.4.1 Magnetische Ordnung in der Flüssigkeit	20
2.4.2 Kink-Point	21
2.4.3 Erwartete Magnetisierungsstruktur in der flüssigen Phase	22
2.5 Magneto-optischer Kerr-Effekt (MOKE)	26
2.5.1 Phänomenologische Beschreibung	26
2.5.2 Klassische Beschreibung – Lorenz-Drude-Modell	29
2.5.3 Quantenmechanische Beschreibung – Atomares Modell	30
2.5.4 Kerr-Effekt-Geometrien	33
<b>3 Physikalisches und technisches Konzept</b>	<b>36</b>
3.1 Unterkühlte Metallschmelzen	36
3.1.1 Phasenübergang flüssig – fest	37
3.1.2 Keimbildung	38
3.1.3 Das System $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$	39
3.2 Elektromagnetische Levitation	41

<b>4 Der Experimentaufbau</b>	<b>43</b>
4.1 Probenherstellung.....	43
4.2 Levitationsanlage und Hochfrequenztechnik. ....	44
4.3 Probenstabilisierung .....	47
4.4 Temperaturmessung .....	49
4.5 MOKE - Messeinrichtung .....	51
4.5.1 Aufbau.....	52
4.6 Experimenteller Ablauf.....	54
<b>5 Messung und Ergebnisse</b>	<b>57</b>
5.1 Messung .....	57
5.1.1 Detektorsignale .....	58
5.1.2 Messmethode. ....	61
5.1.3 Messempfindlichkeit.....	64
5.2 Ergebnisse .....	67
5.2.1 Magnetisierungsabhängigkeit .....	67
5.2.2 Winkelkalibrierung und Datenanalyse.....	69
5.2.3 Messung an fester Probe.....	76
5.3 Diskussion und Ausblick .....	78
<b>A Korrekturfunktionen der elektromagnetischen Levitation</b>	<b>84</b>
<b>B Feldberechnung der Levitationsspule</b>	<b>85</b>
<b>C Fotos des Experiments</b>	<b>86</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>88</b>
<b>Danksagung</b>	<b>97</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>99</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Den Schriften von THALES VON MILET zufolge war den Griechen die Eigenschaft des Magnetits ( $\text{FeO-Fe}_2\text{O}_3$ ), Eisen anzuziehen, schon 600 v. Chr. bekannt. Die Bezeichnung des Minerals und auch des Phänomens wird auf den Fundort des Magnetsteines zurückgeführt, die Provinz Magnesia in der heutigen Türkei.

Das erstaunliche Phänomen des Magnetismus animierte die Gedanken der antiken Griechen, die bestrebt waren, das Phänomen philosophisch zu deuten. Diese spalteten sich in zwei Lager: Die *Animisten* wie THALES und ANAXAGORAS glaubten an die Existenz einer Seele des Magnetits, während die *Mechanisten*, deren bedeutendster Vertreter DIOGENES war, der Meinung waren, dass durch Magnetit die "Feuchtigkeit" aus dem Eisen aufgesogen wird. Die "Feuchtigkeitstheorie" fand eine Weiterentwicklung durch EPIKUR und DEMOKRIT in deren Äthertheorien, wonach die Fernwirkung durch einen gewichtslosen Äther (eine Art magnetisches Feld) vermittelt wird. Dies kann als der erste Schritt zur Beschreibung magnetischer Wechselwirkungen mit Hilfe von Magnetfeldern und Magnetpolen aufgefasst werden.

Die Europäer kannten den Kompass mit Sicherheit seit dem 12. Jahrhundert und machten sich diesen in der Schifffahrt zu Nutze. Die ersten genau dokumentierten Experimente unternahm P. PEREGRINUS, der auch einen ersten Erklärungsversuch des Erdmagnetismus wagte. Der Begründer der experimentellen Methode und der neuzeitlichen Lehre des Magnetismus war jedoch W. GILBERT, Präsident des Royal College of Physicians. Er trug alle Erkenntnisse seiner Zeit über Magnetismus in seinem Werk "De Magnete" (1600) zusammen. Darin wird auch bereits darüber berichtet, dass Magnete ihren Magnetismus in einem heißen Ofen verlieren.

P. CURIE widmete sich im Jahre 1895 der genauen Untersuchung des magnetischen Phasenübergangs und fand experimentell einen Zusammenhang zwischen paramagnetischer Suszeptibilität  $\chi$  und Temperatur. Mit der Molekularfeld-Hypothese von P. WEISS folgte der erste theoretische Ansatz zu Magnetismus.

Erst mit der Einführung der Quantenphysik am Anfang des 20. Jahrhunderts erhielt man ein entscheidendes Werkzeug zur Erklärung und Beschreibung der komplexen Phänomenologie des Magnetismus. Heute werden die verschiedenen Formen des Magnetismus auf Basis der unterschiedlichen Kopplungsmechanismen und Spinstrukturen unterschieden.

Noch bis Mitte des letzten Jahrhunderts war man, auf den Arbeiten von P. CURIE u. a. basierend, der Auffassung, dass die spontane magnetische Ordnung an die Struktur im Kristallgitter gebunden sein müsse, da in der Natur nur kristalline Magnete vorkommen. Der Grund dafür ist das Verschwinden der magnetischen Ordnung beim Erhitzen, d.h. oberhalb der sogenannten Curie-Temperatur, lange bevor die Substanz zu schmelzen beginnt. GUBANOV zeigte jedoch schon 1960 in seinen theoretischen Überlegungen, dass auch in amorphen, also ungeordneten Substanzen, Ferromagnetismus auftreten könnte [Gub60]. Eine große Anzahl von amorphen magnetischen Substanzen ist heutzutage bekannt und aufgrund ihrer besonderen technischen Eigenschaften nicht mehr wegzudenken.

Nach HANDRICH sprach nichts gegen eine Ordnung in einer flüssigen Substanz, wenn die magnetische Ordnung bereits in ungeordneten festen Substanzen auftritt [Han69]. Seitdem wurde in zahlreichen Unterkühlungsexperimenten versucht, Metallschmelzen bis zu der Temperatur flüssig zu halten, an der Ferromagnetismus einsetzt. Schließlich gelang es 1994 mit Hilfe einer elektromagnetischen Levitationsanlage, eine  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze unter die Curie-Temperatur der festen Phase abzukühlen und die dabei einsetzende magnetische Ordnung zu beobachten [PNH<sup>+</sup>94]. Weitere Untersuchungen am gleichen System mit einer modifizierten Faraday-Waage haben durch das Erreichen der Curie-Temperatur der flüssigen Phase den ersten Nachweis geliefert, dass Ferromagnetismus sich auch in einer Flüssigkeit bilden kann [ABF<sup>+</sup>97].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde erfolgreich versucht, mit einer neuen Untersuchungsmethode mittels Kerr-Effekt das Auftreten und die Ausbildung der Magnetisierung an der Oberfläche einer levitierenden  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze über den ganzen magnetischen Phasenübergang nachzuweisen und zu protokollieren.

# Kapitel 2

## Physikalische Grundlagen

Das folgende Kapitel geht zunächst auf die grundlegenden physikalischen Zusammenhänge und Erscheinungsformen des Magnetismus ein, die die theoretische Basis der vorliegenden Arbeit bilden. Darauf aufbauend werden die nach dem derzeitigen Stand der Forschung gewonnenen Erkenntnisse bezüglich der Existenz magnetischer Ordnung in einer Flüssigkeit dargelegt. Abschließend folgt eine Beschreibung des Kerr-Effekts und der dabei auftretenden Geometrien.

### 2.1 Magnetismus

Im Vakuum ist der Zusammenhang zwischen magnetischer Feldstärke  $\vec{H}$  und magnetischer Induktion (oder Flussdichte)  $\vec{B}$  durch:

$$\vec{B}_0 = \mu_0 \vec{H} \quad (2.1)$$

mit  $\mu_0$  : Induktionskonstante;  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \left[ \frac{Vs}{Am} \right]$

gegeben.

Diese Beziehung gilt in materiefülltem Raum nicht mehr, denn die Atome, oder genauer deren Elektronen, wechselwirken mit dem Magnetfeld und nehmen dadurch Einfluss auf die Induktion. Dieser Einfluss kann durch einen Faktor  $\mu_r$  berücksichtigt werden, die *magnetische Permeabilität*. Streng genommen ist die magnetische Permeabilität ein dreidimensionaler Tensor zweiter Stufe, aber wegen der kleinen Anisotropie der magnetischen Eigenschaften kann man  $\mu_r$  in guter Näherung als Skalar betrachten.

Somit ergibt sich in materieverfülltem Raum folgender Zusammenhang zwischen  $\vec{B}$  und  $\vec{H}$ :

$$\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H} \quad (2.2)$$

Der Einfluss der Materie kann auch additiv in Form einer Magnetisierung  $\vec{M}$  beschrieben werden. Durch die Einführung einer stoffspezifischen Proportionalitätskonstante  $\chi$ , der *magnetischen Suszeptibilität*, kann man diesen Einfluss einbeziehen:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \mu_0 \vec{M} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0 (1 + \chi) \vec{H} = \mu_0 \mu_r \vec{H} \quad (2.3)$$

Es gilt also:

$$\mu_r = 1 + \chi \quad (2.4)$$

mit:

$$\chi = \frac{dM}{dH} \quad (2.5)$$

Die eingeführte Suszeptibilität erlaubt eine einfache Klassifizierung aller Substanzen bezüglich ihres Verhaltens im äußeren Magnetfeld und eine Einteilung der verschiedenen magnetischen Erscheinungsformen, je nachdem, ob sich die Magnetisierung  $\vec{M}$  parallel ( $\chi > 0$ ) oder antiparallel ( $\chi < 0$ ) zu  $\vec{H}$  ausrichtet.

Die Ursache für das Auftreten unterschiedlicher magnetischer Erscheinungsformen liegt in den verschiedenen Eigenschaften der Spin- und Bahnmomente der Elektronen in Festkörpern.

### 2.1.1 Diamagnetismus

Ein äußeres Magnetfeld verursacht eine Präzession des Drehimpulsvektors der Elektronenbahnen (*Larmor-Präzession*), die eine dem äußeren Feld entgegengesetzte Magnetisierung gemäß der *Lenzschen Regel* induziert. Durch die entgegengesetzte Magnetisierung des Materials wird das äußere Feld geschwächt. Die Larmor-Präzession der Elektronenhülle ist gleichbedeutend mit einem elektrischen Strom [Kit76]. Diese magnetische Erscheinungsform wird *Diamagnetismus* genannt. In einem inhomogenen äußeren Feld werden diamagnetische Stoffe aus dem Magnetfeld herausgedrängt.

Die diamagnetische Wirkung geht nicht nur von abgeschlossenen Schalen aus, sondern von allen Schalen, in denen gepaarte Elektronen sind, weil bei diesen die Spins sich gegenseitig kompensieren. Da alle Atome mindestens eine abgeschlossene Elektronenschale besitzen (mit Ausnahme von Wasserstoff), tritt immer eine diamagnetische Suszeptibilität auf. Diamagnetismus kommt bei allen Materialien vor, da auch Atome mit nicht abgeschlossenen Schalen durch chemische Bindung abgeschlossene Molekülorbitale bilden können. Die entgegenwirkende Magnetisierung bewirkt eine negative Suszeptibilität ( $\chi < 0$ ).

Im Allgemeinen sind die resultierenden Suszeptibilitäten sehr klein  $\chi \approx -10^{-4} \dots -10^{-6}$  [KL92]. Sie zeigen keine Temperaturabhängigkeit. Eine Ausnahme sind dabei die Supraleiter vom Typ I, die mit  $\chi = -1$  einen idealen Diamagneten darstellen. Unterhalb des Sprungpunktes  $T_C$  drängt das Material, wenn es supraleitend wird, das Feld aus sich heraus. Im Inneren des Supraleiters gilt immer  $B = 0$  (*Maißner-Ochsenfeld-Effekt*).

Diamagnetismus ist eine Eigenschaft aller Stoffe. Man spricht von Diamagnetismus aber nur dann, wenn nicht noch zusätzliche stärkere Phänomene wie *Paramagnetismus* oder *kollektiver Magnetismus* vorliegen, da diese den relativ schwachen Diamagnetismus überdecken [Nol86].

### 2.1.2 Paramagnetismus

Die entscheidende Voraussetzung für Paramagnetismus ist die Existenz von permanenten magnetischen Dipolen, die von dem äußeren Feld mehr oder weniger stark ausgerichtet werden, wobei die thermische Bewegung diese Ausrichtung behindert.

Für ein Atom, das nicht abgeschlossene Elektronenschalen besitzt, gibt es mehrere Möglichkeiten, die Elektronen auf diese Schalen entsprechend dem *Pauli-Prinzip* zu verteilen. Gemäß den *Hundschen Regeln* verteilen sich die Elektronen auf die Niveaus der freien Schalen so, dass der Gesamtspin maximiert wird [Hun25]. Die Spins ordnen sich möglichst parallel aus, denn aus der Forderung nach Asymmetrie der Gesamtwellenfunktion folgt aus einem symmetrischen Spinanteil  $S$  ein antisymmetrischer Bahnanteil  $L$  und damit ein größerer mittlerer Abstand der Elektronen voneinander. Somit verringert sich die elektrostatische Energie. Gleichzeitig streben die Elektronen danach, auch ihren Bahndrehimpuls zu maximieren. Bei einer halbgefüllten Schale ist der Spinanteil maximal und der Bahnanteil verschwindet. Der *Gesamtdrehimpuls* von weniger als halbgefüllten Schalen ist  $J = L - S$ , da *Spin-* und *Bahndrehimpuls* entgegengesetzt sind. Fügt man aber einer halbgefüllten Schale weitere Elektronen hinzu, so werden diese ihren Spin antipa-

parallel zu den vorhandenen Elektronen und damit parallel zu  $L$  ausrichten, was einen Gesamtdrehimpuls  $J = L + S$  ergibt. In jedem Fall bleibt ein resultierender Gesamtdrehimpuls übrig, der sich in einem äußeren Magnetfeld ausrichtet und dieses verstärkt. Die dadurch hervorgerufenen Suszeptibilitäten ( $\chi > 0$ ) nennt man *paramagnetisch*; sie haben bei Raumtemperatur meist eine Größenordnung von  $\chi \approx -10^{-5}$  [KL92].

Man kann auf Basis der Temperaturabhängigkeit zwischen zwei Arten von Paramagnetismus unterscheiden.

Bei *Pauli-Paramagnetismus* besitzen paramagnetische Metalle eine nahezu temperaturunabhängige Suszeptibilität, die durch das freie Elektronengas der Leitungselektronen hervorgerufen wird [Pau27]. Alle Energieniveaus sind bei  $T = 0$  bis zur *Fermi-Kante* mit zwei Elektronen besetzt. Je nach Spinrichtung werden die Energien der Bänder der Elektronen im äußeren Feld um  $\pm \mu_B B$  ( $\mu_B$  -Bohrsches Magneton) angehoben oder abgesenkt, so dass die beiden Bänder ungleich besetzt sind und ein Nettospinmoment resultiert. Der Paramagnetismus von Metallen ist deutlich kleiner als der paramagnetischer Kristalle (Größenordnung  $10^{-6}$ ), da sich nur die Spins von Elektronen im Energieintervall  $2\mu_B$  um die Fermi-Kante herum im Feld ausrichten können. Die anderen Elektronen liefern einen diamagnetischen Beitrag, der den paramagnetischen reduziert. Der diamagnetische Anteil kann bei Metallen höherer Ordnungszahl, wie z.B. Gold, Silber und Kupfer, den paramagnetischen überwiegen. Die geringe Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität ist in diesem Fall die Folge der geringen Abhängigkeit der Zustandsdichte der Elektronen an der Fermi-Kante von der Temperatur.

Eine starke Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität zeigt der *Curie-Paramagnetismus*. Der Ausrichtung der Spins wirkt die *thermische Bewegung* entgegen, so dass die Suszeptibilität antiproportional zu  $T$  ist. Für kleine angelegte Felder und höhere Temperaturen ( $\mu_0 B \ll k_B T$ ) ist eine Näherung der *Brillouin-Funktion*<sup>1</sup> möglich, die zu dem durch P. CURIE experimentell ermittelten *Curie-Gesetz* führt [Cur95]:

$$\chi = \frac{C}{T} \tag{2.6}$$

---

<sup>1</sup>P. LANGEVIN erhielt, ausgehend von einer Ansammlung  $N$  unabhängiger magnetischer Momente in einem äußeren Magnetfeld, durch einen rein statistischen Ansatz die Brillouin-Funktion zur Beschreibung der Magnetisierung [Lan05a, Lan05b]. Dass es sich um Elektronenspins handelt, wurde erst 1925 durch die Einführung des Spins der Elektronen von W. PAULI geklärt.

Die Curie-Konstante  $C$  ergibt sich dabei wie folgt:

$$\begin{aligned} C &= \mu_0 \cdot \frac{N}{3k_B} \cdot g^2 \mu_B^2 \cdot J(J+1) \\ &= \mu_0 \cdot \frac{N}{3k_B} \cdot \mu_{\text{eff}}^2 \end{aligned} \quad (2.7)$$

mit  $k_B = 1,3807 \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$  : Boltzmann-Konstante

$g$  : Landé-Faktor

$J$  : Gesamtdrehimpuls des Atoms

Die Größe  $\mu_{\text{eff}}$  wird als *effektives magnetisches Moment* bezeichnet. Die Curie-Konstante, und somit über die Gleichungen (2.6) und (2.7) auch  $\mu_{\text{eff}}$ , kann durch die Messung der Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität  $\chi$  berechnet werden.

Weitere Beiträge zum paramagnetischen Verhalten ergeben sich aus der Betrachtung des *Van-Vleck-Paramagnetismus* [Vle32] oder von *Spingläsern* [Fis82]. Hier wird auf weitergehende Literatur verwiesen [Nol86, KL92]

### 2.1.3 Kollektiver Magnetismus

Es existiert eine weitere Stoffklasse, deren Suszeptibilität ( $\chi > 0$ ) eine komplizierte Funktion des Feldes und der Temperatur ist, die häufig auch noch von der "Vorbehandlung" der Probe abhängt. Sie ist das Resultat einer charakteristischen, nur quantenmechanisch erklärbaren *Austausch-Wechselwirkung* zwischen permanenten magnetischen Dipolen. Die Folge ist eine kritische Temperatur (Curie-Temperatur  $T_C$  für Ferro- und Ferrimagnete und Néel-Temperatur für Antiferromagnete<sup>2</sup>), unterhalb der sich eine *spontane Magnetisierung* einstellt, d.h. eine spontane, nicht von außen erzwungene Ausrichtung der magnetischen Dipole [Nol86]. Oberhalb dieser kritischen Temperatur verhalten sich die Materialien wie normale Paramagnete.

Die *quantenmechanische Austausch-Wechselwirkung* wurde 1926 von DIRAC und HEISENBERG als entscheidende Ursache für den *kollektiven Magnetismus* unabhängig voneinander erkannt und beruht auf dem *Pauli-Prinzip* und der *Coulomb-Wechselwirkung*. Nach dem Pauli-Prinzip können zwei Elektronen mit gleichem Spin den gleichen Orbitalzustand besetzen, so dass die effektive elektrostatische Coulomb-Abstoßung für ein Elektronenpaar gleichen Spins schwächer ist als für

<sup>2</sup>Alle drei Unterklassen werden zu einem späteren Zeitpunkt in diesem Kapitel ausführlich behandelt.

Elektronen antiparallelen Spins, und somit die *Gesamtenergie* durch Aufhebung der energetischen Entartung bezüglich der relativen Spineinstellung der Atome des Festkörpers verringert werden kann. Eine geeignete Beschreibung liefert das *Heisenbergmodell* mit einem erweiterten *Hamilton-Operator*:

$$\hat{H}_{\text{Heis}} = -\sum J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j, \quad (2.8)$$

wobei  $J_{ij}$  das Austauschintegral zweier Elektronen  $i, j$  und  $S_i, S_j$  die Spinmatrizen der beiden Elektronen darstellen [Hei26, Dir26]. Die Reduzierung der Gleichung (2.8) auf die  $z$ -Komponenten der Spinmatrizen, d.h.  $S_i^z, S_j^z$ , führt zu der Austauschenergie, so wie sie aus dem *Isingmodell* bekannt ist. Im *Spin-1/2-Ising-Modell* können die Spins nur die Zustände  $S_z = \pm 1/2$  besetzen [Isi25]. Über das Austauschintegral  $J_{ij}$  lassen sich die verschiedenen spontanen magnetischen Ordnungen klassifizieren<sup>3</sup>.

### **Ferromagnetismus**

Bei ferromagnetischen Stoffen wird die Bildung spontaner magnetischer Ordnung mit der Parallelausrichtung der magnetischen Momente durch ein positives, möglichst großes Austauschintegral  $J_{ij}$  zwischen benachbarten Atomen beschrieben.

Bei diesem typischen kollektiven Phänomen hat man es nicht mit einzelnen Atomen mit diskreten Energieniveaus zu tun, sondern die Energieniveaus aller Kristallatome bilden eine Bandstruktur. Sind die Spins parallel ausgerichtet, so müssen Elektronen in unbesetzte Niveaus oberhalb der Fermi-Kante angehoben werden. Dadurch verringert sich die elektrostatische Abstoßung zwischen den Elektronen. Bei einer hohen Zustandsdichte an der Fermi-Kante liegen die Energieniveaus so dicht, dass die Elektronen nur einen kleinen Energiebetrag benötigen, um ihre Spins parallel stellen zu können.

Wie beim Paramagnetismus wirkt auch hier die thermische Bewegung der Atome der strengen Spinkorrelation entgegen, so dass oberhalb der Curie-Temperatur  $T_C$  die spontane Magnetisierung völlig verschwindet, was zu einem paramagnetischen Verhalten führt.

Ferromagnetismus tritt nur bei wenigen Elementen auf. Fe, Ni, Co, die seltenen Erden Gadolinium, Dysprosium, Erbium sowie einige Legierungen, z.B. die

---

<sup>3</sup>Asperomagnetische oder sonstige Spinstrukturen werden hier nicht berücksichtigt. Es werden nur die drei häufigsten Systeme betrachtet.

Heusler-Legierungen von Mn mit Sn, Al, As, Sb, Bi, B und Cu, zeigen ein komplexes ferromagnetisches Verhalten.

### **Antiferromagnetismus**

Antiferromagnetismus zeichnet sich dadurch aus, dass sich die Spins benachbarter Atome antiparallel ausrichten und das Austauschintegral  $J_{ij}$  ist negativ. Im Kristallgitter wechseln sich die spin up- und spin down- Atome ab, so dass dabei zwei Spin-Untergitter mit gleichgroßen, aber entgegengesetzten magnetischen Momenten entstehen. Makroskopisch ist zwar keine Magnetisierung messbar, aber die Suszeptibilität von Antiferromagneten ist temperaturabhängig. Die bei tiefen Temperaturen antiparallele Ausrichtung der zur Magnetisierung beitragenden Elektronen-Spins im Kristallgitter wird mit steigender Temperatur gelockert und bricht bei der *Néel-Temperatur*  $T_N$  völlig zusammen. Oberhalb von  $T_N$  wird die spontane magnetische Ordnung durch die thermische Bewegung zerstört und somit liegt ein paramagnetisches Verhalten vor [Née32]. Typische Vertreter sind MnO, MnF<sub>2</sub>, NiO, CoF<sub>2</sub> und Cr. Dieses Thema wird ausführlich in [Nol86,KL92] und dem Übersichtsartikel [Wei73] behandelt.

### **Ferrimagnetismus**

Ferrimagnetische Substanzen verhalten sich im Bereich tiefer Temperaturen wie Ferromagnete, im Bereich hoher Temperaturen aber ähnlich wie Antiferromagnete. Der Ferrimagnetismus tritt nur bei einer Klasse von Stoffen auf, den *Ferriten*.

Die Kristallstruktur der Ferrite zeichnet sich durch zwei Spin-Untergitter mit entgegengesetztem magnetischen Moment aus. Bei diesen Gitterstrukturen sind die Nachbarspins antiparallel ausgerichtet, aber unterschiedlich groß, und kompensieren sich nur zu einem gewissen Bruchteil, wodurch eine Magnetisierung übrig bleibt. Da die Magnetisierung aufgrund der unterschiedlichen Molekularfelder in beiden Untergittern unterschiedlich ist, wird auch die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung der Untergitter sich unterschiedlich verhalten. Dies kann zu einem insgesamt relativ komplexen Verhalten der Gesamtmagnetisierung führen. Manchmal kann bei tiefen Temperaturen ein Untergitter dominieren, bei hohen das andere, so dass ein Vorzeichenwechsel der Gesamtmagnetisierung bei einer sogenannten Kompensationstemperatur auftritt. Daher lässt sich die Suszeptibilität eines Ferrimagneten nicht durch ein einfaches *Curie-Weiss-Gesetz* (siehe 2.2.3) beschreiben. Das beschriebene Austauschintegral  $J_{ij}$  nimmt hier sowohl positive als auch negative Werte an. Ferrite wie Magnetit (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) verhalten sich ähnlich wie Ferromagnete, ihre Sättigungsmagnetisierung ist aber deutlich kleiner. Durch den Einbau von Fremdatomen wie Mg, Al usw. anstelle eines Fe-Atoms entstehen Ferrite mit sehr unterschiedlichen Hysteresekurven [Vog99].

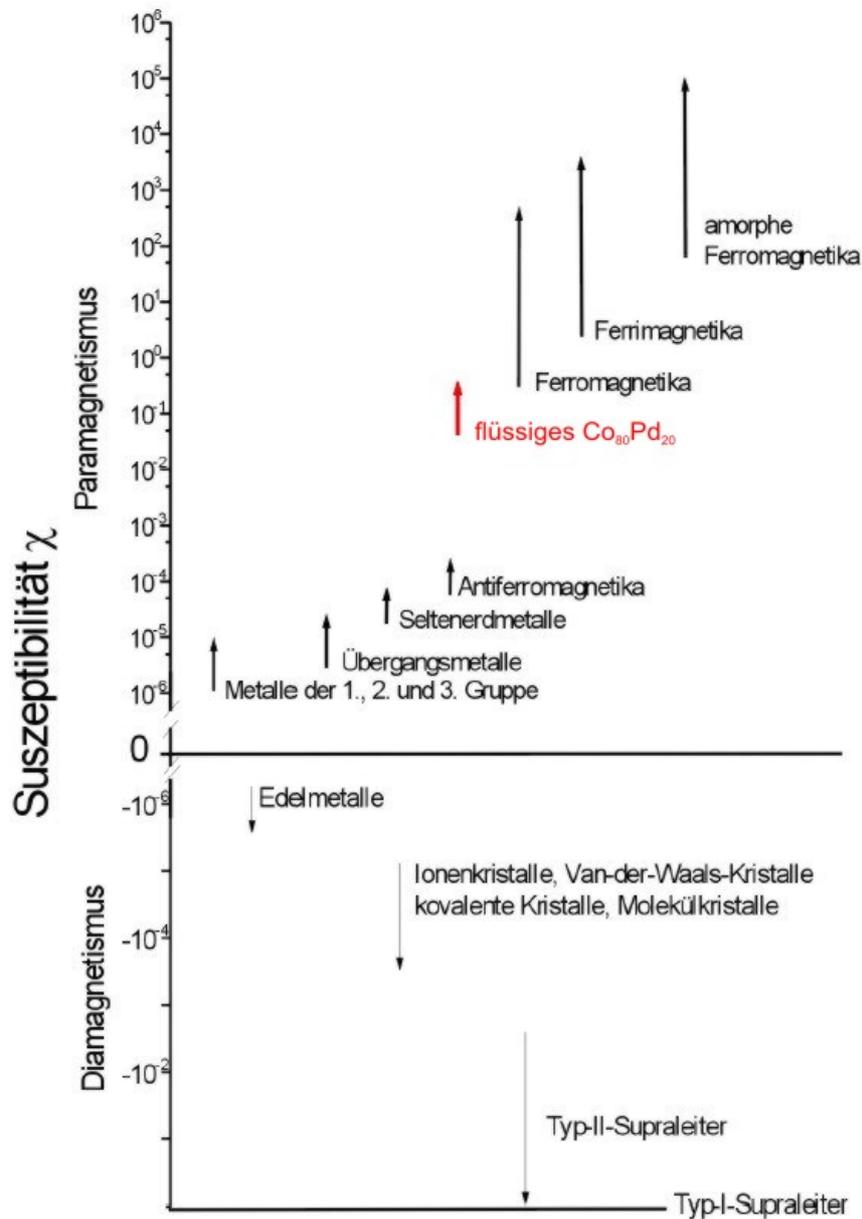


Abbildung 2.1: Überblick über die magnetische Suszeptibilität verschiedener magnetischer Substanzen. Nach den Suszeptibilitätswerten erfolgt die Einteilung in Diamagneten ( $\chi < 0$ ) und Paramagneten ( $\chi > 0$ ). Die auftretenden Maximalwerte der betreffenden Stoffklassen werden näherungsweise durch die Pfeilspitzen angegeben. Ferro- und Ferrimagnetika erreichen Werte bis zu  $10^5$ . Quelle: [KL92]. Rot eingetragen: Suszeptibilität einer  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze [Büh98].

## 2.2 Magnetischer Phasenübergang und Temperaturabhängigkeit

Der *ferromagnetische Phasenübergang* ist die thermisch bedingte Zustandsänderung ferromagnetischer Substanzen von der ferro- in die paramagnetische Phase.

Wie bereits erwähnt, wirkt die thermische Unordnung der spontanen magnetischen Ordnung entgegen. Genauer gesagt konkurriert der durch magnetische Ordnung entstandene Energiegewinn mit dem durch die thermische Bewegung resultierenden Entropiegewinn. Ein Verlust der spontanen Magnetisierung und damit der ferromagnetischen Eigenschaften des Materials entsteht beim Überschreiten einer stoffspezifischen kritischen Temperatur, der sogenannten ferromagnetischen Curie-Temperatur  $T_C^f$ . Oberhalb dieser Temperatur liegt nur noch paramagnetisches Verhalten vor mit Suszeptibilitäten, die in der Größenordnung von  $\chi = 10^{-6}$  liegen [KL92].

### 2.2.1 Die Zustandsgleichung

Zur Beschreibung des Übergangs von einem magnetisch geordneten zu einem ungeordneten Zustand lässt sich eine *magnetische thermodynamische Zustandsgleichung* definieren, die in Analogie zu der Funktion zur Beschreibung einer thermodynamischen flüssig-fest Zustandsänderung steht. Man geht aus von der *Gibbs'schen freien Enthalpie*  $G$  als Funktion der Temperatur  $T$  und des Magnetfeldes  $H$ . Es gilt

$$G(T, H) = U - TS - HM, \quad (2.9)$$

wobei  $U$  die innere Energie und  $S$  die Entropie bezeichnen. Von einem *Phasenübergang erster Ordnung* spricht man, wenn nach der Konvention von P. EHRENFEST der Ordnungsparameter

$$M = - \left( \frac{\partial G}{\partial H} \right)_T, \quad (2.10)$$

d.h. die Magnetisierung, einen Sprung aufweist. Wenn  $M$  stetig, aber nichtanalytisch verschwindet und die magnetische Suszeptibilität

$$\chi = - \left( \frac{\partial^2 G}{\partial H^2} \right)_T \quad (2.11)$$

singulär wird, dann spricht man von einem *Phasenübergang zweiter Ordnung* [Ehr33]. Hier durchläuft der magnetische Beitrag zur spezifischen Wärme ein Maximum bei der Übergangstemperatur  $T_C$  und die Suszeptibilität divergiert an diesem Punkt. Phasenübergänge zweiter Ordnung sind kontinuierliche Übergänge, bei denen keine latente Wärme frei wird.

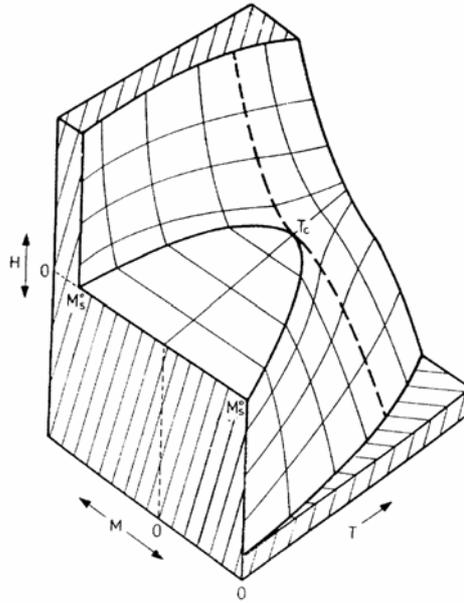


Abbildung 2.2: Schematisches Zustandsdiagramm eines idealisierten Ferromagneten als Funktion der Temperatur  $T$  und des äußeren Magnetfeldes  $H$ . Für  $H = 0$  tritt bei der Curie-Temperatur  $T_C$  ein Phasenübergang zweiter Ordnung als Funktion von  $T$  auf. Als Funktion von  $H$  hat man bei  $T < T_C$  für  $H = 0$  einen Phasenübergang erster Ordnung.

### 2.2.2 Der kritische Bereich der magnetischen Phasenumwandlung

Lange bevor die Austauschwechselwirkung als Ursache des Ferromagnetismus erkannt wurde, postulierte P. WEISS die Existenz eines „Molekularfeldes“, eines Magnetfeldes im Inneren des ferromagnetischen Materials, das typische Laborfelder um Größenordnungen übersteigt und proportional zur Magnetisierung ist. Damit war WEISS in der Lage, das Auftreten eines magnetischen Phasenübergangs zu deuten. Die ersten Zweifel kamen aber bald, da die experimentell gewonnenen Ergebnisse eine Diskrepanz zu dieser *Molekularfeldtheorie* aufwiesen. Es zeigte sich, dass bereits bei recht tiefen Temperaturen ( $T \ll T_C$ ) Spinnwellen, die zu einer Absenkung der mittleren Magnetisierung gegenüber dem aus der Molekularfeldtheorie folgenden Wert führen, berücksichtigt werden mussten. Darüber hinaus sind zeitlich fluktuierende räumliche Inhomogenitäten der Magnetisierung (*kritische Fluktuationen*) in der Nähe der Curie-Temperatur  $T_C$  zu beachten.

L. LANDAU zeigte in einem ersten phänomenologischen Ansatz, dass bei Phasenübergängen alle relevanten Größen wie die Magnetisierung  $M$ , die magnetische Suszeptibilität  $\chi$ , die spezifische Wärme  $c_H$ , die Korrelationslänge  $\xi$ , in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes ( $H = 0$ ) als Funktion der Temperatur  $T$  in der unmittelbaren Nähe von  $T_C$  einem Potenzgesetz folgen sollten (*Landau-Theorie*) [Lan37, GK80]. Die Landau-Theorie liefert die kritischen Exponenten ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  und  $\delta$ ) für die Molekularfeldtheorie (die kurzreichweitigen Fluktuationen werden vernachlässigt). Für die Sättigungsmagnetisierung  $M_S$ , die spezifische Wärme  $c_H$  und die Suszeptibilität erhält man im kritischen Bereich:

$$c_H = |T - T_C|^{-\alpha} \quad \text{Landau-Theorie: } \alpha = 0 \quad (2.12)$$

$$M_S(T) \propto (T - T_C)^\beta \quad \text{für } T < T_C \quad (2.13)$$

$$\chi(T) \propto 1/(T - T_C)^\gamma \quad \text{für } T > T_C \quad (2.14)$$

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

$$M_S(H) \propto H^{1/\delta} \quad \text{für } T = T_C \quad (2.15)$$

Die kritischen Exponenten sind miteinander durch Skalengesetze verknüpft.

$$\gamma = \beta(\delta - 1) \quad (2.16)$$

$$\alpha + 2\beta + \gamma = 2 \quad (2.17)$$

Im Rahmen der Molekularfeldtheorie ergeben sich für die kritischen Exponenten ganz bestimmte Werte, die jedoch zum Teil nur eine ungenügende Beschreibung experimenteller Ergebnisse erlauben. Bei einer genaueren Theorie müsste, anders als bei der Molekularfeldtheorie, die dimensionsunabhängig formuliert wurde, die Berücksichtigung von Raum- und Spindimension in Betracht gezogen werden. Die exakte analytische Herleitung der Temperaturabhängigkeit der Spontanmagnetisierung im Rahmen des *zweidimensionalen Ising-Modells* durch ONSAGER und YANG war ein großer Schritt in diese Richtung [Ons44, Yan52]:

$$M_{H=0}(T) = [1 - \sinh^{-4}(2J/k_B T)]^{1/8} \quad (2.18)$$

Der Zusammenhang zwischen der Austauschkonstanten  $J$  und der Curie-Temperatur  $T_C$  wird dabei durch die Beziehung:

$$k_B \cdot T_C = 2 \cdot [\ln(1 + \sqrt{2})]^{-1} \cdot J \approx 2,2692 \cdot J \quad (2.19)$$

bestimmt.

Seither ist es noch nicht gelungen, weitere wichtige Modelle *exakt* zu lösen. Vor allem im Rahmen der sogenannten *Renormierungsgruppentheorie* wurden jedoch leistungsfähige numerische Verfahren entwickelt, die dem fraktalen Charakter der kritischen Fluktuationen besonders angepasst ist [Wil79]. Es zeigte sich dabei, dass die kritischen Potenzgesetze der Landau-Theorie durchaus eine gute analytische Näherung der numerischen Resultate liefern, wenn für die kritischen Exponenten Werte eingesetzt werden, die von denen der Molekularfeldtheorie abweichen.

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

Eine ausführliche Zusammenstellung experimenteller Ergebnisse findet sich in [HK80, KL92]. Für weitere Vergleiche zu kritischen Exponenten zwischen Theorie und Experiment sowie zu unterschiedlichen Modellen wird auf [Lan37, GM74, KL92, KC68, GZJ77] verwiesen.

### 2.2.3 Ferro- und paramagnetische Phase

#### Die ferromagnetische Phase $T \ll T_C$

Mit Sinken der Temperatur sinkt auch der Entropiegewinn durch die thermische Bewegung. Damit steigt die spontane Magnetisierung nach der Bloch-Funktion, bis sie bei  $T = 0$  K die Sättigungsmagnetisierung erreicht. Nur am absoluten Nullpunkt wird die maximale Magnetisierung erreicht, da dort keine thermische Anregung möglich ist, die der spontanen Ordnung entgegen wirkt.

#### Die paramagnetische Phase $T \gg T_C$

Oberhalb der Curie-Temperatur zeigt das Material ein paramagnetisches Verhalten. Im paramagnetischen Bereich wird nicht mehr die Sättigungsmagnetisierung zu Beschreibung gewählt, sondern wie bei Paramagneten die Suszeptibilität  $\chi$ . Hier erhält man, anders als bei paramagnetischen Stoffen, durch Extrapolation der inversen Suszeptibilität die *paramagnetische Curie-Temperatur*  $\Theta$ . Eine gute Näherung im Hochtemperaturbereich  $T \gg T_C$  liefert für die meisten Ferromagneten das sogenannte *Curie-Weiss-Gesetz* [WO10]:

$$\chi = \frac{C}{T - \Theta} \quad (2.20)$$

Je nach Kristallstruktur des Magneten weicht die paramagnetische Curie-Temperatur  $\Theta$  von der ferromagnetischen Übergangstemperatur  $T_C$  ab (s. Abb. 2.3). Für alle Ferromagneten gilt  $\Theta > T_C$  [KL92, BBF<sup>+</sup>00].

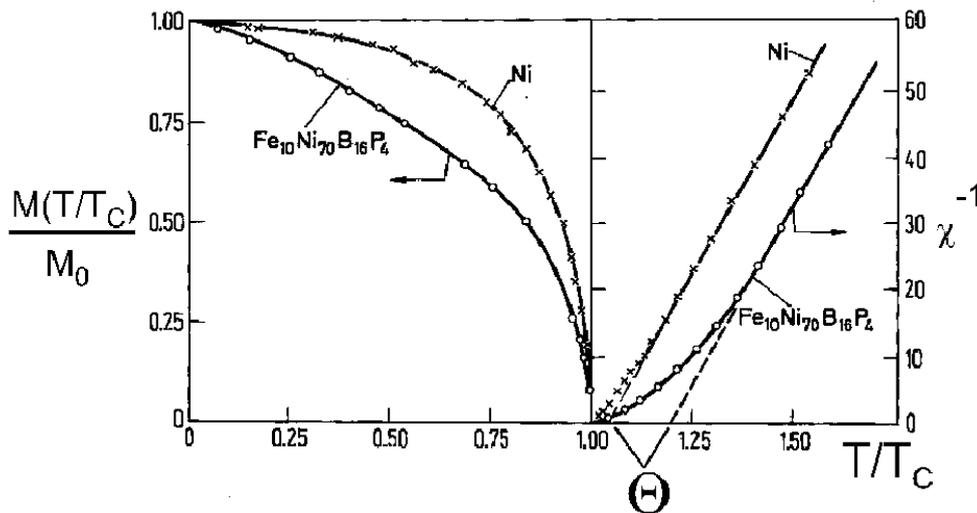


Abbildung 2.3: Temperaturabhängigkeit der charakteristischen magnetischen Größen am Beispiel kristallinen Nickels und einer amorphen FeNiBP-Legierung. Unterhalb von  $T_C$  ist die relative spontane Magnetisierung  $M_S(T)/M_0$  und oberhalb von  $T_C$  die inverse Suszeptibilität  $\chi^{-1}$  aufgetragen. Es sind qualitative Unterschiede bei  $T_C$  zu erkennen, trotz der weitgehend gleichen funktionalen Abhängigkeit beider Ferromagnete. Die Abweichung von der Curie-Weiss-Geraden ist oberhalb von  $T_C$  unterschiedlich stark ausgeprägt. Das führt zu unterschiedlich großen Differenzen zwischen ferromagnetischer  $T_C$  und paramagnetischer  $\Theta$  Curie-Temperatur [KL92].

## 2.3 Domänenstruktur

Trotz des Vorliegens einer spontanen Magnetisierung lassen sich ferromagnetische Stoffe durch Entmagnetisierung in einen *pauschal* unmagnetischen Zustand versetzen. In diesem Zustand zeigen sie keine Magnetisierung nach außen. Die Ursache dafür ist die Aufteilung des ferromagnetischen Stoffes in eine Vielzahl homogener magnetisierter Bereiche (Domänen) und magnetischer Anisotropien, die zu *hartmagnetischem* (Remanenz und Koerzitivfeld groß) und *weichmagnetischem* (Remanenz und Koerzitivfeld klein) Verhalten führen.

### 2.3.1 Beiträge der magnetischen freien Enthalpie

Um makroskopische Magnetisierungszustände und Magnetisierungsprozesse in ferro- und ferrimagnetischen Stoffen zu beschreiben, wurde eine Kontinuumstheorie entwickelt, die zwischen der Quantentheorie und der Molekularfeldtheorie einzuordnen ist. Die vor allem von LANDAU und LIFSCHITZ [Abr57] und BROWN [CJM<sup>+</sup>64, SUL72] entwickelte *Theorie des Mikromagnetismus* erlaubt die Berechnung von *Domänenstrukturen*, *Domänenwänden* und anderen Magnetisierungszuständen.

Ist  $\vec{M}_S$  der Vektor der spontanen Magnetisierung, so ergibt sich für die *magnetische freie Enthalpie* im Minimum:

$$G = \int (F_A + F_{H_S} + F_K + F_M + F_{H_{Ext}}) d^3r \quad (2.21)$$

Sie setzt sich aus folgenden Einzelbeiträgen zusammen:

**Austauschenergie**  $F_A$ : wird durch den Heisenbergschen Austauschparameter  $J$  bestimmt, mit  $F_A \propto J(\nabla\vec{M}_S)^2$ .

**Streufeldenergie**  $F_{H_S}$ : wird durch inhomogene Magnetisierungszustände und Oberflächenladungen erzeugt. Die Streufeldenergiedichte ist proportional zum Quadrat des durch die Ladungen verursachten Streufeldes  $H_S$ .

**Magnetische Kristallanisotropie**  $F_K$ : die Ursache dieser anisotropen Energie bei Übergangsmetallen (Co, Fe, Ni) ist auf die Spin-Bahn-Kopplungsenergie zurückzuführen. Die über die Austauschenergie gekoppelten Spins üben aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung ein Drehmoment auf die Bahnmomente aus, so dass diese eine Drehung erfahren. Dies führt zu einer Änderung der Überlappung der Elektronenwolken und damit einer Änderung der gesamten Kristallenergie.

**Magnetoelastische Kopplungsenergie**  $F_M$ : beruht darauf, dass ferromagnetische Substanzen bei der Magnetisierung eine Verkürzung oder eine Verlängerung erfahren (*Magnetostriktion*). Wie bei der Kristallanisotropie ist dies auf die Spin-Bahn-Kopplung zurückzuführen. Ebenso kann das Auftreten einer mechanischen Spannung die Beeinflussung der Richtung der spontanen Magnetisierung verursachen.

**Magnetostatische Energiedichte**  $F_{H_{Ext}}$ : Abhängigkeit von  $M_S$  im äußeren Feld  $H_{Ext}$ . Hier gilt  $F_{H_{Ext}} \propto \vec{M}_S \cdot \vec{H}_{Ext}$ .

Ob eine Substanz weich- oder hartmagnetisch ist, bestimmen die Beiträge der Kristallanisotropie  $F_K$  und der magnetoelastischen Kopplungsenergie  $F_M$ . Starke Kristallanisotropie bzw. starke mechanische Spannungen führen dazu, dass das Material in eine Vorzugsrichtung leichter magnetisierbar ist als in die anderen. Diese bevorzugten Richtungen werden als *leichte* Magnetisierungsrichtungen bezeichnet. Substanzen, die einmal in eine Vorzugsrichtung magnetisch ausgerichtet sind, sind nur schwer ummagnetisierbar. Solche Substanzen nennt man *Permanentmagneten*, die ein magnetisch *hartes* Verhalten aufweisen. Magnetisch *weiche* Materialien ohne ausgeprägte Vorzugsrichtungen lassen sich auf Grund fehlender Verspannungen oder Anisotropien leichter ummagnetisieren.

Die Magnetisierung  $M$  eines solchen Hartmagneten im äußeren Feld  $H$  ist in Abb. 2.4 dargestellt. Bei dieser Art der Darstellung spricht man von einer Hysteresekurve. Die Ummagnetisierungsprozesse des Ferromagneten werden durch die Kristallanisotropien und inneren Verspannungen des Materials behindert. Daher bleibt nach Anlegen eines äußeren Feldes die Remanenz-Magnetisierung  $M_R$  übrig. Erst durch das Koerzitivfeld  $H_C$  kann die Magnetisierung auf Null gebracht werden.

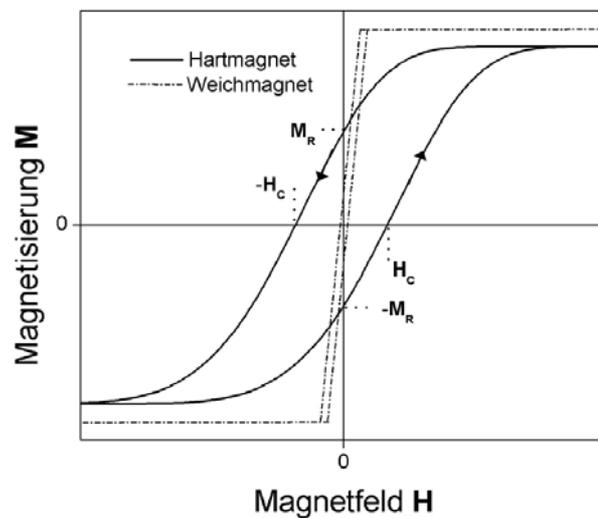


Abbildung 2.4: Hysteresekurve eines Hart- und eines Weichmagneten. Nach Anlegen eines Feldes bleibt bei Hartmagneten eine Remanenz-Magnetisierung  $M_R$ . Es wird ein Gegenfeld, das Koerzitivfeld  $H_C$  benötigt, um wieder in den unmagnetisierten Zustand zu gelangen. Dagegen folgt die Magnetisierung des Weichmagneten (hier:  $\mu$ -Metall) dem externen Magnetfeld sehr schnell, die umschlossene Fläche ist deutlich kleiner. Bei sehr hohen Feldern kommt es zur Sättigung, da alle magnetischen Momente parallel ausgerichtet sind.

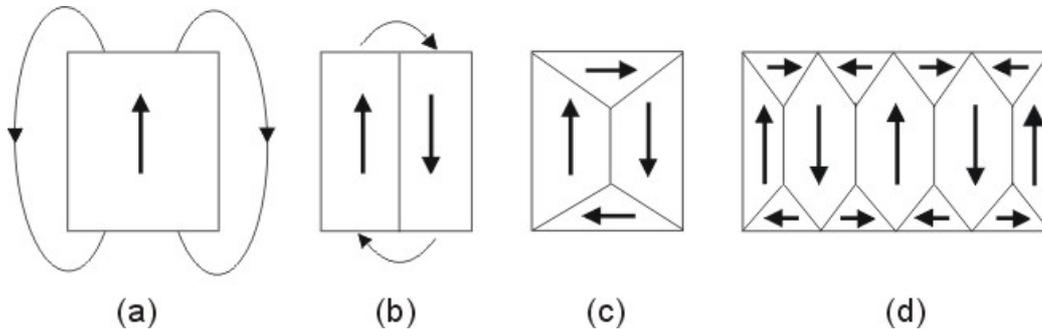


Abbildung 2.5: *Aufteilung in Domänen bei Ferromagnetika*. Streufeldminimierung durch die Ausbildung von Domänen. (a) und (b) Die Feldlinien verlaufen durch den Außenraum. (c) und (d) Durch die Entstehung von prismenförmigen Abschlussbereichen reduziert sich das Streufeld.

### 2.3.2 Magnetische Domänen und Bloch-Wände

Lokale *Domänen* in Ferromagnetika, in denen die Sättigungsmagnetisierung erreicht wird, werden *Weiss-Bereiche* oder *-Bezirke* genannt (nach PIERRE WEISS). Die Magnetisierung innerhalb einer solche Domäne verläuft parallel zu einer durch die Kristallanisotropie bzw. die mechanische Verspannung definierten leichten Richtung. Die Sättigungsmagnetisierungen verschiedener Domänen können unterschiedliche Richtungen aufweisen.

Bei Ferromagnetika liegt die Ursache für die Aufspaltung der magnetischen Struktur in mehrere Bereiche in dem Streben, die Gesamtenergie zu minimieren. Die Minimierung des Streufeldes im Außenraum und damit der Beitrag von  $F_{H_S}$  (s. 2.3.1) wird durch den Zerfall in mehrere Domänen erreicht (Abb. 2.5) [KIT99].

Der Übergangsbereich zwischen zwei solchen Bereichen wird *Domänenwand* genannt. Liegen zwei Domänen antiparalleler Richtung nebeneinander, so rotiert in ihr die Ausrichtung der Spins von der einen Ausrichtung der Domäne zur der anderen. Es gibt zwei verschiedenen Wandtypen, je nach Art der Drehung, die die Spins erfahren. Verläuft die Rotation in der Ebene der Wand, so spricht man von einer streufeldfreien *Bloch-Wand* [Blo32]. Ist die Drehung der Spins senkrecht zur Domänenwand wie bei dünnen Schichten, wo die Bloch-Wände nicht mehr energetisch günstig sind, dann spricht man in diesem Fall von *Néel-Wänden* [KL92].

Einer Spinauslenkung aus der kollektiven Richtung wirkt die Austauschenergie entgegen, die somit eine möglichst breite Domänenwand anstrebt. Je schmaler aber die Domänenwände sind, um so kleiner wird die Verspannungsenergie. So-

mit werden die Dimensionen und die Anzahl der Domänen wie auch die Dicke der Bloch-Wände durch die Kristallanisotropie bzw. die Verspannungen und die Austauschenergie bestimmt.

F. BLOCH [Blo32] lieferte die erste Beschreibung der Domänenwände. Eine genauere auch theoretische Behandlung erfolgte durch L. NÉEL, L. LANDAU und E. LIFSCHITZ [LL35, Néé44]

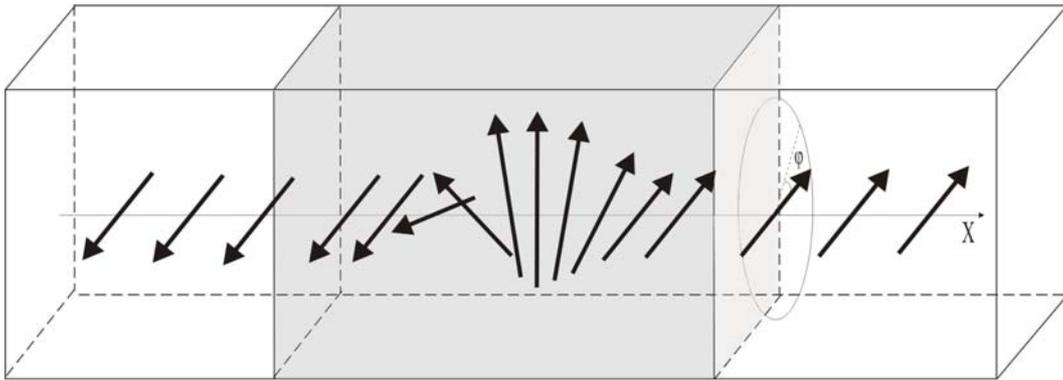


Abbildung 2.6: *Ausrichtung der Spins in einer Bloch-Wand.* Die Magnetisierung erfolgt parallel zur leichten Richtung. Die Ausrichtung wechselt durch Spinrotation von einer Orientierung in die andere.

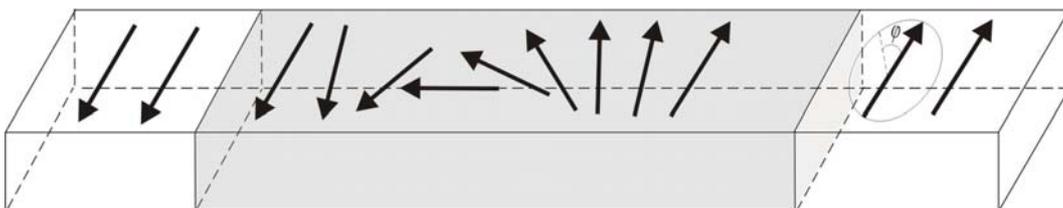


Abbildung 2.7: *Ausrichtung der Spins in einer Néel-Wand.* Die Néel-Wände rufen nur Volumenladungen hervor und somit werden zusätzliche Beiträge zur Streufeldenergie vermieden [KL92].

## 2.4 Ferromagnetismus in der flüssigen Phase

In der Natur kommen flüssige Ferromagnete nicht vor. Das liegt daran, dass bei allen bekannten ferromagnetischen Stoffen die Curie-Temperatur  $T_C$  weit unterhalb des Schmelzpunktes zu finden ist (einige hundert Kelvin). Die magnetische Ordnung wird schon weit vor dem Erreichen der flüssigen Phase durch die Zunahme der thermischen Energie aufgelöst.

### 2.4.1 Magnetische Ordnung in der Flüssigkeit

Theoretisch ist aber die Existenz von Ferromagnetismus in der flüssigen Phase nicht ausgeschlossen. Die mittlere Verweildauer der itineranten Elektronen im 3d-Band bei Übergangsmetallen beträgt etwa  $10^{-15} - 10^{-16}$ s, und die Zeitskala magnetischer Phänomene wie kollektiver Anregungen liegt bei  $10^{-13}$ s. In einer Flüssigkeit finden Sprung- und Austauschprozesse von Atomen in Zeiträumen größer als  $10^{-12}$ s statt [Bör96].

K. HANDRICH folgte bereits 1969, dass aufgrund dieser unterschiedlichen Zeitskalen der verhältnismäßig langsamen atomaren und der schnellen elektronischen Bewegungen, was den Elektronen eine gewissermaßen instantane Einstellung auf die Atompositionen und auf die langsamen Spinfluktuationsmoden erlaubt, eine Existenz von Ferromagnetismus in der Flüssigkeit möglich ist [Han69].

Die Idee, nach magnetischer Ordnung in flüssig-unterkühlten Metallschmelzen zu suchen, hatte Y. NAKAGAWA in den 50er Jahren und beobachtete so bei verschiedenen vollständig mischbaren Systemen ein Curie-Weiss-Verhalten mit einer endlichen Curie-Temperatur  $T_C > 0$  K [Nak56, Nak59]. G. URBAIN und E. ÜBELACKER gelangten in den 60er Jahren wesentlich tiefere Unterkühlungen reiner Metalle. So konnte die paramagnetische Curie-Temperatur von  $\theta \approx 1400$ K für reines Kobalt durch eine Unterkühlung um  $\Delta T \approx 200$ K bestimmt werden [UU67].

Magnetisch ordnen ließ sich die superfluide  $^3\text{He-A}_1$ -Phase unterhalb von 2,7mK, jedoch trat eine parallele Ausrichtung der  $^3\text{He}$  Kernspins nur in Anwesenheit eines äußeren Magnetfeldes ein, und somit handelt es sich dabei nicht um Ferromagnetismus [Leg77, PW78].

D. PLATZEK et al. gelang es 1994, eine Metallschmelze unter die Curie-Temperatur der festen Phase zu unterkühlen [PNH<sup>+</sup>94]. Dabei wurde, um eine frühzeitige Kristallisation zu vermeiden, die elektromagnetische Levitation angewandt. Den ersten Nachweis einer ferromagnetischen Ordnung in einer flüssigen Metallschmelze brachten T. ALBRECHT et al. 1997 [ABF<sup>+</sup>97].

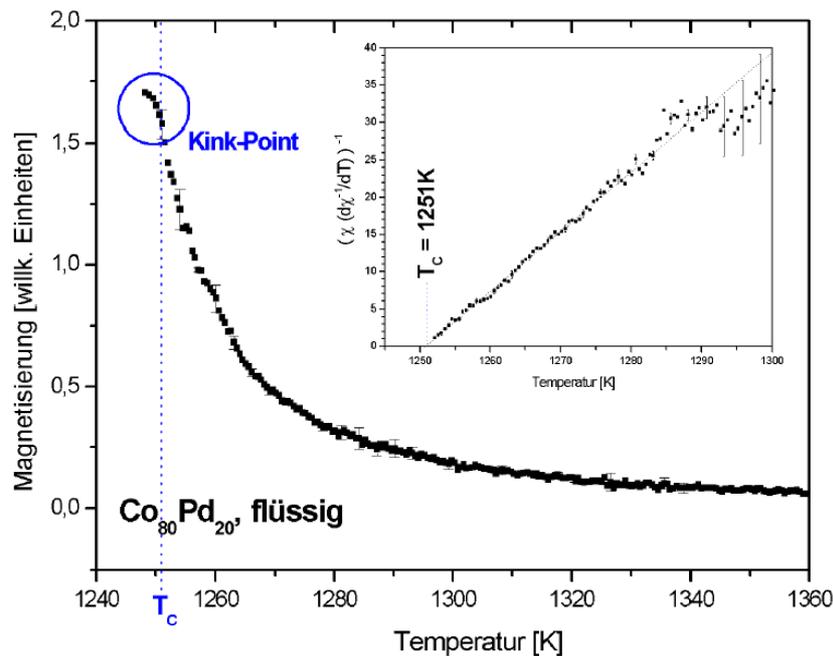


Abbildung 2.8: Die Magnetisierung einer  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Probe, im Insert ist  $[\chi \cdot d(\chi^{-1})/dT]^{-1}$  gegen die Temperatur aufgetragen. Die Messung wurde mit einem „Flux-Gate“-Sensor an einer 1mm großen flüssigen unterkühlten  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Kugel vorgenommen. Wird  $T_C$  unterschritten, kommt es zu einem plötzlichen Abknicken des Messsignals, dem sogenannten Kink-Point. Die Ursache hierfür liegt in der Minimierung der Streufeldenergie durch Domänenausbildung [Büh98].

## 2.4.2 Kink-Point

In den von T. Albrecht et al. geführten Experimenten wurde die Magnetisierung einer  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Probe in einem äußeren Feld in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen. In Abb. 2.8 werden diese Messungen dargestellt. Die gemessene Magnetisierung wurde gegen die Temperatur aufgetragen. Wie bei den klassischen Ferromagneten ist ein Anstieg der Magnetisierung mit Abfallen der Temperatur zu erkennen. Sobald  $T_C$  unterschritten wird, kommt es zu einem Abknicken des Messsignals, dem sogenannten *Kink-Point*. Ein solches Verhalten ist typisch für ferromagnetische Substanzen. Die Ursache dafür liegt in der Minimierung der Streufeldenergie durch Ausbildung einer spontanen magnetischen Struktur. Wenn die spontane Magnetisierung  $M_S$  einer ferromagnetischen Substanz deutlich stärker wird als das extern angelegte Feld, dann kompensiert die entstandene Struktur das Streufeld vollständig. Damit wird mit Streufeldmessungen eine weitere Zunahme der Magnetisierung nicht mehr messbar. Das Auftreten des Kink-Points

bei der Curie-Temperatur  $T_C$  ist in Abb. 2.8 deutlich zu erkennen. Das Erreichen der ferromagnetischen Phase wird somit durch den Kink-Point angekündigt. Im Insert ist die Bestimmung der ferromagnetischen Curie-Temperatur  $T_C = 1251\text{K}$  nach J.E. NOAKES und A.A. ARROT dargestellt.

### 2.4.3 Erwartete Magnetisierungsstruktur in der flüssigen Phase

Neben Theorie und Experiment hat sich in den letzten Jahrzehnten dank zunehmender Leistungsfähigkeit der Computer die Computersimulation als dritter wichtiger Zugang zur Untersuchung von Flüssigkeiten etabliert [AT89]. Die thermodynamischen und strukturellen Eigenschaften eines kleinen Systems (typischerweise einiger hundert Teilchen) mit gegebenem Wechselwirkungspotential können im Prinzip in einem solchen „numerischen Experiment“ ohne zusätzliche Näherungen berechnet werden. Es ist mittlerweile üblich geworden, die Qualität von Theorien im Vergleich mit Computersimulationen zu beurteilen. So können auf diese Weise auch Potentialmodelle für reale Flüssigkeiten mit dem Experiment verglichen werden. Aber auch die Computersimulationen haben natürlich ihre Grenzen, die aus der endlichen Rechenzeit und den damit verbundenen statistischen Fehlern sowie aus der endlichen Systemgröße resultieren.

Anfang der 90er Jahre konnten WIE und PATEY [WP92a,WP92b] zum ersten Mal im Rahmen einer Monte-Carlo-Simulation von weichen dipolaren Kugeln zeigen, dass dipolare Kräfte allein in der Lage sind, eine langreichweitige Orientierungsordnung in einer räumlich ungeordneten Flüssigkeit aufrechtzuerhalten. Darüber hinaus erkannten sie, dass diese Phase ferromagnetisch ist, d.h. eine spontane Magnetisierung aufweist. Eine solche Phase hatten schon vorher SANO und DOI [SD83] in einer Meanfieldtheorie des dipolaren Gittergases gefunden. Inzwischen haben auch andere Arbeitsgruppen solche Beobachtungen in Monte-Carlo-Simulationen für *dipolare harte Kugeln*<sup>4</sup> und für die *Stockmayerflüssigkeit*<sup>5</sup> bestätigt.

---

<sup>4</sup> Bei theoretischen Untersuchungen von Flüssigkeiten werden die Teilchen häufig als harte Kugeln modelliert, um den numerischen Aufwand zu reduzieren. Dabei werden die Wechselwirkungen zwischen Teilchen auf die reine sterische Abstoßung vereinfacht. Weiterhin werden für die harten Kugeln Effekte, die auf eine unregelmäßige Form der Teilchen und/oder eine Rauigkeit der Teilchenoberfläche zurückzuführen sind, vernachlässigt.

<sup>5</sup> Ein häufig betrachtetes System ist die sogenannte Stockmayerflüssigkeit (Stockmayerfluid), in dem die reine *Dipol-Dipol-Wechselwirkung* durch ein *Leonard-Jones-Potential* ergänzt wird. Im Gegensatz zu dipolaren harten Kugeln berücksichtigt dieses Modell zusätzlich die in realen Flüssigkeiten auftretenden Dispersionskräfte, die zu einer abfallenden attraktiven Wechselwirkung führen. Hier können zusätzlich auch noch Orientierungsfluktuationen auftreten, und somit besitzt die Stockmayerflüssigkeit eine erhöhte Anzahl an Freiheitsgraden.

Es wurden auch eigene Dichtefunktionaltheorien zur Untersuchung dieser Phase vorgeschlagen. Schließlich legen auch weitere Arbeiten [ZW94, GD94(a), GD94(b), GD96, GD98] mit einfachen Ansätzen, für die die freie Energie des dipolaren Systems minimiert wurde, die Existenz einer ferromagnetischen<sup>6</sup> Flüssigkeit nahe [Kla98].

Von den oben erwähnten Arbeiten, in denen Phasenübergänge untersucht wurden, ist die modifizierte *Dichtefunktionaltheorie* von GROH und DIETRICH [GD94(a), GD94(b), GD96, GD98] die am ehesten als „mikroskopisch“ zu bezeichnende Theorie, in der für die Stockmayerflüssigkeit ein komplettes Phasendiagramm erstellt wurde. Die Aussage dieses Phasendiagramm ist, dass der Übergang von der isotropen zur ferromagnetischen Flüssigkeit bei tiefen Temperaturen mit einem Dichtesprung verknüpft ist, während er bei hohen Temperaturen kontinuierlich ist. Die Dichtefunktionaltheorie von GROH und DIETRICH basiert auf einer Approximation der Paarverteilungsfunktion durch den *Boltzmannfaktor*.

GROH und DIETRICH haben Berechnungen zu der Magnetisierungsstruktur einer Flüssigkeit vorgenommen, die der in dieser Arbeit behandelten Proben phänomenologisch gleicht. Sie haben die Eigenschaften einer solchen ferromagnetischen Flüssigphase im Rahmen einer Dichtefunktionaltheorie untersucht und gezeigt, dass die lange Reichweite der dipolaren Wechselwirkungen dabei eine wichtige Rolle spielt.

In das von GROH und DIETRICH angewandte Modellsystem und deren theoretischen Ansatz wird das Verhalten der Flüssigkeit einer Stockmayerflüssigkeit eingepflegt. Die Stockmayerflüssigkeit wird als aus harten Kugeln mit fest eingebetteten Punktdipolen bestehend gesehen, die über paarweise Dispersion und Dipol-Dipol-Kräfte wechselwirken. Die Kugeln sind in einem Würfel auf festen Positionen platziert. Die Berechnung der sich anstellenden Ausrichtung der Dipole wird von einer zufälligen Anordnung gestartet. In realen Flüssigkeiten existieren aufgrund der Fluktuationen der Elektronendichte in den Teilchen stets Dispersionskräfte, die zu einer attraktiven Wechselwirkung führen, die mit dem inversen sechsten Potential des Teilchenabstandes abfällt [Gro96].

Das angewandte Wechselwirkungspotential  $w = w_{LJ} + w_{dip}$  ist die Summe des *Lennard-Jones Potentials*:

$$w_{LJ}(r_{12}) = 4\epsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r_{12}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r_{12}} \right)^6 \right] \quad (2.22)$$

<sup>6</sup> oder einer ferroelektrischen - solange keine freien Ladungsträger in der Flüssigkeit vorkommen.

und des *Dipolpotentials*:

$$w_{dip}(r_{12}, \omega, \omega') = \frac{m^2}{r_{12}^3} [\hat{m}(\omega) \cdot \hat{m}(\omega') - 3(\hat{m}(\omega) \cdot \hat{r}_{12}) \times (\hat{m}(\omega') \cdot \hat{r}_{12})] \Theta(r_{12} - \sigma). \quad (2.23)$$

Der „Teilchendurchmesser“  $\sigma$  gibt den Abstand an, bei dem  $w_{LJ}(r) = 0$  wird, und der Parameter  $\varepsilon$  bestimmt die Tiefe des Minimums von  $w_{LJ}(r)$ . Der steile Anstieg von  $w_{LJ}(r)$  bei kleinen Abständen  $r \approx \sigma$  berücksichtigt die kurzreichweitige Abstoßung aufgrund des Pauli-Prinzips. In dem dipolaren Anteil des Wechselwirkungspotentials zwischen zwei Teilchen mit dem Abstandsvektor  $r_{12}$  und den Orientierungen  $\omega = (\theta, \varphi)$  und  $\omega' = (\theta', \varphi')$  ist  $m$  der Beitrag des Dipolmoments und  $\hat{m}$  und  $\hat{r}_{12}$  sind Einheitsvektoren. Bei kurzen Entfernungen wird die Wechselwirkung (das Dipolmoment) durch die *Heavisidefunktion*  $\Theta(r_{12} - \sigma)$  beim Teilchendurchmesser  $\sigma$  abgeschnitten [Gr96,GD98].

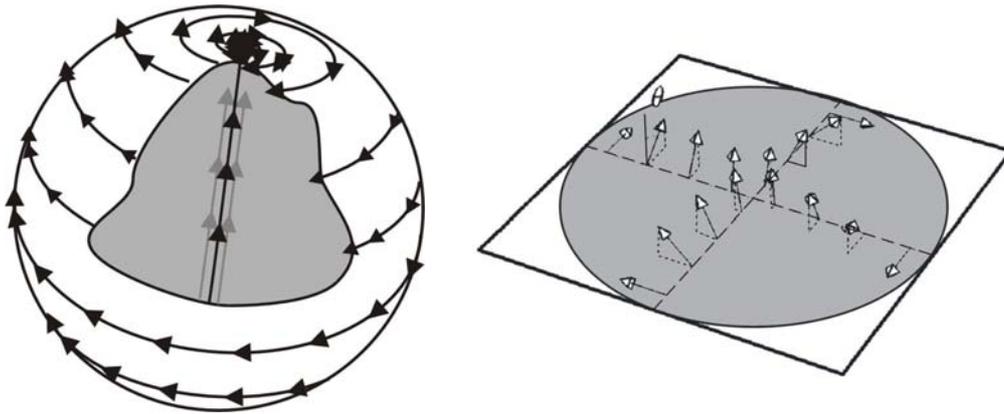


Abbildung 2.9: Durch Computersimulation erhaltene Magnetisierungsstruktur nach GROH und DIETRICH für eine flüssige kugelförmige Probe. Links: Erwartet wird eine Vortex-Struktur, bei der die Momente an der Oberfläche parallel zu einem imaginären Äquator angeordnet sind. Die Magnetisierungsvektoren verlaufen an der Wirbelachse parallel zu dieser, von einem Pol zum anderen. Rechts: Die Ausrichtung der Spins im Inneren der Proben dreht sich von der am Äquator kontinuierlich zur Polausrichtung.

In festen Ferromagneten haben die Wände zwischen angrenzenden Domänen eine mikroskopische Dicke (d.h. sie skalieren nicht mit der Systemgröße), die durch die Konkurrenz zwischen der aus der Spinkopplung resultierenden Austauschenergie und der aufgrund der Gitterstruktur resultierenden Anisotropieenergie, die

die leichte Richtung für die Magnetisierung verursacht, bestimmt wird. Da es keine Gitteranisotropie in flüssigen Ferromagneten gibt, vermuteten folglich schon de GENNES und PINCUS [GP69] dass es dort auch keine Domänenwände gäbe. Die Berechnungen von GROH und DIETRICH ergaben eine *Vortex-Struktur*, bei der die Momente an der Oberfläche parallel zu einem imaginären Äquator angeordnet sind (Abb. 2.9). An dem obersten und untersten Pol der Probe entstehen *magnetische "Punktdefekte"*. Der Absolutwert der Magnetisierung verschwindet in den Kernen dieser "Defekte", deren Größe mit der Systemgröße skaliert. An der Wirbelachse verlaufen die Magnetisierungsvektoren parallel zu dieser, von einem Pol zum anderen. Im Inneren der Probe dreht sich die Ausrichtung der Spins von der Ausrichtung am Äquator kontinuierlich zur Polausrichtung. Im Längsschnitt käme dies einer die ganze Probe durchsetzenden Bloch-Wand gleich. Das Streufeld wird auf diese Weise so optimal minimiert, dass alle Feldlinien im Inneren der Probe verlaufen.

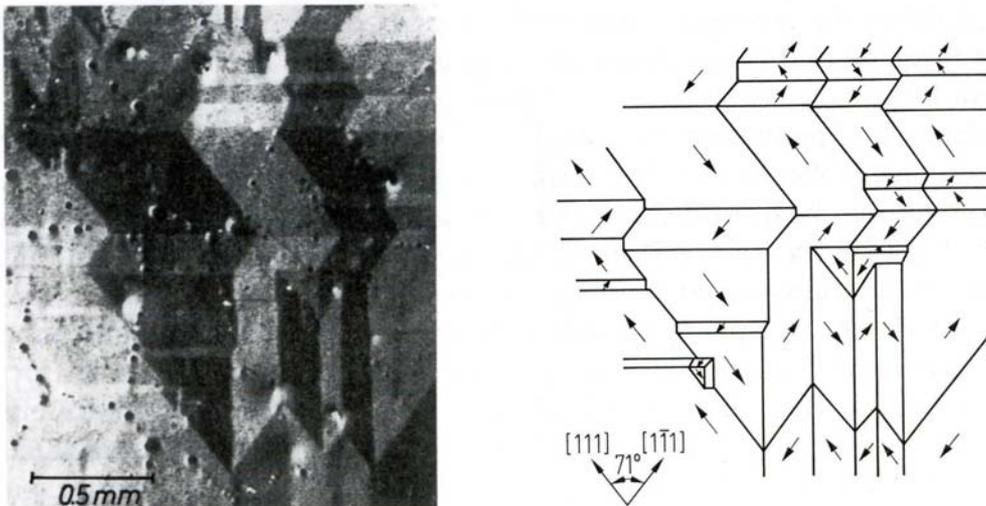


Abbildung 2.10: Domänenstruktur bei festen Ferromagneten. Links: Magneto-optische Kerr-Effekt-Abbildung der Domänenstruktur auf der (100)-Ebene eines Ni-Einkristalls. Rechts: Schematische Darstellung [BS87].

Auch der Einfluss induzierter Außenfelder auf die Magnetisierungsstruktur wurde simuliert. Im schwachen äußeren Feld, normal zur Oberfläche gerichtet, wird die Wirbelachse parallel zur Feldrichtung ausgerichtet und die gesamte Struktur ist der in einem Null-Feld ähnlich. Für stärkere Felder rotiert die Magnetisierung zunehmend in die Feldrichtung, bis ein Übergang zu einem fast homogenen magnetisierten Zustand stattfindet, und zwar an einer kritischen Feldstärke, jenseits derer die Wirbelstruktur verloren geht.

Bei der Bildung der ferromagnetischen Ordnung in metallischen flüssigen Ferromagneten spielen kurzreichweitige Austauschwechselwirkungen eine wichtige Rolle. Dennoch sind dipolare Wechselwirkungen auch weiterhin präsent und wie in festen Ferromagneten entscheidend für die Bildung der Domänenstruktur. Es werden für diese Systeme starke Ähnlichkeiten mit dem von GROH und DIETRICH errechneten Verhalten dipolarer Flüssigkeiten erwartet. Es kann spekuliert werden, dass die Domänenstruktur wegen der höheren Symmetrie im Vergleich zu einem Würfel innerhalb einer Sphäre zwar auch eine Wirbelachse hat, aber keine Domänenwände. Die Domänen wären dann mit Streufeldmessungen nicht voneinander zu unterscheiden.

## 2.5 Magneto-optischer Kerr-Effekt (MOKE)

Im Allgemeinen bezieht sich der Begriff Magnetooptik auf den Einfluss der Magnetisierung auf die Emission, Absorption und Ausbreitung von Licht in Materie. Neben dem *magneto-optischen Kerr-Effekt* zählen dazu Phänomene wie der *Faraday-Effekt*, der *lineare* und *zirkulare Dichroismus*, die magnetfeldinduzierte Doppelbrechung (*Voigt-* und *Cotton-Mouton-Effekt*) sowie nichtlineare magneto-optische Effekte.

Der erste magneto-optische Effekt wurde von MICHAEL FARADAY 1845 entdeckt, als er die Rotation des Polarisationsvektors von linear polarisiertem Licht bei der *Transmission* durch Bleiglas beobachtete. Der magneto-optische Kerr-Effekt wurde von JOHN KERR 1876 beschrieben. Als **magneto-optischen Kerr-Effekt (MOKE)** bezeichnet man die Drehung der Hauptpolarisationsebene von polarisiertem Licht bei der *Reflexion* an magnetischen Oberflächen. Der Kerr-Effekt ermöglicht Rückschlüsse auf magnetische Eigenschaften von Oberflächen und bietet eine berührungsfreie Methode der Untersuchung, die auch als Basis für die vorliegende Arbeit diene.

### 2.5.1 Phänomenologische Beschreibung

Im Rahmen einer makroskopischen Theorie kann man zur Beschreibung des Kerr-Effekts das linear polarisierte einfallende Licht als Superposition zweier gegenläufig zirkular polarisierter Wellen gleicher Phasenlage und Amplitude auffassen. Man kann dann die Veränderung des Polarisationszustandes als Folge einer Doppelbrechung an der Grenzfläche betrachten. So erfährt jede der beiden Komponenten bei der Reflexion eine unterschiedliche Absorption und Phasenverschiebung. Im Allgemeinen ergibt die Superposition der veränderten Vektoren des elektrischen Feldes eine elliptische Polarisation.

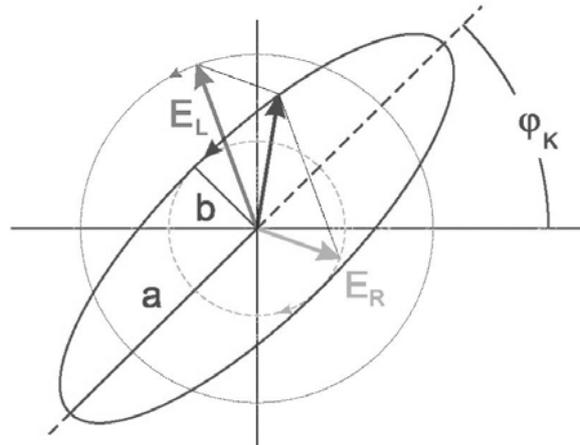


Abbildung 2.11: *Kerr-Rotation*. Nach der Reflexion ergibt die Superposition der zirkularen Moden  $E_L$  und  $E_R$  eine Elliptizität und eine Drehung um den Winkel  $\varphi_K$  gegenüber der Polarisationssebene des einfallenden Lichtes (horizontal).

Schematisch lassen sich die Komponenten des reflektierten Lichtes wie in Abb. 2.11 darstellen. Mit  $E_L$  und  $E_R$  werden die Amplituden der zirkularen Moden des elektrischen Feldes bezeichnet. Als *Kerr-Rotation*  $\varphi_K$  wird der Winkel zwischen der Polarisationssebene des einfallenden Lichtes und der großen Hauptachse des elliptisch polarisierten Lichtes definiert. Die Elliptizität wird durch  $\varepsilon_K = a/b$  definiert, wobei  $a = |E_L + E_R|$  und  $b = |E_L - E_R|$  die Beiträge der großen bzw. kleinen Halbachse der Ellipse sind. Zusammengefasst werden die beiden Größen zum komplexen *Kerr-Winkel*  $\Phi_K$ :

$$\Phi_K = \varphi_K + i\varepsilon_K \quad (2.24)$$

Die Wechselwirkung einer magnetischen Substanz mit einer elektromagnetischen Welle (Licht) wird durch die folgenden *Materialgleichungen* beschrieben:

$$\vec{D} = \tilde{\varepsilon} \cdot \vec{E} \quad (2.25)$$

$$\vec{j} = \tilde{\sigma} \cdot \vec{E} \quad (2.26)$$

Das *dielektrische Gesetz* (2.25) beschreibt die Veränderung des  $E$ -Vektors ( $\vec{E}$ ) des eingestrahlt Lichtes durch den Dielektrizitätstensor  $\tilde{\varepsilon}$  des magnetischen Materials zur dielektrischen Verschiebung  $\vec{D}$  des reflektierten Lichtes. Die Elemente des *Leitfähigkeitstensors*  $\tilde{\sigma}$  bestimmen den Zusammenhang zwischen der elektrischen Stromdichte  $\vec{j}$  und der elektrischen Feldstärke. Um anisotrope Eigenschaften eines Mediums behandeln zu können, ist  $\tilde{\varepsilon}$  tensoriell, und um Dispersion und Absorption zu beschreiben, komplex. Die Magnetisierungsabhängig-

keit des Dielektrizitätstensors  $\tilde{\varepsilon}$  im Bereich optischer Wellenlängen ist für den Kerr-Effekt von grundlegender Bedeutung. Die allgemeine Form von  $\tilde{\varepsilon}$  für kubische Materialien wird aus Symmetrieüberlegungen wie folgt beschrieben:

$$\begin{aligned} \tilde{\varepsilon} = \varepsilon & \begin{pmatrix} 1 & iQM_3 & -iQM_2 \\ -iQM_3 & 1 & iQM_1 \\ iQM_2 & -iQM_1 & 1 \end{pmatrix} \\ & + \begin{pmatrix} B_1M_1^2 & B_2M_1M_2 & B_2M_1M_3 \\ B_2M_1M_2 & B_1M_2^2 & B_2M_2M_3 \\ B_2M_1M_3 & B_2M_2M_3 & B_1M_3^2 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.27)$$

mit  $Q$  : Voigt-Konstante  
 $B_1, B_2$  : Materialkonstanten  
 $M_i$  : Magnetisierungsvektor

Verantwortlich für die magnetisierungsabhängige Drehung des Polarisationsvektors des Lichtes ist der erste Term dieser Gleichung. Die auftretende Elliptizität und die Änderung der Polarisationssebene wird von der komplexen Voigt-Konstante  $Q$  beschrieben.

Der zweite Term der Gleichung (2.27) beschreibt die magnetisch induzierte Doppelbrechung (Voigt-Effekt). Die Komponenten des Magnetisierungsvektors gehen bei dieser Brechung quadratisch in die Gleichung ein. In kubischen Kristallen sind die komplexen und frequenzabhängigen Materialkonstanten  $B_1$  und  $B_2$  verschieden, in isotropen oder amorphen Medien jedoch gleich.

Werden die Termen höherer Ordnung vernachlässigt, so geht nur der erste Term des  $\tilde{\varepsilon}$ -Tensors in das dielektrische Gesetz ein. Für Effekte erster Ordnung ergibt sich dann:

$$\begin{aligned} \vec{D} = \tilde{\varepsilon} \cdot \vec{E} & = \varepsilon \begin{pmatrix} 1 & iQM_3 & -iQM_2 \\ -iQM_3 & 1 & iQM_1 \\ iQM_2 & -iQM_1 & 1 \end{pmatrix} \cdot \vec{E} \\ & = \varepsilon \cdot \vec{E} + i \cdot \varepsilon \cdot Q \cdot \vec{M} \times \vec{E} \end{aligned} \quad (2.28)$$

Bei der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie kommt es zu einer Drehung nur dann, wenn die Nichtdiagonalelemente von  $\tilde{\varepsilon}$  ungleich Null sind. Die fre-

quenzabhängige Voigt-Konstante  $Q$  ist ein Maß für die Drehung der Polarisationssebene. Daher ist auch der Kerr-Effekt frequenzabhängig. Zu einer Drehung, d.h. einem magnetisierungsabhängigen Beitrag zu  $\vec{D}$ , kommt es folglich nur, wenn das Vektorprodukt  $\vec{M} \times \vec{E}$  ungleich Null ist [HS98].

### 2.5.2 Klassische Beschreibung – Lorentz–Drude–Modell

Anschaulicher wird der Kerr-Effekt im Rahmen der klassischen *Lorentz-Drude-Theorie*, nach der die quasifreien Elektronen im Leitungsband der Metalle von der einfallenden elektromagnetischen Welle zu klassischen Dipolschwingungen parallel zum elektrischen Feldstärkevektor  $E$  angeregt werden. In erster Näherung kann man das Vektorprodukt  $\vec{M} \times \vec{E}$  aus der Gleichung (2.28) als Ursache für den Kerr-Effekt bezeichnen. Man kann sich dieses Vektorprodukt als eine *Lorentz-Kraft* vorstellen, die auf die vom einfallenden Licht angeregten Elektronen wirkt und eine zusätzliche Schwingungskomponente erzeugt, die zu einer Drehung der Schwingungsebene führt. Dies lässt sich durch folgende Schwingungsgleichung beschreiben [QB98]:

$$\frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} + \frac{m}{\tau} \frac{d\vec{r}}{dt} + m\omega_0^2 \vec{r} = -e\vec{E} - \frac{e}{c} \frac{d\vec{r}}{dt} \times \vec{B}_z \quad (2.29)$$

- mit  $e, m$  : Elektronenladung und -masse  
 $B_z$  : Externes Magnetfeld  
 $c$  : Lichtgeschwindigkeit  
 $\omega_0$  : Eigenfrequenz der Elektronen  
 $\tau$  : Relaxaktionszeit der Elektronen

In Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes  $B_z$  bewegen sich die Elektronen parallel zur Polarisationssebene des eingestrahlten Lichtes. Dabei bleibt auch der reflektierte Strahl in derselben Richtung polarisiert. Die reguläre Komponente der Reflexion wird als  $R_N$  bezeichnet. Beim Anlegen eines externen Magnetfeldes  $B_z$  induziert die Lorentz-Kraft eine zusätzliche Schwingungskomponente  $R_K$  senkrecht zur ursprünglichen Bewegung und senkrecht zum Magnetfeld. Die Überlagerung der beiden Komponenten der Reflexion  $R_N$  und  $R_K$  verursacht die magnetisierungsabhängige Drehung der Polarisationssebene (s. Abb. 2.13).

Das Lorentz-Drude-Modell ist für die Beschreibung des magneto-optischen Kerr-Effekts zwar anschaulich, ist aber auch problematisch, da im Falle ferromagnetischer Materialien der beobachtete Kerr-Effekt proportional zur Magnetisierung ist, statt zur magnetischen Induktion  $B$  wie im Lorentz-Bild. Die quadratischen magneto-optischen Effekte wie der Voigt-Effekt lassen sich mit diesem Modell

nicht erklären. Für eine mikroskopisch exakte Erklärung des Kerr-Effekts ist ein quantenmechanischer Ansatz notwendig.

### 2.5.3 Quantenmechanische Beschreibung – Atomares Modell

W. VOIGT fand heraus, dass nach der klassischen Beschreibung sehr große, jedoch real nicht vorhandene Magnetfelder nötig wären, um die beobachtete Drehung der Polarisationssebene zu erklären. Auch der von Heisenberg eingeführte Austauschformalismus konnte den Effekt nicht hinreichend beschreiben. Erst H.R. HULME gelang es 1932, mit der Spin-Bahn-Wechselwirkung der Elektronen die Drehung bei Reflexion an ferromagnetischen Substanzen zu beschreiben [Hul32].

Die physikalische Ursache der magneto-optischen Effekte ist das Zusammenwirken der Austauschspaltung der Elektronen mit entgegengesetztem Spin in ferromagnetischen Materialien und der Spin-Bahn-Wechselwirkung. Die makroskopischen optischen Konstanten wie der Dielektrizitätstensor und der Leitfähigkeitstensor müssen im Rahmen der mikroskopischen Theorie mit der durch die Austauschwechselwirkung aufgespaltenen elektronischen Bandstruktur und damit der Magnetisierung verbunden werden. Die Nichtdiagonalelemente des Dielektrizitätstensors geben die Differenz der Brechungsindizes für rechts- und linkspolarisiertes Licht an. Im Ferromagneten liegt dieser Verknüpfung ein Ungleichgewicht der Anregungen von Elektronen beider Spinsorten zugrunde, das aus der Kombination von Austauschspaltung und Spin-Bahn-Kopplung resultiert [Zwe97]. Die Wechselwirkungsprozesse beeinflussen die Elemente des Leitfähigkeitstensors  $\tilde{\sigma}$ , die den Kerr-Winkel  $\Phi_K$  wie folgt bestimmen:

$$\Phi_K = \frac{-\sigma_{xy}}{\sigma_{xx} \sqrt{1 - \frac{4\pi i}{\omega} \sigma_{xx}}} \quad (2.30)$$

Realteil  $\tilde{\sigma}'(\omega)$  und Imaginärteil  $\tilde{\sigma}''(\omega)$  des Leitfähigkeitstensors sind über die *Kramers-Kronig-Relation* verknüpft. Der dispersive Anteil des Leitfähigkeitstensors wird durch den Realteil der Nichtdiagonalelemente beschrieben, während der Imaginärteil den absorptiven Anteil und damit den *magnetischen Dichroismus* angibt. Er ist proportional zur Differenz der Übergangswahrscheinlichkeiten für links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht und verschwindet folglich, wenn diese gleich sind:

$$\sigma_{xy}''(\omega) = \frac{\pi e^2}{4\hbar\omega m^2 V} \sum_{if} f(\varepsilon_i) [1 - f(\varepsilon_f)] [|\langle i | p_- | f \rangle|^2 - |\langle i | p_+ | f \rangle|^2] \cdot \delta(\omega_{fi} - \omega) \quad (2.31)$$

Hierbei ist  $f(\varepsilon_i)$  die *Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion* für den Zustand  $i$ ,  $\omega_{fi}$  ist die Frequenz beim Übergang in den Zustand  $f$  mit  $\hbar\omega_{fi} = \varepsilon_f - \varepsilon_i$  und  $|\langle i | p_{\pm} | f \rangle|^2$  sind die Übergangswahrscheinlichkeiten für links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht, welches die Dipolmomente  $p_{\pm}$  hervorruft. Den Interbandübergängen liegen die Auswahlregeln für lichtinduzierte elektronische Übergänge zugrunde:

$$\Delta l = \pm 1 \quad \text{und} \quad \Delta m_l = \pm 1 \quad (2.32)$$

Bei den Übergangsmetallen sind Übergänge zwischen  $p$ - und  $d$ -Niveaus erlaubt, so dass diese von rechtszirkular ( $\Delta m_l = -1$ ) bzw. linkszirkular ( $\Delta m_l = +1$ ) polarisierten Photonen angeregt werden können. An einem atomaren Modell (Abb. 2.12) kann das Auftreten des magnetischen Dichroismus an den optischen Übergängen zwischen einem zweifach entarteten  $d_{xy,yx}$ -Niveau ( $l = 2, m_l = \pm 1$ ) und einem  $p_z$ -Niveau ( $l = 1, m_l = 0$ ) beschrieben werden. Infolge der Austauschwechselwirkung werden in Ferromagneten die  $d$ -Niveaus für *Spin* $\uparrow$ - und *Spin* $\downarrow$ -Elektronen um die Energiedifferenz  $\Delta_{\text{ex}}$  gegeneinander verschoben. Gleichzeitig wird durch die Spin-Bahn-Kopplung die Entartung der  $d_{xy,yx}$ -Niveaus bzgl. des Bahndrehimpulses aufgehoben zu  $d_{(x+iy)z}$  mit  $m_l = +1$ , und  $d_{(x-iy)z}$ , mit  $m_l = -1$ , die nun um den Energiebetrag  $\Delta_{SO}$  gegeneinander verschoben sind. Für *Spin* $\uparrow$ -Elektronen hat das Niveau mit  $m_l = +1$  die höhere Energie, für *Spin* $\downarrow$ -Elektronen das andere. Die Abb. 2.12 suggeriert einen 100%-Effekt. In Festkörpern wird dies normalerweise nicht erreicht, da die Energiebänder einige eV breit sind und somit die Absorptions-“Linien“ sehr stark verbreitert sind. Dass der Effekt nicht ganz verschwindet, wird in Ferromagneten durch die unterschiedliche Anzahl von Majoritäts-(*Spin* $\uparrow$ ) und Minoritäts-(*Spin* $\downarrow$ ) Elektronen gewährleistet. Er beträgt in den 3d-Übergangsmetallen aber nicht mehr als ein paar Prozent [Vol99]

Der Vergleich mit dem Fall eines Paramagneten (Abb. 2.13) zeigt, dass die Aufhebung der Beiträge der Majorität- und Minorität-Spins zu einem Verschwinden des Kerr-Effekts führt. Im Allgemeinen lässt sich die Abwesenheit des Kerr-Effekts bei Paramagneten wie folgt erklären [BSC96]:

$$|\langle i\uparrow | p_+ | f\uparrow \rangle| = |\langle i\downarrow | p_- | f\downarrow \rangle| \quad (2.33)$$

$$|\langle i\uparrow | p_- | f\uparrow \rangle| = |\langle i\downarrow | p_+ | f\downarrow \rangle| \quad (2.34)$$

Da die Drehung für unterschiedliche Spinrichtungen entgegengesetzt ist, resultiert beim Paramagneten wegen der Gleichbesetzung der beiden Spinsorten kein Kerr-Winkel<sup>7</sup>. Eine Netto-Rotation tritt hingegen im Ferromagneten, bei dem die Spin $\uparrow$  und Spin $\downarrow$  unterschiedlich besetzt sind, auf.

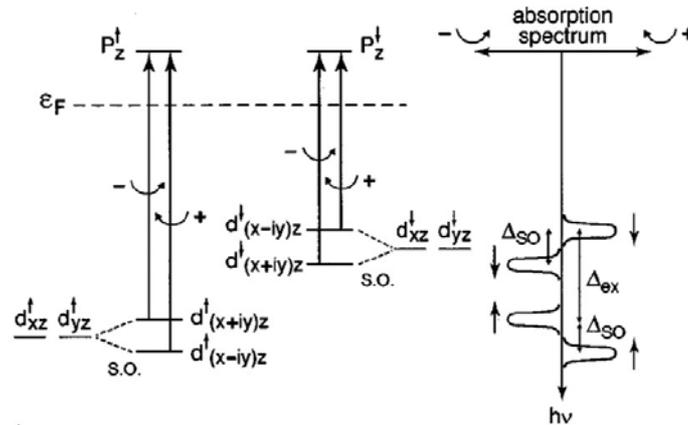


Abbildung 2.12: Magnetischer Dichroismus im Ferromagneten. Links: Elektronische Dipolübergänge für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht im Ferromagneten bei Spin-Bahn-Aufspaltung  $\Delta_{SO}$  und Austausch-aufspaltung  $\Delta_{ex}$  atomarer  $d$ -Niveaus. Rechts: Das zugehörige Absorptionsspektrum.

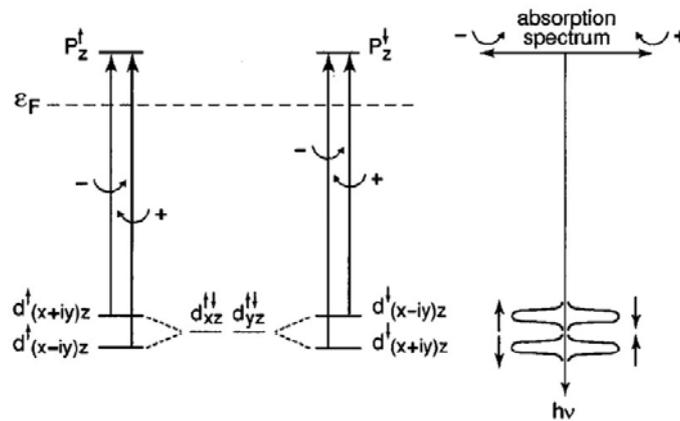


Abbildung 2.13: Übergangs-Schemata für Paramagneten mit Absorptionsspektrum. Wegen der Gleichbesetzung der beiden Spinsorten resultiert hier kein Kerr-Winkel.

<sup>7</sup> Der Vollständigkeit halber müssen hier noch Kerr-Effekt-Messungen an dünnen Schichten wie z.B. am Ru und Pd erwähnt werden, die allerdings nur kleine Kerr-Winkel im Bereich von einigen mgrad/Tesla ergaben. Um den beobachteten *paramagnetischen Kerr-Winkel*  $\theta_P$  zu erklären, kann die Intradband Kerr-Effekt-Theorie der freien Elektronen angepasst werden. Hier ist  $\tilde{\sigma}_{xy}^P(\omega)$  proportional zu der Spinpolarisation der freien Elektronen, die in *Pauli-Paramagneten* aufgrund von *Zeeman-Spaltung* der freien Elektronen an das *Fermi-Niveau* induziert wird [CW95, YUU<sup>+</sup>98, UYU<sup>+</sup>98].

### 2.5.4 Kerr-Effekt-Geometrien

Man unterscheidet beim Kerr-Effekt je nach der relativen Lage der Magnetisierung  $M$  zu dem elektrischen Feldvektor  $E$  zwischen polarem, longitudinalem oder transversalem Kerr-Effekt. Die anschauliche klassische Behandlung ist für die Beschreibung der verschiedenen Geometrien bestens geeignet.

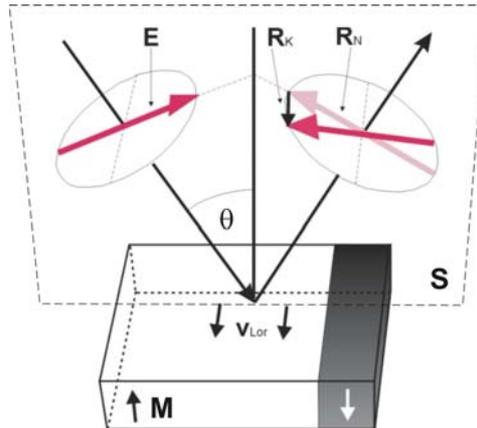


Abbildung 2.14: Der polare Kerr-Effekt. Die Magnetisierung steht senkrecht zur Oberfläche und ist parallel zur Einfallsebene  $S$  ausgerichtet. Je kleiner  $\theta$  ist, um so größer wird der Anteil von  $E$ , der senkrecht zu  $M$  steht, und damit wird auch  $v_{Lor}$  größer. Dies bewirkt ein größeres  $R_K$  und somit eine stärkere Kerr-Drehung.

#### Polarer Kerr-Effekt

Bei dem *polaren Kerr-Effekt* steht die Magnetisierung  $M$  senkrecht zur Probenoberfläche und liegt in der Einfallsebene des Lichtes  $S$ . Für kleine Winkel  $\theta$ , d.h. bei senkrechtem Einfall, ist die Drehung am größten, da der senkrechte Anteil von  $E$  zu  $M$  dann am größten ist und somit eine stärkere Lorentzbewegung  $v_{Lor}$  hervorruft. Die Drehung durch  $R_K$  ist in diesem Fall für alle Polarisationsrichtungen gleich stark und zeigt in dieselbe Richtung.

#### Longitudinaler Kerr-Effekt

Die Magnetisierung der Probe liegt beim *longitudinalen Kerr-Effekt* parallel zur Oberfläche und parallel zur Einfallsebene des Lichtes. In diesem Fall sind zwei Geometrien möglich, je nachdem, ob die Polarisationsrichtung  $E$  *parallel* oder *senkrecht* zur Einfallsebene steht. Der senkrechte Einfall ( $\theta = 0^\circ$ ) erzeugt in beiden Fällen keinen Kerr-Effekt, weil die Lorentz-Kraft entweder in die Strahlrichtung zeigt, oder vollkommen verschwindet. Der Effekt nimmt mit der Größe des

Einfallswinkels  $\theta$  zu. Die Kerr-Drehung ist für die beiden Fälle jeweils entgegengesetzt.

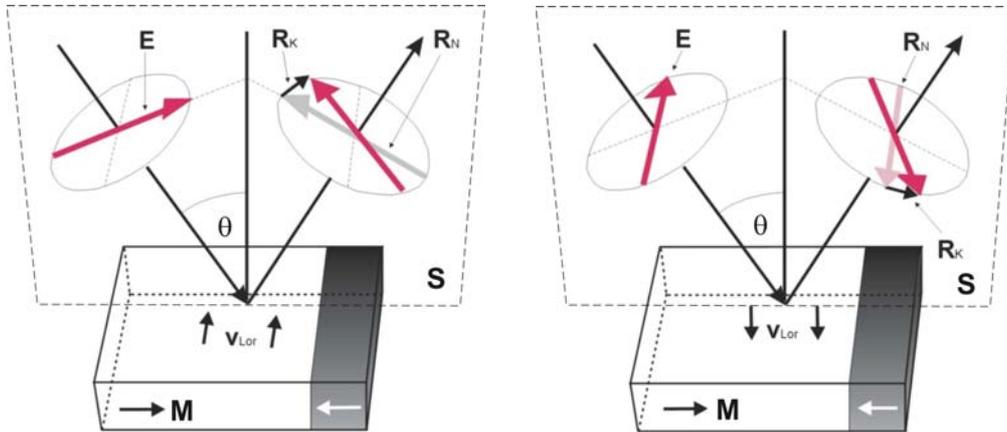


Abbildung 2.15: *Der parallele und der senkrechte longitudinale Kerr-Effekt.* Die Magnetisierung liegt parallel zur Probenoberfläche und der Einfallsebene des Lichtes. Man unterscheidet zwischen paralleler (links) und senkrechter (rechts) Ausrichtung von Polarisationssebene zu Einfallsebene. Die hervorgerufene Kerr-Drehung entsteht jeweils in entgegengesetzter Richtung.

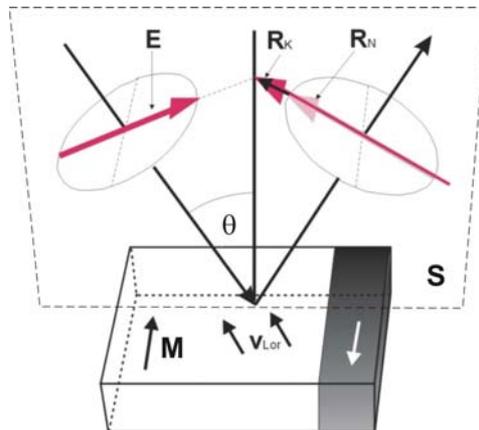


Abbildung 2.14: *Transversaler Kerr-Effekt.* Hier liegt die Magnetisierung parallel zur Oberfläche und senkrecht zur Einfallsebene. Bei paralleler Polarisierung wird eine Kerr-Amplitude erzeugt, jedoch keine Kerr-Drehung. Bei senkrechter Ausrichtung ergibt sich kein Effekt.

### **Transversaler Kerr-Effekt**

Im Fall transversaler Anordnung liegt die Magnetisierung auch parallel zur Probenoberfläche, hier steht sie aber nun senkrecht zur Einfallsebene des Lichtes. Bei senkrechter Polarisation ergibt sich keine Kerr-Drehung und bei der parallelen Polarisation wird bei der Reflexion eine zusätzliche Kerr-Amplitude erzeugt und keine Drehung. Aus diesem Grund ist dieser Effekt schwierig zu detektieren. Wie bei dem longitudinalen Fall wird der Effekt mit zunehmendem Winkel stärker.

# Kapitel 3

## Physikalisches und technisches Konzept

Da flüssige Ferromagnete in der Natur nicht vorkommen, müssen andere physikalische und technische Lösungen gefunden werden, um in der flüssigen Phase die Curie-Temperatur, die natürliche Grenze für das Auftreten spontaner magnetischer Ordnung, zu unterschreiten. Hierfür hat sich die Methode der Unterkühlung metallischer Schmelzen bereits bewährt, die schon 1997 von T. ALBRECHT et al. zum Nachweis einer ferromagnetischen Ordnung in einer flüssigen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Schmelze angewandt wurde [ABF<sup>+</sup>97].

### 3.1 Unterkühlte Metallschmelzen

Dass Flüssigkeiten beim Abkühlen erstarren und einen Festkörper bilden, wenn sie ihre Schmelztemperatur erreichen, wissen wir aus dem Alltag. Bereits 1724 beobachtete D. G. FAHRENHEIT in einem Experiment, dass es möglich ist, Wasser unter bestimmten Bedingungen (in einem luftdichten sauberen Behälter) für längere Zeit bei einer Temperatur von 9 °C unterhalb der Gleichgewichtsschmelztemperatur zu „*unterkühlen*“, ohne dass eine Kristallisation unter Bildung von Eis einsetzt. Die Unterkühlung ist auch bei Metallschmelzen möglich, wenn die o. g. Bedingungen erfüllt sind. Es handelt sich dabei um einen metastabilen Zustand, da die Substanz in diesem Temperaturbereich nur in der festen Phase stabil ist. Die Methode der Unterkühlung eröffnet neue Wege der Untersuchung in der Festkörperphysik. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente ist sie von entscheidender Bedeutung, da die Domänenbildung stark von der Unterschreitbarkeit der Curie-Temperatur abhängt.

### 3.1.1 Phasenübergang flüssig-fest

Thermodynamische Systeme lassen sich durch ihre Zustandsvariablen wie Temperatur  $T$ , Druck  $p$ , Volumen  $V$ , Teilchenzahl  $N$ , Entropie  $S$  und innere Energie  $U$  beschreiben. Unter isotherm-isobaren Bedingungen ist das Gleichgewicht eines thermodynamischen Systems durch das Minimum der freien Enthalpie, des *Gibbs-Potentials*, gegeben. Auf diese Weise lassen sich die Zustandsänderungen eines Systems durch geeignete thermodynamische Potentiale beschreiben. Ein System, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, ist stabil.

Um den *Phasenübergang flüssig-fest* zu beschreiben, ist die Gibbs'sche freie Enthalpie  $G$  wegen ihrer im Experiment einfach zu beobachtenden Variablen am besten geeignet.

$$G = E + pV - TS \quad (3.1)$$

mit  $E$  : Innere Energie  
 $p$  : Druck  
 $V$  : Volumen  
 $T$  : Temperatur  
 $S$  : Entropie

Die Substanz geht am Schmelzpunkt vom festen in den flüssigen Zustand und erfährt dort einen Volumensprung  $V = \{\partial G/\partial p\}_T$ . Die erste Ableitung der freien Enthalpie nach dem Druck ist dort nicht stetig. Eine Klassifizierung auf Basis der Zustandsfunktion für Phasenübergänge lässt sich nach P. EHRENFEST einordnen [Ehr33]. Der Phasenübergang flüssig-fest ist ein *Phasenübergang erster Ordnung*.

In Abb. 3.1 wird die Temperaturabhängigkeit der freien Enthalpie der festen und flüssigen Phase dargestellt. Oberhalb von  $T_S$  liegt die flüssige Phase, unterhalb von  $T_S$  die thermodynamisch stabile feste Phase vor. Der metastabile Zustand der Schmelze wird dadurch ermöglicht, dass bei der Kristallisation eine Energie, die sogenannte *Aktivierungsenergie*, zum Aufbau einer fest-flüssig Grenzfläche notwendig ist. Die Differenz der Gibbs'schen freien Energien der festen und flüssigen Phase ist die treibende Kraft der Phasenumwandlung zur Kristallisation.

Eine Kristallisation aus dem unterkühlten Zustand findet schlagartig statt, die Energiedifferenz wird als latente Wärme frei gesetzt. Dieses Ereignis wird *Rekaleszens* genannt. Bei der Erstarrung entsteht eine *Kristallisationsfront*, die sich bis zu 88 m/s durch die unterkühlte Schmelze ausbreiten kann [Will88]. Die dabei entstehende latente Wärme heizt die Probe für wenige Millisekunden auf. Bei starken Unterkühlungen ist dies als *Rekaleszensblitz* sichtbar.

Schon die kleinsten Störungen, so z.B. durch Keimbildung, reichen aus, um die Probe aus dem metastabilen Zustand zur Kristallisation zu zwingen.

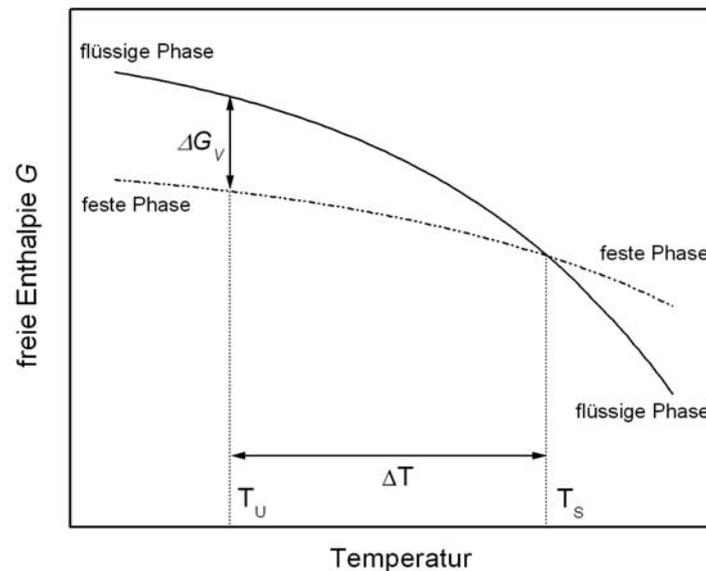


Abbildung 3.1: Temperaturabhängigkeit der Gibbs'schen freien Enthalpie  $G$  der festen und flüssigen Phase bei konstantem Druck. Der thermodynamische Gleichgewichtszustand wird bei minimaler freier Enthalpie  $G_{min}$  erreicht. Bei Schmelztemperatur  $T_S$  ist  $G_{Sol} = G_{Liq}$ . Die Koexistenz von flüssiger und fester Phase ist möglich. Die Enthalpiedifferenz  $\Delta G_V(T_U) = G_{Sol}(T_U) - G_{Liq}(T_U)$  bei der um  $\Delta T$  unterkühlten Schmelze tritt als treibende Kraft für die Phasenumwandlung auf.

### 3.1.2 Keimbildung

M. VOLMER und A. WEBER entwickelten am Anfang des 20. Jahrhundert eine Keimbildungstheorie, die, zunächst für die Kondensation aus übersättigtem Dampf gedacht war [VW26], als Basis für die Weiterentwicklung durch R. BECKER und W. DÖRING diente, und später von D. TURNBULL und J.C. FISCHER auf den Phasenübergang fest-flüssig übertragen wurde [TF49].

Das Überwinden der Aktivierungsenergie und die damit verbundene Kristallisation der unterkühlten Schmelze wird von zwei Prozessen ausgelöst:

### Homogene Keimbildung

Sind nur Atome aus der Schmelze am Prozess beteiligt, so spricht man von *homogener Keimbildung*, die eine ultimative Grenze für die Unterkühlbarkeit einer Schmelze darstellt. Die homogene Keimbildung ist ein *intrinsischer* Prozess, da sie nicht extern beeinflussbar ist, sondern nur von den Eigenschaften des untersuchten Systems abhängt. Innerhalb der Schmelze bilden sich zufällige Atomansammlungen, die eine dem Festkörper ähnliche Struktur aufweisen. Wird die kritische Keimgröße überschritten, so werden diese stabil und können dann unter Energiegewinn weiter wachsen. Mit zunehmender Unterkühlung nimmt der kritische Radius, dessen Wert von der zum Aufbau einer Grenzfläche benötigten Energie abhängt, ab. Erreicht der kritische Radius die Größe von Atomabständen, so wird die prinzipielle Grenze der Unterkühlung erreicht. Die Probe kristallisiert. Das theoretische Limit der Unterkühlbarkeit bei Übergangsmetallen wie Co, Pd oder Ni liegt aufgrund der homogenen Keimbildung bei etwa 500K [Pla97].

### Heterogene Keimbildung

In der Praxis viel häufiger ist aber der Fall der *heterogenen Keimbildung*, bei dem der *Nukleationsprozess* durch Fremdpartikel hervorgerufen wird. Diese wirken als Katalysator für die Kristallisation. Die heterogene Keimbildung ist daher *extrinsischer* Natur. Heterogene Keimstellen können Verunreinigungen innerhalb der Schmelze, aber insbesondere auch Oberflächenkontaminationen wie Metalloxide oder auch Tiegelwände sein. An ihnen sammeln sich die Atome der Schmelze an und bilden dort kristallähnliche Strukturen, die, lange bevor die homogene Keimbildung wirksam wird, schlagartig eine Kristallisationsfront auslösen [Tur52].

Mehr zu der Thematik unterkühlter Metallschmelzen und einen ausführlichen Überblick über die verschiedenen Keimbildungsmechanismen liefert [Her91].

### 3.1.3 Das System $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$

Je weiter unterkühlt wird, um so stärker wächst die treibende Kraft der Kristallisation und die Instabilität des Systems, so dass der Erfolg des Unterkühlungsexperiments von der geeigneten Auswahl des Materials, von seiner Reinheit und von den Charakteristiken der gewählten Schutzgasatmosphäre abhängt.

Um Magnetismus in der flüssigen Phase zu untersuchen - das Ziel der vorliegenden Arbeit - muss man zu der Methode der Unterkühlung greifen, um die bei allen bekannten Stoffen existierende Temperaturdifferenz zwischen der Curie- und der Liquidustemperatur zu überwinden. Dafür braucht man ein System, das ein Ab-

standminimum zwischen dem Schmelzpunkt und der Curie-Temperatur aufweist. Die Legierung Kobalt-Palladium erweist sich bei einer Zusammensetzung im Verhältnis 80:20 Atomprozent aufgrund ihres relativ geringen Abstands zwischen Liquidustemperatur und Curie-Temperatur der festen Phase als die geeignetste von allen bekannten binären Legierungen [Bak92].

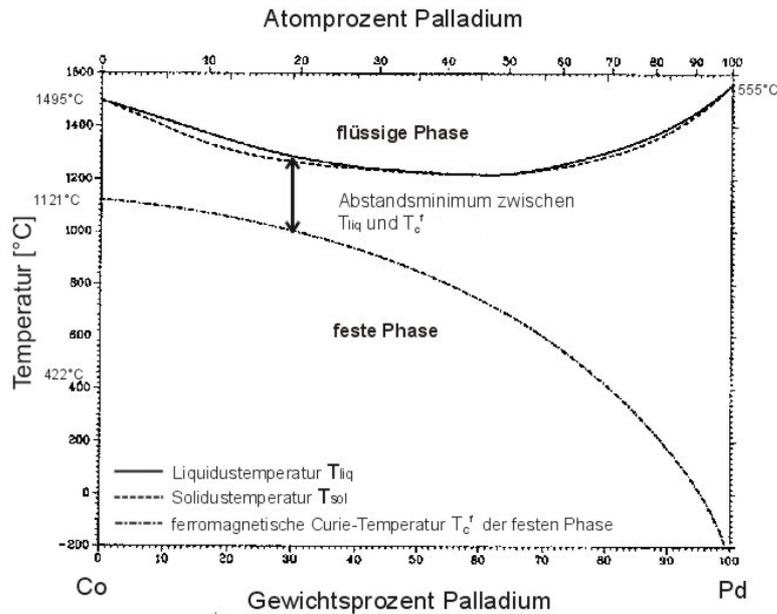


Abbildung 3.2: Phasendiagramm der Legierung Co-Pd in Abhängigkeit von Temperatur und Stoffmengengehalt. Die durchgezogene Linie im oberen Bereich zeigt den Verlauf der Liquidustemperatur  $T_{\text{Liq}}$ , die gestrichelte die Solidustemperatur  $T_{\text{Sol}}$ . Ein Minimum zwischen  $T_{\text{Liq}}$  und  $T_{\text{C}}$  wird bei etwa 20 Atomprozent Pd erreicht. Die Legierung ist über den gesamten Konzentrationsbereich vollständig mischbar und oberhalb von  $422^{\circ}\text{C}$  kubisch flächenzentriert ( $\alpha\text{CoPd}$ -Phase)[Bak92].

Das Gleichgewichtsphasendiagramm (s. Abb. 3.2) des Legierungssystems Kobalt-Palladium zeigt nicht nur eine scharfe Schmelztemperaturlinie, wie bei einkomponentigen Systemen bekannt ist, sondern sowohl die Liquidustemperatur, als auch die Solidustemperatur. So ergibt sich ein ganzer Schmelzbereich. Das mehrkomponentige System bietet eine Koexistenz von fester und flüssiger Phase innerhalb eines solchen thermodynamisch stabilen Bereiches.

Diese Legierung zeichnet sich auch dadurch aus, dass bei Zumischung von Palladium die Curie-Temperatur nur langsam abnimmt, was vermutlich auf die leichte Polarisierbarkeit von Palladium zurückzuführen ist. Schon bei einer geringen Aufweitung der Gitterstruktur von reinem Palladium stellt sich eine spontane

magnetische Ordnung ein [BF96]. So ergibt sich bei dem  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -System eine Differenz von nur 340K zwischen  $T_{liq}$  und  $T_C$ . Außerdem ist diese Legierung über den gesamten Konzentrationsbereich vollständig mischbar, so dass Ausscheidungen durch die Ausbildung von festen Randphasen ausgeschlossen werden können [BHM<sup>+</sup>96, JEM<sup>+</sup>96]. Oberhalb von 695K weist das System eine kubisch-flächenzentrierte Struktur auf und kommt somit der Nahordnung in einer Flüssigkeit mit dichtester Kugelpackung sehr nahe, so dass sich eine ähnliche magnetische Ordnung wie bei Festkörpern nun auch in der flüssigen Phase ergeben sollte.

## 3.2 Elektromagnetische Levitation

Während die homogene Keimbildung eine physikalische Barriere darstellt, kann die heterogene Keimbildung im Experiment beeinflusst werden. Durch die Verwendung hochreiner Materialien und einer berührungslosen Prozedur der Schmelze, ohne jeden Kontakt mit einer Fremdoberfläche, lässt sich die Wahrscheinlichkeit für eine Keimbildung weitgehend reduzieren. Dies wird am besten durch das Verfahren der *elektromagnetischen Levitation* erreicht [Ak23a, Ak23b, Muc23, Bra89].

Das Prinzip lässt sich wie folgt beschreiben: Die elektrisch leitende Probe wird einem durch eine von Wechselstrom durchflossene Spule erzeugten Hochfrequenzfeld ausgesetzt. Das schnell wechselnde Magnetfeld induziert Wirbelströme in der Probe, die gemäß der Lenzschen Regel ein dem inhomogenen Feld der Spule entgegengesetztes magnetisches Moment erzeugen. Im inhomogenen Hochfrequenzfeld wird die Probe durch Abstoßung zum feldschwächeren Bereich verdrängt und durch eine geeignete Formgebung und Ausrichtung der Spule kann die erzeugte Levitationskraft  $F_L$  die Schwerkraft kompensieren und damit die Probe zum Schweben gebracht werden. Die induzierten Ströme bewirken nicht nur ein Schweben der Probe, sondern aufgrund des endlichen Probenwiderstandes auch ein Aufheizen.

Die Levitationskraft  $F_L$  und die Leistungsaufnahme  $P_L$  einer metallischen Probe mit Radius  $r$  und spezifischem Widerstand  $\rho(T)$ , die sich innerhalb eines magnetischen Wechselfeldes der Amplitude  $H$  befindet, wird nach E. FROMM und H JEHN [FJ65] durch

$$P_L \propto F(x)r\rho(T)\vec{H}^2 \quad (3.2)$$

$$F_L \propto G(x)r^3(\vec{H} \cdot \vec{\nabla})\vec{H} \quad (3.3)$$

gegeben.

In Abb. 3.3 wird der Verlauf der beiden Korrekturfunktionen  $F(x)$  und  $G(x)$  in Abhängigkeit von  $x = r/\delta$  beschrieben, wobei  $r$  der Probenradius und  $\delta$  die Skintiefe ist. Hiernach steigt die Korrekturfunktion der Heizleistung  $F(x)$  mit wachsendem Probenradius bei konstantem  $\delta$  linear, während die Levitationskraft einen schnellen Anstieg, der dann in ein Plateau übergeht, zeigt. Die Wahl von  $x = 5$  bis  $x = 10$  bildet ein günstiges Verhältnis  $r/\delta$ . Das ergibt eine hohe Trageleistung der Spule bei niedriger Heizleistung und damit ein tiefes Abkühlen der Probe allein durch die Reduktion der Leistung.

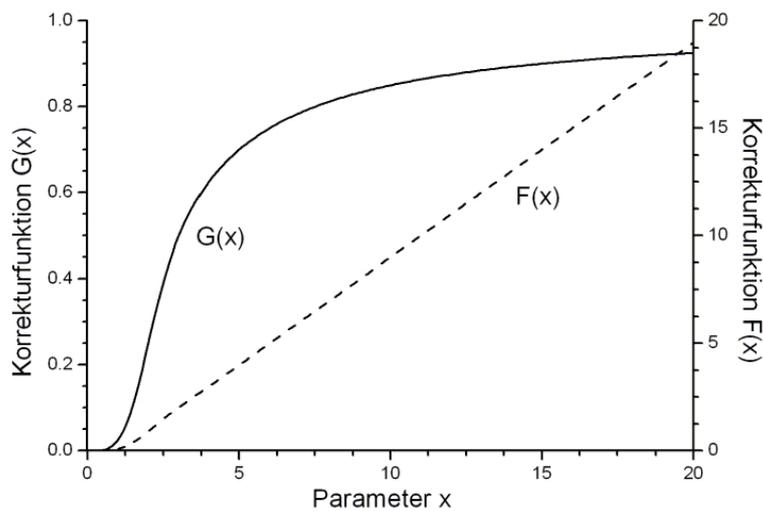


Abbildung 3.3: Korrekturfunktion  $G(x)$  und  $F(x)$  für die Levitationskraft  $F_L$  und die elektrische Leistungsaufnahme  $P_L$ . Der Parameter  $x = r/\delta$  wird durch den Probenradius  $r$  und die Frequenz (über die Skintiefe  $\delta$ ) bestimmt. Ein guter Kompromiss zwischen Leistungsaufnahme  $P_L$  und Levitationskraft  $F_L$  ist die Wahl von  $x = 5$  bis  $x = 10$  [FJ65].

# Kapitel 4

## Der Experimentaufbau

Im vorherigen Kapitel wurden die theoretischen Überlegungen und physikalischen Grundlagen erläutert und somit die technischen und experimentellen Anforderungen an dieses Experiment bereits skizziert. Wie schon in Abschnitt 2.4.1 erwähnt, spricht prinzipiell nichts gegen die Existenz einer spontanen magnetischen Ordnung in einer Flüssigkeit, was darauf zurückzuführen ist, dass die magnetischen Ordnungsmechanismen sich auf einer schnelleren Zeitskala als die atomaren bewegen. Kurz: man benötigt eine experimentelle Anlage, die eine tiefstmögliche Unterkühlung leistet, um damit die gegebene Temperaturdifferenz bis unter Curie-Temperatur zu überwinden und die Proben in der flüssigen Phase stabil zu halten. Diese muss eine hochreine Umgebung bieten und über eine Möglichkeit verfügen, die Proben berührungslos zu schmelzen und zu untersuchen, so dass die heterogene Keimbildung vermieden werden kann. Die Analysemöglichkeit muss so empfindlich sein, dass schon die kleinsten Magnetisierungsänderungen aufgezeichnet werden können, ohne das System aus dem thermodynamischen Gleichgewicht zu bringen. Entscheidend ist auch die Probenpräparation, da Zusammensetzung, Reinheit und Dimension der Probe einen wesentlichen Faktor bei der Durchführung der Messung darstellen.

### 4.1 Probenherstellung

In Abschnitt 3.1.3 wurden die Gründe für die Wahl des Systems  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  weitgehend erörtert. Wie bereits erwähnt, sind hier Materialien von hoher Reinheit notwendig. Die verwendeten Komponenten der Legierung erreichen eine Reinheit von 99,997% bei Kobalt und 99,99% bei Palladium und liegen in Drahtform vor. Die Probengrößen liegen zwischen 10 und 13mg, so dass sie auf die Spulenform und verwendete Frequenz abgestimmt sind (s. Abschnitt 3.2). Bei der Präparation

wird auf die benötigte Zusammensetzung Kobalt-Palladium (Atomverhältnis 80:20) geachtet. Der dünnere Palladiumdraht ( $\varnothing$  0,1mm) wird um das in Hufeisenform gebogene Kobaltstück ( $\varnothing$  0,5mm) gewickelt. Die Proben werden im Ultraschallbad in Alkohol gereinigt und nach der Trocknung gewogen. Die Proben können nicht aus größerem bereits legierten  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Material hergestellt werden, da sich beim Erstarren der Legierung Phasen unterschiedlicher Zusammensetzungen bilden, so dass bei einem Teilen in mehrere Proben das gewünschte Atomverhältnis 80:20 nicht gewährleistet werden könnte.

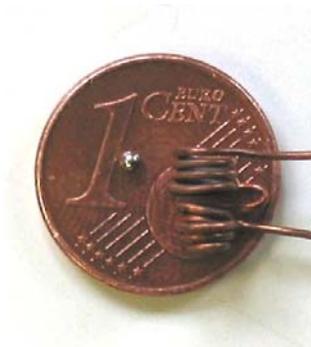


Abbildung 4.1: *Probe und Levitationsspule im Vergleich mit einem 1-Cent-Stück.* Die verwendeten Probengrößen liegen zwischen 10 und 13mg und sind auf die Spulenform und die verwendete Frequenz abgestimmt.

Die Proben werden schließlich in der Levitationsanlage in situ aufgeschmolzen und nehmen aufgrund der Oberflächenspannung Kugelform an. Die kugelförmigen Proben haben einen Durchmesser von etwa 1mm.

## 4.2 Levitationsanlage und Hochfrequenztechnik

Grundsätzlich besteht die Levitationsanlage aus vier Baugruppen: einem *Frequenzgenerator*, dessen Signal über einen *Verstärker* auf die *Levitationsspule* geschickt wird, deren Impedanz durch einen *Hochfrequenztransformator* an die Ausgangsimpedanz des HF-Verstärkers angepasst ist. Die Probe befindet sich in der Levitationsspule innerhalb eines *Ultra-Hoch-Vakuum-Rezipienten (UHV)*, der, um eine möglichst reine Umgebung der Probe zu schaffen, mit Wasserstoff gefüllt wird. Es handelt sich um ein CF100-Doppelkreuzstück mit Glasfenstern, das auf einem verschiebbaren Tisch gelagert ist, der für die Messung über die Spule geschoben wird.

Die Spule wird aus einem sauerstofffreien Kupferkapillarrohr gefertigt, um die wegen der in der Spule bis zu 1,5kW deponierten HF-Leistung notwendige Wasserkühlung zu ermöglichen. Das Rohr hat eine Wandstärke von 0,12mm und einem Außendurchmesser von 0,6mm. Die Wasserkühlung erfolgt über eine Vorpumpe und einen Druckverstärker [Alb96], der für einen Betriebsdruck von bis zu 120bar sorgt.

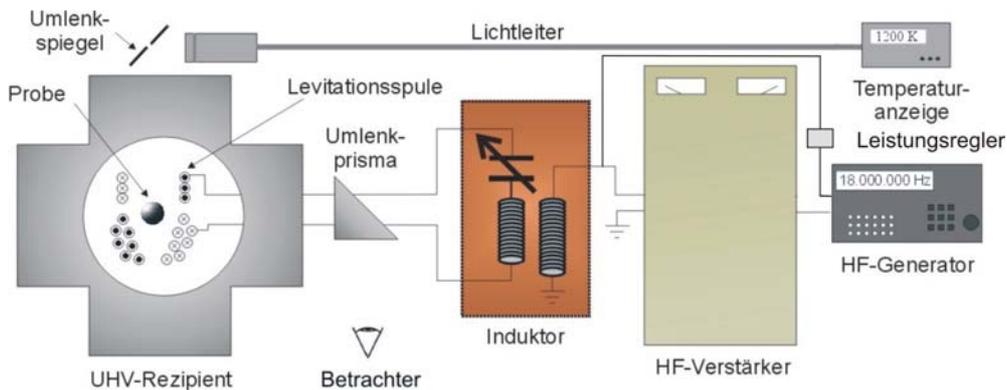


Abbildung 4.2: Schematischer Versuchsaufbau der Levitationsanlage.

Die Levitationsspule, in der die Probe schwebt, befindet sich in einem UHV-Rezipienten und ist von einer hochreinen Wasserstoffatmosphäre umgeben. Das HF-Signal des Frequenzgenerators wird verstärkt und über einen Leistungsregler stabilisiert. Der Induktor dient als Hochfrequenz-Transformator.

Zwischen dem unteren konisch geformten Spulenteil und der oberen Gegenwindung baut sich ein starker Feldgradient auf. Dies bewirkt das Schweben der Probe im Bereich maximaler Levitationskraft  $F_L \propto (\vec{H} \cdot \vec{\nabla}) \vec{H}$ . Diese Kraft reicht aus, die Probe auch bei einem Absenken der HF-Leistung, das nötig ist, um die Schmelze unter Curie-Temperatur abzukühlen, im Schwebezustand zu halten.

Die HF-Zuleitung gelangt durch eines der Glasfenster zur Spule. Der Rezipient wird über die Spule gefahren und so an das Fenster geschraubt, dass er die Spule umgibt. Durch ein Glasprisma, das an der Zuleitung befestigt ist, können während der Messung Probe und Spule jederzeit beobachtet werden. Die Temperatur der Probe kann von oben durch eine Glasscheibe mit einem Pyrometer gemessen werden.

Die Unterkühlungs-Experimente benötigen eine Wasserstoffatmosphäre, die eine zusätzliche Verminderung der heterogenen Keime bewirkt. Das Wasserstoffgas reduziert die an der Oberfläche der Probe entstehenden Metalloxide [PNH<sup>+</sup>94] und verbessert die Wärmeabfuhr durch Konvektion, ohne die strukturellen oder

magnetischen Eigenschaften zu beeinflussen [BHM<sup>+</sup>96]. Es wird hochreines Wasserstoffgas (Reinheit: 99,9999%) verwendet, das zusätzlich durch eine Oxisorb-Patrone gefiltert wird. Während der Messung wird der Druck des Wasserstoffgases über eine Gaswaschflasche bei Normaldruck konstant gehalten.

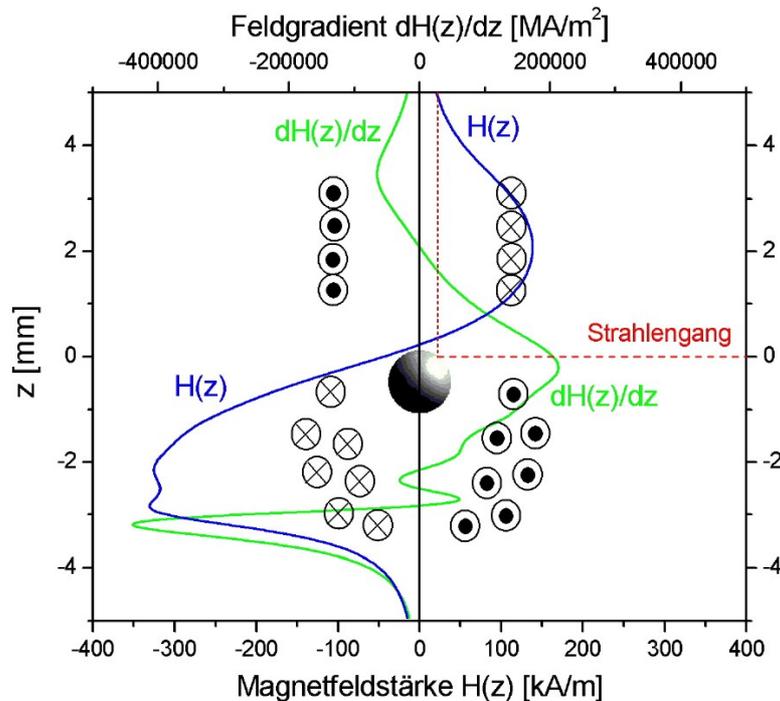


Abbildung 4.3: Querschnitt der Levitationsspule mit Verlauf der *Magnetfeldstärke* und magnetischer *Feldgradient*. Der Verlauf wurde entlang der  $z$ -Achse bei etwa 1,2kW HF-Leistung berechnet. Die Spule wird aus 0,6 mm Kupferkapillarrohr gewickelt.

In Kapitel 3.2 wurde bereits die Abhängigkeit der Levitationskraft vom Durchmesser der Probe und der Skintiefe und damit von der Frequenz des induzierten Stroms beschrieben. Für die Proben mit 1 mm Durchmesser wurde eine Frequenz von 18MHz gewählt. Das Hochfrequenzsignal wird von einem Frequenzgenerator<sup>1</sup> mit Leistungsendstufe erzeugt, der eine Frequenzabweichung von 0,1% und eine Amplitudenstabilität von 99,9% aufweist. Das Ausgangssignal wird durch einen HF-Verstärker<sup>2</sup>, der eine maximale Ausgangsleistung von 2,5kW (cw) an 50Ω liefert, weiter linear verstärkt. Bei vorgegebener Frequenz erfolgt vor jeder Messung eine automatische Abstimmung an einem 50Ω Abschlusswiderstand. Wie schon erwähnt, wird während der Messung eine Maximalleistung von 1,5kW bei 18MHz verwendet.

<sup>1</sup> Marconi 2023, 9kHz–1.2GHz

<sup>2</sup> Collins 208U-3, 2-30MHz

Die Ausgangsimpedanz des Verstärkers wird dann durch einen abstimmbaren Schwingkreis in Kombination mit einem HF-Transformator (s. *Induktor* in Abb. 4.2) an die Eingangsimpedanz der Levitationsspule angepasst. Somit lässt sich der Rücklauf des Signals optimal minimieren. Durch einen Richtungskoppler zwischen dem Verstärker und dem Induktor wird ein Leistungsregler gesteuert, der für ein störungsfreies Hochfrequenzsignal sorgt.

### 4.3 Probenstabilisierung

Bei Temperaturen im Bereich des Phasenübergangs erwies sich die Schwebestabilität als eine prinzipielle Grenze, da das Oszillieren der Probe das Aufhalten in diesem Bereich auch kurzzeitig fast unmöglich macht. Die Probe beginnt aufgrund der durch die ansteigende Suszeptibilität verursachten Bewegung in das inhomogene Magnetfeld der Spule in diesem Temperaturbereich vertikal zu schwingen (s. Abb. 4.4). Von der Stabilität der Probe hängt aber gerade die Qualität und Durchführbarkeit jeder optischen Messung ab.

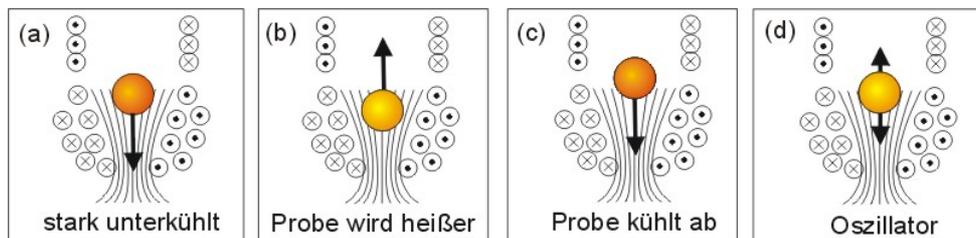


Abbildung 4.4: *Oszillation der stark unterkühlten Probe.* Im Bereich des Phasenübergangs hat die Probe eine hohe Suszeptibilität und wird aus ihrer stabilen Position in das inhomogene Feld der Spule gezogen (a). Im unteren Teil der Spule wird sie aufgrund der höheren Heizleistung heißer, verliert ihre Magnetisierung, und wird dann nach oben gedrückt (b). Oben kühlt sie wieder ab und wird erneut magnetisiert (c). Sie beginnt eine ungedämpfte Oszillation, die eine weitere Unterkühlung unmöglich macht (d).

Eine Verbesserung der Stabilität, die auch die Oszillation verhindert, wird durch den Aufbau einer Stabilisierungsvorrichtung erreicht, die aus drei Teilen besteht: *Beobachtungseinrichtung*, *Regelelektronik* und *Elektromagnete* (s. Abb. 4.5).

Die Beobachtungseinrichtung ermittelt anhand von zwei Vierfelddioden die Position der Probe, die aufgrund der *Planckschen Strahlung* Licht emittiert. Das Licht wird über zwei Linsensysteme auf die beiden Dioden fokussiert, die zusätzlich durch Filter bei der Verwendung eines Lasers in ihrer Funktion geschützt sind.

Die an den einzelnen Diodenfeldern gemessene Spannungsdifferenz ermöglicht somit eine exakte xyz-Positionsbestimmung der Probe.

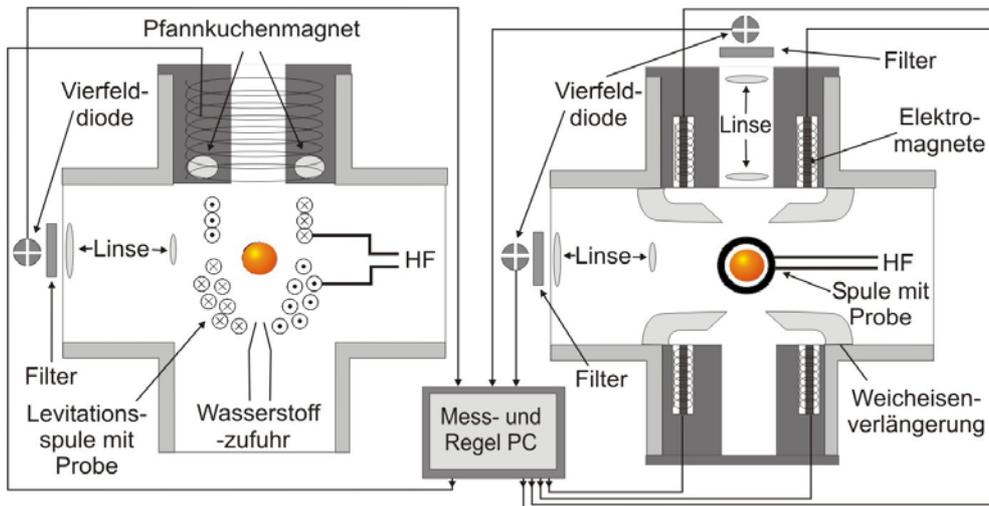


Abbildung 4.5: Schematischer Aufbau der Stabilisierungsregelung. Links: vertikaler Querschnitt. Rechts: horizontaler Querschnitt. Die Position der Probe wird mit Hilfe der Linse auf die beiden Vierfelddioden abgebildet. An der PC-Regelkarte werden die Diodensignale verarbeitet und über die Elektromagneten wird jede Positionsänderung korrigiert.

Die Ausgangsspannungen der Dioden werden vom PC über einen analogen Addierer und Subtrahierer eingelesen. Eine PC-Regelkarte<sup>3</sup> wandelt und verarbeitet die eingelesenen Signale in einen Regelalgorithmus und leitet die entsprechenden Regelströme an die Netzteile der Elektromagneten weiter.

Die so angesteuerten fünf Elektromagneten sorgen für die Stabilität der Schwebe-position und wirken jeder kleinsten Positionsänderung entgegen. Der über der Levitationsspule angebrachte pfannkuchenförmige Elektromagnet sorgt für die vertikale Positionsänderung und wird auch benutzt, um die Magnetisierung der Probenoberfläche bei der Kerr-Effekt-Messung zu beeinflussen. Die horizontale Regelung wird über vier Stabmagnete aus Weicheisen realisiert, deren Magnetfelder durch Weicheisenstäbe im Innern des Rezipienten bis möglichst nah an die Probe geführt werden.

Unter der Spule wurde eine Wasserstoffgasdüse eingebaut. Der Wasserstoffstrahl lässt sich über ein Ventil regeln und somit wird im tieferen instabilen Tempera-

<sup>3</sup> Kerber-Electronic Micro32-Karte

turbereich sowohl für eine weitere Unterkühlung der Probe, als auch für eine Verbesserung der Schwebestabilität gesorgt. Das Ventil wird von einem Netzteil betrieben, über das die Wasserstoffzufuhr dosiert und somit die Proben temperatur beeinflusst werden kann. Man kann eine bestimmte Wasserstoffmenge zuführen und damit eine konstante gewünschte Temperatur einstellen. Das Netzteil lässt sich aber auch über ein TTL-Signal ansteuern, so dass sich auch Temperatursprünge von bis zu 50 Grad bewirken lassen. Wegen der sehr großen Wärmeleitfähigkeit der geschmolzenen Probe und der Form der Wasserstoffströmung kann von einer gleichmäßigen Temperaturverteilung auf der gesamten Probenoberfläche ausgegangen werden.

## 4.4 Temperaturmessung

Eine berührungsfreie Methode zur Temperaturmessung bietet die *Strahlungs pyrometrie*. Die Temperatur der Probe wird dabei über ihre Strahlungsintensität bestimmt.

Die Strahlungsintensität eines Schwarzkörperstrahlers lässt sich prinzipiell nach dem *Wienschen Strahlungsgesetz*<sup>4</sup>, einer Näherung des *Planckschen Gesetzes*, errechnen. Da die Probe aber ein realer Körper mit der Emissivität  $\varepsilon < 1$  ist, muss dabei eine Korrektur vorgenommen werden. Die wahre Temperatur lässt sich dann nach dem *Kirchhoffsches Gesetz* für die Strahlungsdichte eines beliebigen Strahlers wie folgt berechnen [Lie76]:

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_s} + \frac{\lambda k}{ch} \ln(\varepsilon(\lambda, T)) \quad (4.1)$$

- mit  $T$  : wahre Temperatur  
 $T_s$  : Temperatur des schwarzen Strahlers  
 $\lambda$  : Wellenlänge  
 $c$  : Lichtgeschwindigkeit  
 $\varepsilon$  : Emissivität  
 $h = 6,63 \cdot 10^{-34}$  Js Planksches Wirkungsquantum  
 $k = 1,38 \cdot 10^{-23}$  JK<sup>-1</sup>

Die Abhängigkeit der Emissivität von der Temperatur ist aber nicht genau bekannt, was eine präzise Messung der Temperatur unmöglich macht. Eine genauere Temperaturbestimmung leistet das *Quotientenpyrometer*<sup>5</sup>. Das Gerät misst die

<sup>4</sup> Für den im Experiment auftretenden Temperaturbereich bis ca. 1700K

<sup>5</sup> IMPAC ISQ4

Intensitäten zweier dicht beieinander liegender Wellenlängen, deren Emissivitäten ein nahezu gleiches Verhalten über einen großen Temperaturbereich zeigen, so dass der Quotient  $\varepsilon(\lambda_1 T)/\varepsilon(\lambda_2 T)$  als konstant angenommen werden kann. Damit wird (4.1) zu:

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_S} + \text{const.} \quad (4.2)$$

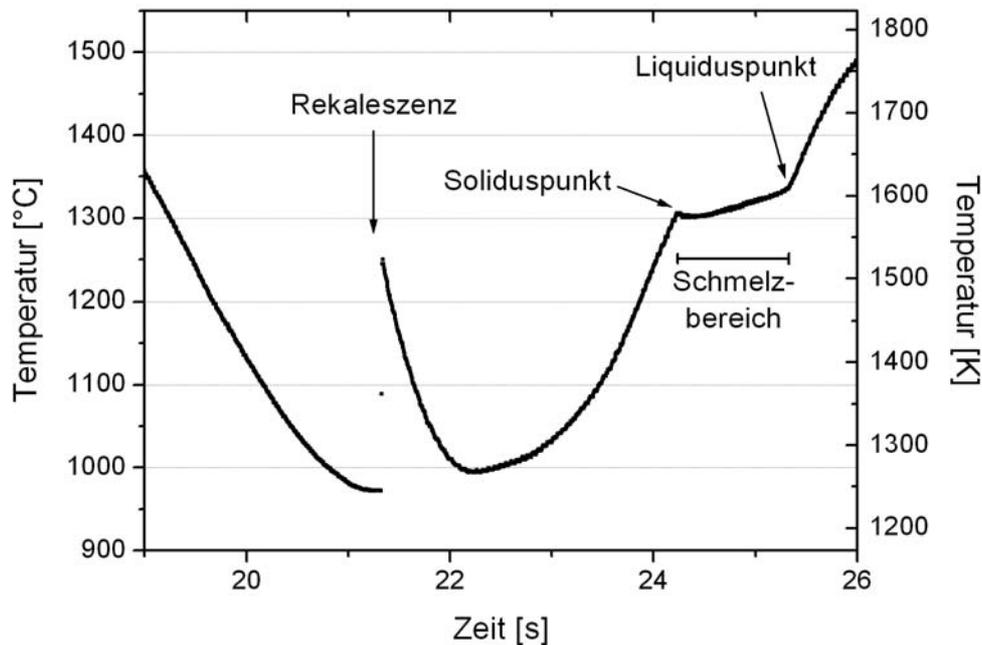


Abbildung 4.6: *Temperaturaufzeichnung eines vollständigen Abkühl- und Aufschmelzvorgangs.* Durch Leistungsreduktion nimmt die Proben-temperatur soweit ab, bis bei tiefer Unterkühlung abrupt die Kristallisation einsetzt. Die freiwerdende latente Wärme bewirkt einen kurzzeitigen Temperatursprung. Die Probe wird erneut aufgeheizt bei gleichmäßiger Zunahme der Leistung. Sie beginnt bei der Solidustemperatur aufzuschmelzen und ist mit Erreichen der Liquidustemperatur vollständig flüssig.

Zur Temperaturkalibrierung dient die aus der Literatur bekannte Liquidus- bzw. Solidustemperatur der Legierung. Beide Temperaturen sind in Abb 4.6 an der sich dort jeweils ändernden Steigung der Kurve deutlich zu erkennen. Das verwendete Zweifarbenpyrometer mit  $\lambda_1 = 950\text{nm}$  und  $\lambda_2 = 1050\text{nm}$  kann einen Temperaturbereich von 1000-1800K abdecken. Über die mehrfache Aufnahme derartiger Aufschmelzkurven lässt sich eine absolute Genauigkeit von 3K mit einem relativen Fehler von 0,1K erreichen.

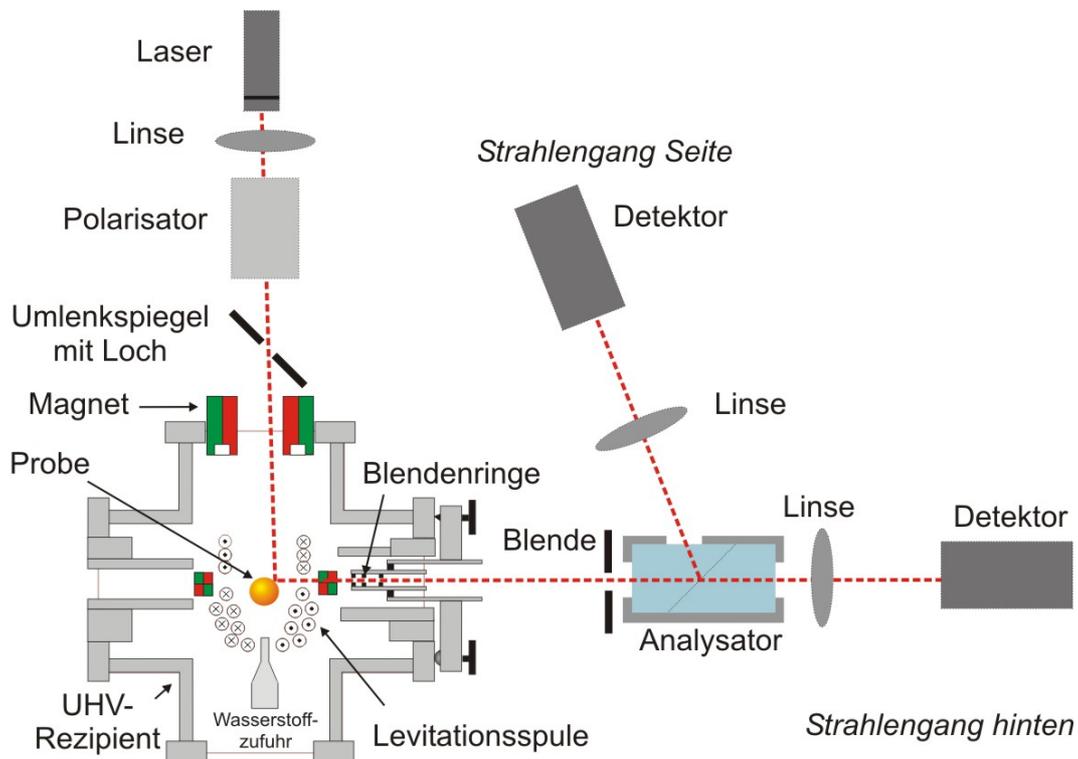


Abbildung 4.7: *Optische Messanordnung zur Messung des Kerr-Effekts.* Der Laserstrahl wird über den Polarisator in der gewünschten Richtung polarisiert und auf die Probe fokussiert. Der reflektierte Strahl gelangt über ein Seitenfenster und Blendensystem an einen Analysator, der um  $45^\circ$  bezüglich der Polarisationsrichtung des Lasers gedreht ist. Man erhält zwei fast gleiche Komponenten der Polarisationsrichtung, die über die Detektoren in Spannungssignale umgewandelt werden. Diese werden dann mit einem Speicheroszilloskop ausgelesen und verglichen.

## 4.5 MOKE-Messeinrichtung

In neuerer Zeit haben sich für die Untersuchung des Magnetismus von Oberflächen über den magneto-optischen Kerr-Effekt verschiedene Experimentalmethoden als hochempfindliche und genaue Analyseverfahren etabliert. Das Prinzip bleibt dabei im Allgemeinen gleich, so dass der experimentelle Aufbau nur durch die individuellen Anforderungen des Experiments bedingt ist. Im Folgenden wird die Erweiterung der Levitationsanlage mit einer laserunterstützten Messeinrichtung, die Funktionsweise und der experimenteller Ablauf beschrieben.

### 4.5.1 Aufbau

Die gesamte Konstruktion der optischen Messeinrichtung ist auf einem separaten, aus Aluminium-Profilen (10x10cm) aufgebauten, Gestell aufgebracht. Die Profile der einzelnen Träger bieten vielfältige Möglichkeiten zur Befestigung weiterer Komponenten und zeichnen sich durch hohe Stabilität und geringe Eigenschwingungen aus.

Als Quelle für das benötigte linear polarisierte Licht dient hier ein Dioden-Laser<sup>6</sup> mit einer Wellenlänge von 658nm (bei Raumtemperatur), der über ein TTL-Signal gepulst werden kann. Das verwendete Modul verfügt über eine integrierte Optik zur Strahlkollimierung und hat eine Ausgangsleistung von maximal 35mW im cw-Betrieb.

Das Verhältnis der beiden Richtungskomponenten der Polarisation des Dioden-Lasers von 100:1 reicht für die Kerr-Messung nicht aus, daher wird zusätzlich eine *Glan-Thompson-Prisma* benutzt, das die Polarisation des Lasers auf 10<sup>6</sup>:1 erhöht. Der Strahl wird über eine Sammellinse auf die in der Levitationsspule schwebende Probe fokussiert. Er wird an der Probenoberfläche reflektiert und aufgrund des kleinen Krümmungsradiuses der Probe stark divergiert. Der so erhaltene Lichtkegel bzw. der Streukegel wird durch ein Blendensystem größtenteils ausgeblendet, das den Einfluss von Fremdreflexionen und Beugungseffekten weitgehend reduziert und somit die Erzeugung weiterer elliptischer Komponenten in dem polarisierten Strahl vermindert. Außerdem sind die Ein- und Austrittsfenster aus entspiegeltem Glas<sup>7</sup>, um einen *Etalon-Effekt*<sup>8</sup> zu verhindern, der sonst das Signal stark beeinträchtigen würde [Beck02].

Der von der Probe reflektierte Ausgangsstrahl trifft auf einen Analysator, der um 45° zur Polarisationssebene des Lichtes gedreht ist. Vom gesamten Lichtkegel erreicht, durch Streugeometrie bedingt, über das Blendensystem nur reflektiertes Licht von einem Bruchteil der Probenoberfläche den Analysator. Das schränkt den Beobachtungsraum auf der Probenoberfläche auf einen Bereich von ca. 20x20 µm ein.

Bei dem Analysator handelt sich um ein Glan-Polarisationsprisma mit zwei Austrittsfenstern. Der außerordentliche Strahl wird durchgelassen, während der ordentliche Strahl unter einem Winkel von 72° zurückreflektiert wird (siehe Abb. 4.9). Man erhält so zwei fast gleiche Richtungskomponenten der Polarisation. Die

---

<sup>6</sup> Blue Sky Research CLM104-01-201

<sup>7</sup> Micro-Guard

<sup>8</sup> Der Etalon-Effekt führt zu Intensitätsverlusten und –schwankungen im Strahlverlauf und wird durch Interferenzen zwischen Primär- und zurücklaufendem Strahl verursacht.

beiden Strahlen werden über Linsen (50 mm Brennweite) auf zwei Detektoren fokussiert und dort in Spannungssignale umgewandelt. So erhält man wiederum zwei fast gleich große Signale, die über ein Oszilloskop dann ausgelesen und verglichen werden können. Die Detektoren bestehen aus Photodioden mit integriertem Verstärker<sup>9</sup>. Die Ausgangssignale der beiden Dioden werden sowohl einzeln, als auch über einen Differenzverstärker mit einem Speicheroszilloskop<sup>10</sup> ausgelesen.

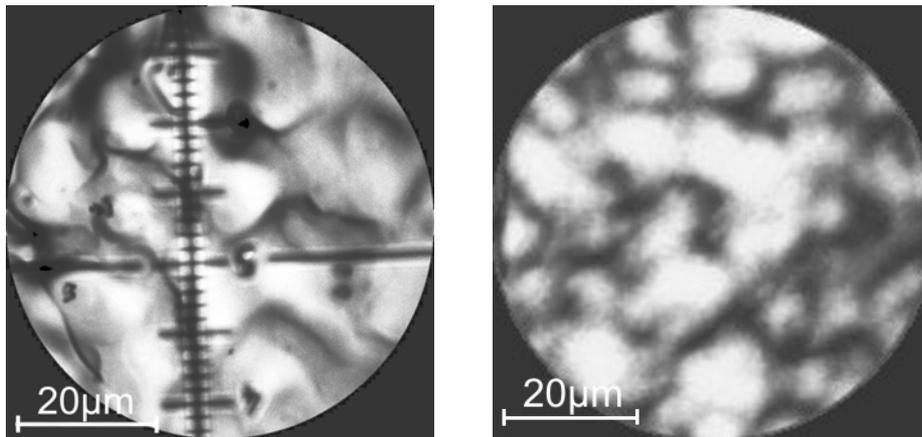


Abbildung 4.8: *Probenoberfläche in der festen Phase*. Nur ein Bruchteil von etwa  $20 \times 20 \mu\text{m}$  der Probenoberfläche wird untersucht. Zum Vergleich, *Links*: Lichtmikroskopische Aufnahme. *Rechts*: Aufnahme der Oberfläche über reflektiertem Laserlichtbild.

Ändert sich etwas an der Polarisationsrichtung des reflektierten Strahls, so wird die eine Komponente des Strahls hinter dem Analysator stärker und die andere schwächer. Dies lässt sich wiederum an der Größe der Signale erkennen. Die Amplitudendifferenz dieser Signale ist also ein Maßstab für die Drehung der Polarisations Ebene und damit auch für die Magnetisierung.

Die Polarisations Ebene im Eingangsstrahl kann mit Hilfe des drehbar gelagerten Polarisators genau festgelegt werden. Eine spezielle Verstelleinrichtung ermöglicht eine sehr präzise Einstellung des Analysators. Diese besteht aus einem drehbar gelagerten Zylinder, der gegen einen äußeren festen Zylinder verdreht werden kann. An beiden Zylindern sind pyramidenförmige Gestänge aus Kohlefaser so angebracht, dass das innere Gestänge und damit auch der innere Zylinder, in dem sich der Analysator befindet, gegen das äußere Gestänge über eine Mikrometer-

<sup>9</sup> Burr-Brown OPT210

<sup>10</sup> Tektronix TDS 5034

schraube bewegt werden kann. Die Mikrometerschraube läuft auf eine an der Spitze des inneren Gestänges montierten Kugelkalotte aus gehärtetem Stahl auf und lässt sich mit einer Genauigkeit von  $2\mu\text{m}$  einstellen. Über die Mikrometerschraube lässt sich so der Drehwinkel auf bis zu  $3,4 \cdot 10^{-4}$  Grad genau einstellen.

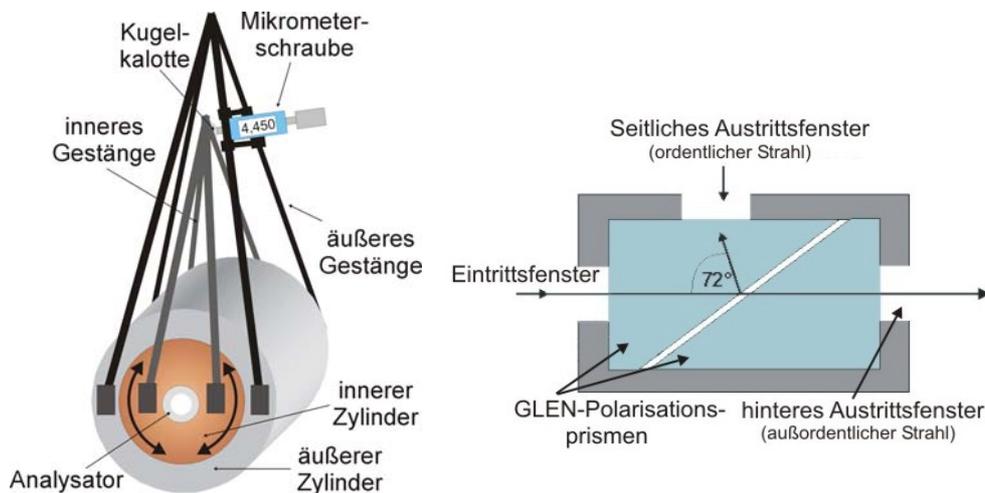


Abbildung 4.9: *Verstellvorrichtung und Analysator.* Links: Der innere Zylinder kann über eine Mikrometerschraube gegen den äußeren festen Zylinder verdreht werden. Der Drehwinkel lässt sich mit der Vorrichtung auf bis zu  $3,4 \cdot 10^{-4}$  Grad genau einstellen. So kann die Position des Analysators zur Polarisationssebene des Laserstrahls eingestellt werden. Rechts: Der außerordentliche Strahlanteil wird durchgelassen, während der ordentliche Strahl unter  $72^\circ$  zurückreflektiert wird.

## 4.6 Experimenteller Ablauf

Die optischen Kerr-Effekt-Messungen an der schwebenden unterkühlten Probe erfordern einen reproduzierbaren automatisierten Ablauf, der auf einer genauen Koordination und Abstimmung der einzelnen Versuchsteile basiert.

Nachdem die Spule gereinigt, die Wasserstoffgasdüse positioniert und die Probe in die Spule gelegt wurde, wird der Rezipient geschlossen. Der Rezipient wird zweimal mit Wasserstoffgas "gespült" und über das Gaswaschflaschensystem auf Normaldruck gebracht. Der Hochfrequenzverstärker wird mit Hilfe eines  $50 \Omega$ -Widerstandes abgestimmt und dann an die Anlage angeschlossen. Das Aufzeichnungsprogramm wird gestartet, der Wasserdruck in der Spule auf etwa 110bar erhöht und der HF-Generator in dem gewünschten Modus aktiviert.

Durch das Einschalten der Hochfrequenz wird die Probe zum Schweben und über eine Erhöhung der Leistung zum Schmelzen und Legieren gebracht.

Nun muss die Stabilisierungsregelung geschaltet und eingestellt werden, um die Probe während der Messung räumlich zu fixieren. Der Umlenkspiegel mit Loch wird dann so positioniert, dass gleichzeitig die Messung der Probentemperatur mit dem Pyrometer und die Fokussierung des Lasers auf die Probe möglich sind. Nachdem auch die Temperaturkalibrierung stattgefunden hat, kann die Justierung des Strahlengangs, beginnend mit dem Laser und endend bei den Detektoren, durchgeführt werden.

Die Steuerung der Messabläufe und die Datenerfassung laufen vollautomatisiert und computergesteuert. Nachdem die Probe die gewünschte Temperatur erreicht hat, kann mit der eigentlichen optischen Messung wie folgt begonnen werden:

Da die Hochfrequenz über Wirbelströme die Magnetisierung beeinflusst, wird diese über einen digitalen Hardware-Trigger<sup>11</sup> während der ganzen Messung von einem zweiten Frequenzgenerator mit 250Hz für 220 $\mu$ s an- und ausgeschaltet.

Der Pfannkuchenmagnet der vertikalen Regelung wird auf einen festen Wert eingestellt, um die Magnetisierung der Probe zu ermöglichen.

Über den PC wird ein Steuerpuls von 400ms ausgelöst, der zugleich das Zeitintervall für die optische Messung festlegt, die Wasserstoffzufuhr ansteuert, die horizontale Regelung abschaltet und eine "Markierung" auf die Temperaturmessung setzt.

Über die *veto*-Einstellung an dem digitalen Trigger werden 85 $\mu$ s-lange Laserpulse ausgelöst und es wird das Auslesen der Diodensignale am Oszilloskop getriggert.

Die Hochfrequenz hat eine Abklingzeit von etwa 10 $\mu$ s, daher wird das Lasersignal über ein Delay am digitalen Trigger verzögert und so innerhalb des HF-Signals positioniert, dass eine Beeinflussung ausgeschlossen werden kann. Während der 400ms werden 100 Messpunkte aufgezeichnet. Nach der Aufzeichnung der Messpunktreihe wird die Temperatur über den Leistungsregler auf einen anderen Wert gebracht und erneut gemessen. So wird weiter verfahren, bis die Probe rekalesziert.

---

<sup>11</sup> PSI-EA DT104

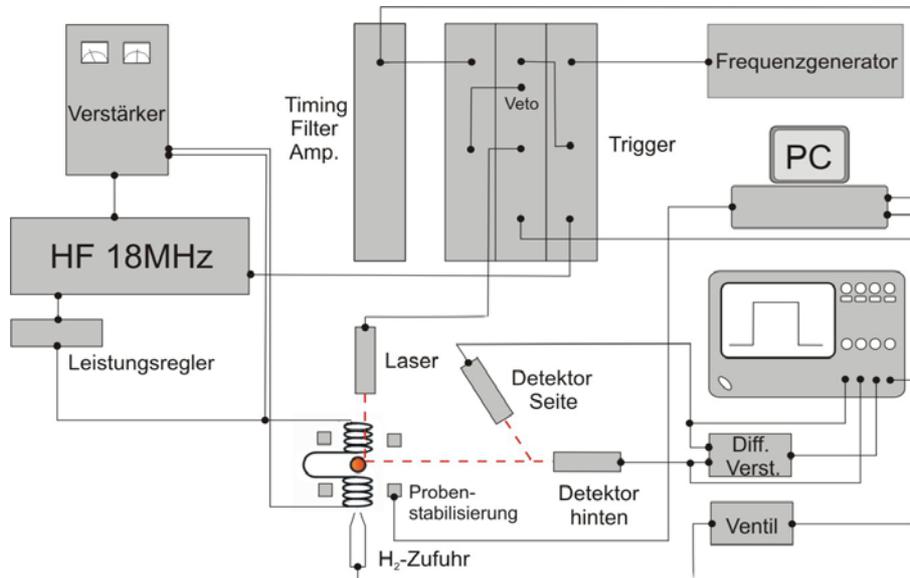


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung der Levitationsanlage mit dem weiteren Ausbau zu Kerr-Effekt-Messungen. Über die beiden Rechner wird der Ablauf der Messung synchronisiert. Sowohl die horizontale Stabilisierungsregelung und die Hochfrequenz, als auch der Laser und die  $H_2$ -Zufuhr werden so in der gewünschten Reihenfolge und den erforderlichen Zeitabständen ein- und ausgeschaltet.

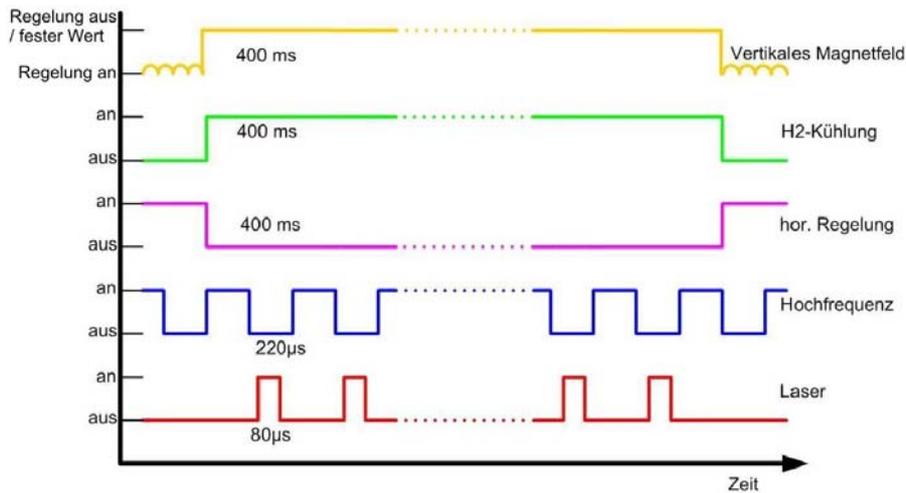


Abbildung 4.11: Zeitlicher Ablauf einer Messung: Die Hochfrequenz wird mit 250Hz gepulst (HF-Pulslänge =  $220\mu\text{s}$ ) und das vertikale Magnetfeld auf einen konstanten Wert eingestellt. Der vom PC ausgelöste 400ms lange Triggerpuls schaltet die  $H_2$ -Kühlung an und die horizontale Regelung aus und legt die Länge der Messsequenz fest. Die Lasersignale ( $85\mu\text{s}$ ) werden nur dann aufgezeichnet, wenn die HF ausgeschaltet ist.

# Kapitel 5

## Messung und Ergebnisse

Die ersten Kerr-Effekt-Messungen haben gezeigt, dass über eine längere Messzeit die Messparameter sich so extrem ändern, dass die Ergebnisse in ihrer Genauigkeit und Aussagekraft stark beeinträchtigt wurden. Die Dauer einer Messreihe lag bei mehreren Stunden für eine einzige Magnetisierungskurve von 5-10 Messpunkten, eine Zeit, in der die Apparatur den verschiedensten Einflüssen und Veränderungen ausgesetzt war (Raumtemperaturänderungen, mechanische Erschütterungen, Materialdehnungen, etc...). Die Temperatur wurde für jeden Messpunkt von Hand eingestellt, so dass die Temperaturauflösung  $>10\text{K}$  betrug und somit diese Methode ungeeignet für die Messung eines so kleinen Bereichs wie der des Phasenübergangs war. Außerdem ließ sich die Überwindung der letzten 20K bis zur Curie-Temperatur wegen der großen Instabilität des Systems kaum realisieren, was bei der vergleichsweise langen benötigten Messzeit ein nicht zu lösendes Problem darstellte. Daher musste eine neue Messmethode entwickelt werden, die eine höhere Temperaturauflösung bei kurzen Messzeiten und hoher Messpunktzahl gewährleisten konnte. Im folgenden Kapitel wird zunächst dieses neue Messverfahren vorgestellt, und daran anschließend werden die damit gewonnenen Ergebnisse präsentiert und interpretiert.

### 5.1 Messung

An dieser Stelle wird zunächst die Datenerfassung der Messsignale erläutert, um dann die Methodik und die Messempfindlichkeit und die damit verbundene Streuung der Messwerte darzustellen. Für die oben geschilderten Schwierigkeiten werden Lösungen präsentiert und die durch die Modifizierung des Verfahrens erzielten Verbesserungen erläutert. Anschließend werden die so gewonnenen Daten analysiert und die anlagebedingte Kalibrierung der Messgrößen durchgeführt.

### 5.1.1 Detektorsignale

Die beiden Detektoren (Photodioden) liefern Rechtecksignale, deren Länge von der Pulslänge des an der Probe reflektierten Laserstrahls abhängt. Die Höhe der Signale wird durch die Intensitätsstärke der einzelnen Polarisationskomponenten des ordentlichen und außerordentlichen Strahls am Analysator bestimmt. Beide Signale werden am Speicheroszilloskop aufgezeichnet.

Der Verlauf des Signals wird durch die Oberflächenqualität der Probe bestimmt. Während bei der flüssigen Probe durch die fast perfekt reflektierende Oberfläche ein glattes, gleichmäßiges Signal entsteht, liefert die feste Probe ein nur halb so großes Signal mit einem unregelmäßigen Verlauf (Abb.5.1)..

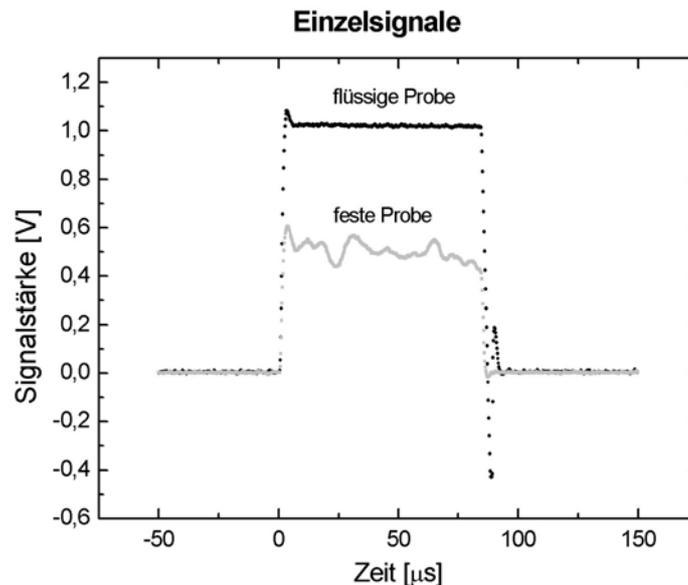


Abbildung 5.1: *Detektorsignale. Flüssige Probe:* Die Oberfläche der Probe ist ein fast perfekter Spiegel, was einen gleichmäßigen, reproduzierbaren Verlauf der Signale bietet. *Feste Probe:* Der Verlauf wird durch die raue Oberfläche der festen Probe beeinflusst. Durch die Eigenrotationen der Probe findet die Reflexion nicht mehr an derselben Position statt, was zu Unregelmäßigkeiten in der Signalform führt.

Anhand der Detektorsignale lässt sich so leicht prüfen, ob die Proben während der Aufzeichnung flüssig oder fest waren. Diese Besonderheit bietet jederzeit eine zusätzliche Kontrollmöglichkeit zur Temperaturoaufzeichnung (wobei ein Temperatursprung für wenige Millisekunden aufgezeichnet wird) für den Aggregatzustand der Proben.

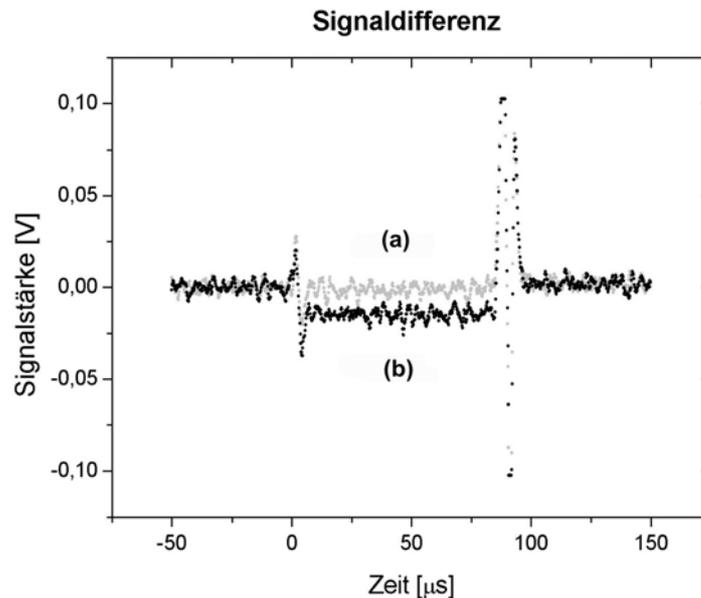


Abbildung 5.2: Differenzsignal ohne (a) und mit (b) Polarisationsdrehung: Die Signale der beiden Dioden werden durch einen Differenzverstärker geschickt. Der Analysator wird so eingestellt, dass die Differenz zwischen den Flächeninhalten Null wird. Ändert sich etwas an der Polarisationsrichtung, so macht sich dies über die Veränderung der Signaldifferenz bemerkbar. Damit erhält man über die Amplitudendifferenz dieser Signale einen Maßstab für die Drehung der Polarisationssebene und damit auch für die Magnetisierung.

Außerdem zeigt das Signal der flüssigen Phase einen gleichmäßigen, reproduzierbaren Verlauf, während das der festen Phase bei jedem Messpunkt ein völlig anderes Signalmuster einnimmt. Die Ursache dafür ist die raue Oberfläche der festen Probe, die durch die ungleichmäßige Kristallisation der Probe entsteht. Die Reflexion findet durch die Eigenrotationen der Probe bei unterschiedlichen Messaufzeichnungen nicht in derselben Position statt, was sich dann in der Signalqualität widerspiegelt. Die Über- und Unterschwinger am Signalanfang und -ende kommen durch den in der Photodiode integrierten Verstärker zustande und werden zur späteren Auswertung nicht herangezogen.

Der Vergleich der beiden Detektorsignale des seitlichen und hinteren Strahlenganges macht es möglich, sowohl qualitative als auch quantitative Aussagen über physikalische Effekte zu treffen, die an der Probenoberfläche stattfinden.

Die Empfindlichkeit der Messung hängt von der Genauigkeit ab, mit der man den Amplitudenunterschied der Detektorsignale einstellen und bestimmen kann. Sie

ist durch die Einstellgrenzen der Analysiervorrichtung, die Empfindlichkeit der Photodioden sowie die Auflösung des Oszillographen determiniert.

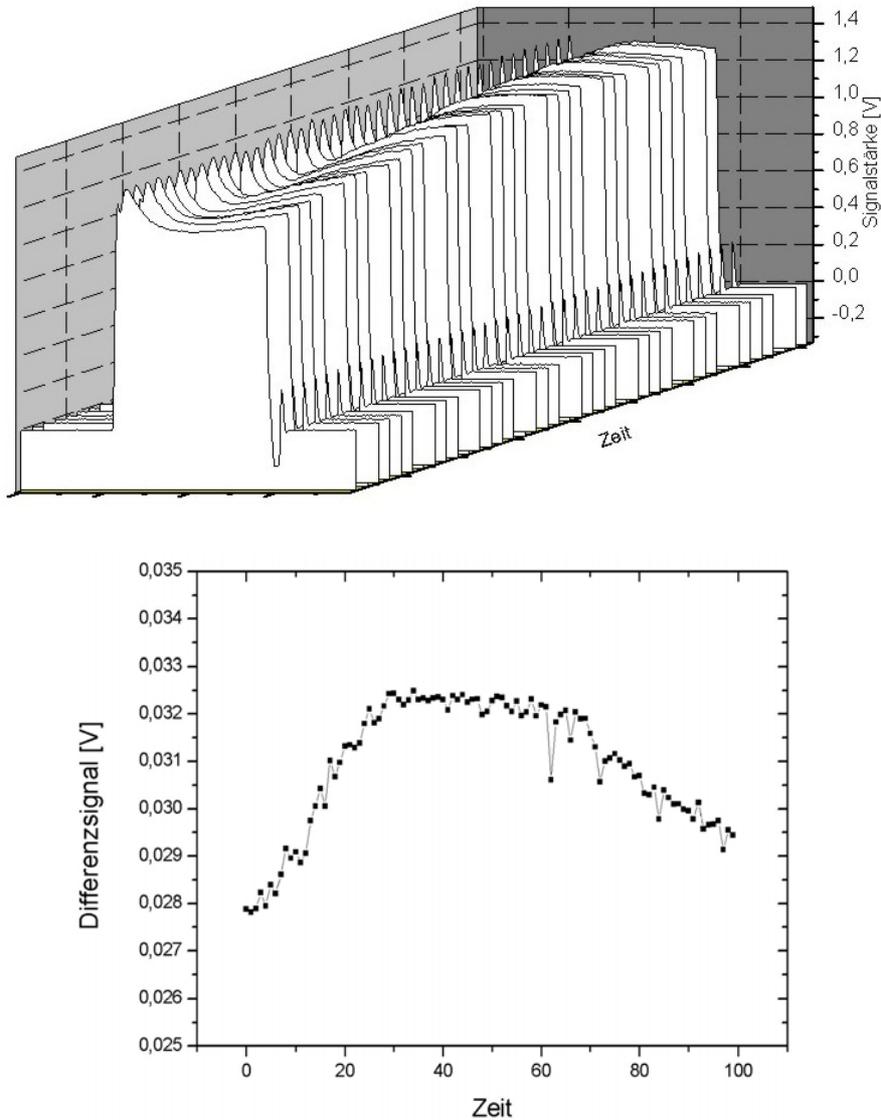


Abbildung 5.3: *Signalverhalten über längere Messzeiten: Oben:* Aufnahmen bei festem Temperaturwert und ohne Magnetfeld bei unveränderter Einstellung. Bei längeren Messzeiten werden Änderungen in der Signalhöhe von bis zu 0,3 V innerhalb einer Stunde gemessen. *Unten:* Die Signalschwankungen machen sich auch in der Änderung des Differenzsignals bemerkbar.

Zusätzlich zu der Erfassung der beiden Detektorsignale wird außerdem ein Differenzsignal aufgezeichnet. Dieses bildet die Differenz der beiden Einzelsignale, die durch einen elektronischen Differenzverstärker geschickt werden. Bei einer un-

magnetisierten Probe, d.h. bei Messungen mit höheren Temperaturen, wird der Analysator so eingestellt, dass das Differenzsignal verschwindet. Bei tieferen Temperaturen, in der Nähe der Curie-Temperatur, ist eine deutliche Signalhöhenänderung mit dem Differenzverstärker messbar. Dieses Signal ist somit ein Maß für die Drehung der Polarisationssebene bei der Reflexion an der Probenoberfläche und damit auch ein Maß für die Magnetisierung der Probe. An der Höhe des Differenzsignals kann die Stärke der Drehung und am Vorzeichen die Richtung abgelesen werden.

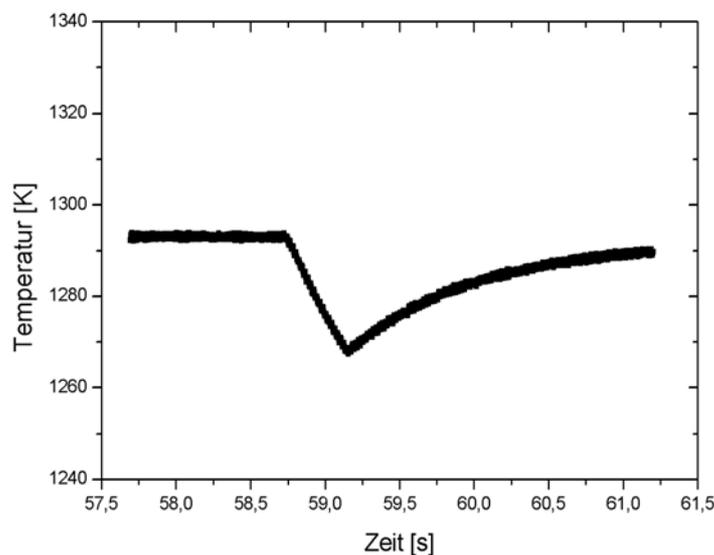


Abbildung 5.4: *Unterkühlungsstufe*: Durch die Verwendung einer Wasserstoffgasdüse wird die Temperaturänderung von der HF-Leistung getrennt. Sie ermöglicht zudem auch eine Verbesserung der Positionsstabilität der Probe in der Nähe von  $T_C$ . Die Wasserstoffzufuhr wird von einem Ventil dosiert, das sich über ein TTL-Signal vom PC ansteuern lässt.

Die Veränderung der Anlagekenngrößen über die langen Messzeiten erwies sich als technische Empfindlichkeitsgrenze, die zusammen mit der schlechten Temperatureauflösung eine neue Messmethode erforderte.

### 5.1.2 Messmethode

Bei früheren Messungen legte man die Temperatur auf einen bestimmten Wert fest und für jeden Wert wurden einzelne Messpunkte aufgezeichnet. So wurden schrittweise, bis zur Rekaleszenz, Punkt für Punkt Differenzsignale aufgenommen in Temperaturintervallen von 10-15K. Dabei wurde die Temperatur allein durch

die Reduzierung der HF-Leistung gesenkt, was auch eine Positionsänderung bedeutete. Das erforderte jedesmal eine Neujustierung der optischen Komponenten, ohne dabei in den Messdaten einen Bezugspunkt für die neue Konfiguration zu erhalten. Das führte bei jeder Messung zu starken Schwankungen der Offsets ohne die Möglichkeit einer einheitlichen Zuordnung. Da die Messung des Kerr-Winkels gerade von diesen Größen abhängt, konnten so keine aussagekräftigen Ergebnisse erzielt werden.

Bei der neuen Methode wurde die Temperaturänderung von der HF-Leistung durch die Verwendung einer Wasserstoffgasdüse (s. Kapitel 4.3) getrennt. Dies ermöglicht Unterkühlungsstufen von bis zu 50 K auch für kurze Zeitintervalle ohne eine detektierbare Positionsänderung der Probe. An den von den Vierfelddioden aufgenommenen Signalen lässt sich kein Einfluss der Kühlvorrichtung auf die Position der Probe erkennen. Die Temperatursenkung zeigt vielmehr einen linearen Verlauf. Über ein Markierungssignal können nun bei der Auswertung die entsprechenden Temperaturwerte den einzelnen Laserpulsen zugeordnet werden. In den tieferen Temperaturbereichen nahe  $T_C$  werden kleinere Unterkühlungsschritte ( $\sim 15\text{K}$ ) vorgenommen, um die Gefahr einer frühzeitigen Rekaleszenz zu reduzieren. Die Wasserstoffkühlung erwies sich dabei auch als vorteilhaft für die Positionsstabilisierung da sie die in der Nähe von  $T_C$  auftretende Absenkung der Probe im stärkeren Feldbereich der Spule kompensieren konnte.

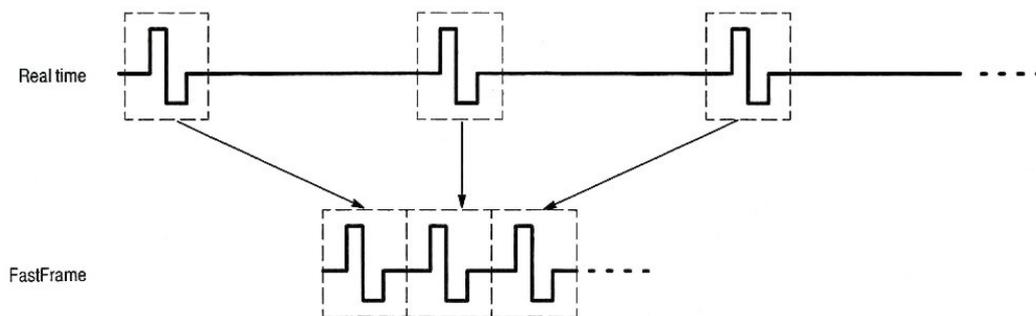


Abbildung 5.5: Funktionsweise des Fast-Frame-Modus: Einzelne Peaks werden aus dem Signalverlauf erkannt und aufgezeichnet. In 400ms können so ohne Auflösungsverlust 100 Frames mit jeweils 10.000 Messpunkten aufgenommen werden.

Eine weitere Verbesserung ist die Kürzung der Messzeiten durch den veränderten Messablauf (s. Kapitel 4.6). Zunächst wurde getestet, wie weit man die Messzeiten reduzieren kann, ohne die Messparameter zu beeinflussen. Es wurden Messintervalle von 400ms gewählt, bei denen sich Unterkühlungsschritte von 10-20K als sinnvoll erwiesen. Daraufhin wurde ein neues Verfahren entwickelt, bei dem der sogenannte "Fast-Frame-Modus" eingesetzt wird. Dieser erkennt die einzelnen

Peaks aus einem vordefinierten Signalabschnitt und speichert sie ab, so dass keine Reduzierung der Auflösung der *Frames* (Aufnahme eines Messzyklus) notwendig ist.

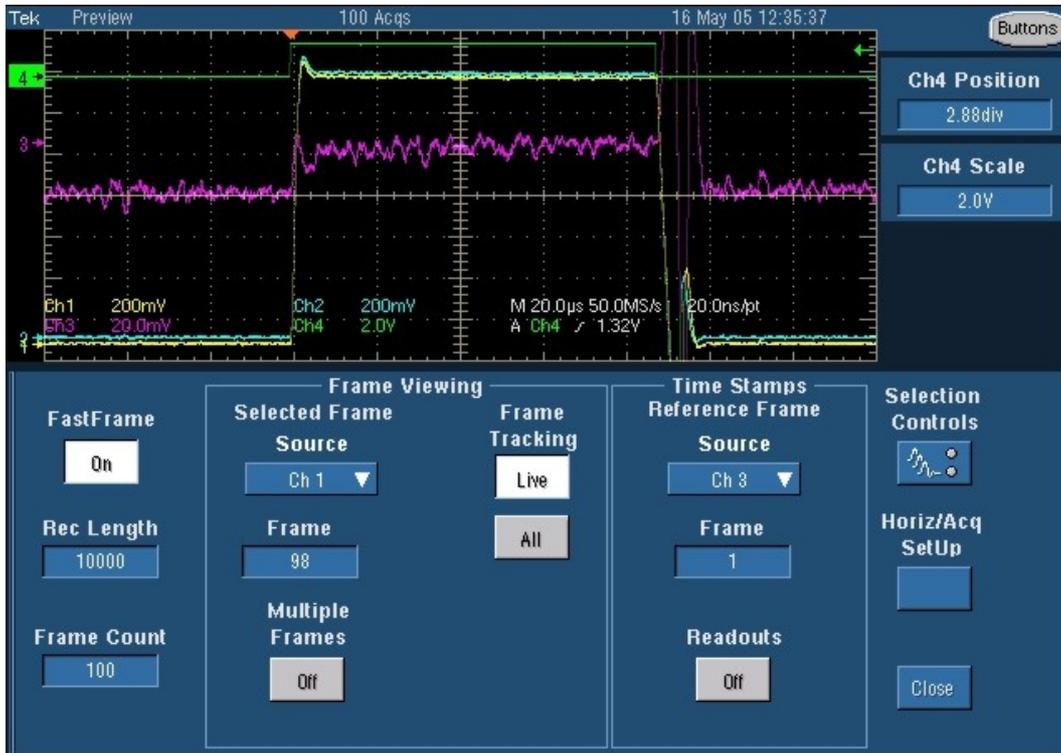


Abbildung 5.6: Typische Signalaufzeichnung im Fast-Frame-Modus. Gleichzeitig können für jeden Frame die einzelnen Detektorsignale, das Differenzsignal und das Triggersignal aufgenommen und dann getrennt gespeichert werden.

So können in einem Messintervall von 400ms 100 Detektorsignale mit jeweils 10.000 Messpunkten<sup>1</sup> aufgezeichnet werden. Die hohe Auflösung ist notwendig, da ein relativ kleiner Kerr-Effekt zu erwarten ist und damit einhergehend auch kleine Differenzsignale. Da die Laserpulse 80µs lang sind, wurde die Framelänge auf 200µs eingestellt, um so auch ein Offset der Signale für die spätere Auswertung aufzuzeichnen.

Die Temperatur wird gleichzeitig über die AD-Karte alle 2ms aufgenommen, so dass jedem Differenzsignal ein Temperaturwert zugeordnet werden kann. Nach

<sup>1</sup> Die Messauflösung wird durch die Einstellungsmöglichkeiten des Oszilloskops vorgegeben. Im Fast-Frame-Modus können pro Kanal 1.000.000 Messpunkte aufgezeichnet werden. Bei einer aufgenommenen Signallänge von 200µs mit einer *Sample Rate* von 50MS/s und einer Abtastungsgenauigkeit von 20ns ergibt sich dann eine Messauflösung von 10.000 Messpunkten/Frame.

dem Aufzeichnen der Messwerte über 400ms wird die Temperatur über den Leistungsregler gesenkt und kann dann erneut gemessen werden. So wird weiter fortgefahren, bis die Rekaleszenz der Probe eintritt.

Mit diesem Verfahren lassen sich somit die Messzeiten je nach Länge des gemessenen Temperaturabschnitts und Einstellung der Unterkühlungsstufen auf einige Minuten reduzieren. Wegen der erheblichen Datenmenge (>0,5GB/Magnetisierungskurve) und der unterschiedlichen Aufzeichnungsverfahren für Differenzsignale und Temperatur an getrennten Computern werden die Daten zunächst aufgenommen und dann später am PC ausgewertet.

Die Frames werden in mehrere Teilbereiche aufgesplittet, so dass der Über- und der Unterschwinger nicht in die Rechnung einbezogen werden. Über dem Null-Offset- und Pegelbereich des Rechtecksignals wird gemittelt und aus der Differenz die einzelnen Messpunkte in den Magnetisierungskurven berechnet.

Mit dieser Messmethode lassen sich während des gesamten Phasenübergangs und auch für den kurzen Aufenthalt der Probe unter Curie-Temperatur genügend Messpunkte erzielen, um das Magnetisierungsverhalten der Probe in diesem kritischen Bereich beschreiben zu können.

### **5.1.3 Messempfindlichkeit**

Die Messempfindlichkeit der beschriebenen Anlage hängt von vielen Faktoren ab. Diese sind, wie bereits erwähnt, zunächst mechanischer Natur, weil jede Art von Erschütterung, Eigenschwingungen der Anlage oder mechanischen Dehnungen der einzelnen Bauteile, sich auf die Schwebestabilität der Probe auswirkt. Die große Anzahl der elektronischen Geräte und Messinstrumente bringt außer den eigenen Messempfindlichkeitsgrenzen auch Störungen und Einflüsse der Signalqualität mit sich. Das Ein- und Ausschalten des HF-Signals über einen externen Frequenzgenerator führte zu einer Überlagerung mit der neuen Schwingungskomponente, was sich in einer starken Beeinträchtigung des Leistungssignals äußerte (s. Abb. 5.7).

Diese Störung wurde durch die Auswahl einer geeigneten Modulationsfrequenz des externen Frequenzgenerators und einer relativen Frequenzstabilisierung weitgehend eliminiert.

Eine andere Quelle von Störungen sind die Streukomponenten des Laserlichtes, die durch Reflexionen an den Wänden des UHF-Rezipienten oder an der Spule

zusätzliche Polarisationskomponenten einbringen, die die Linearität des polarisierten Laserlichtes negativ beeinflussen.

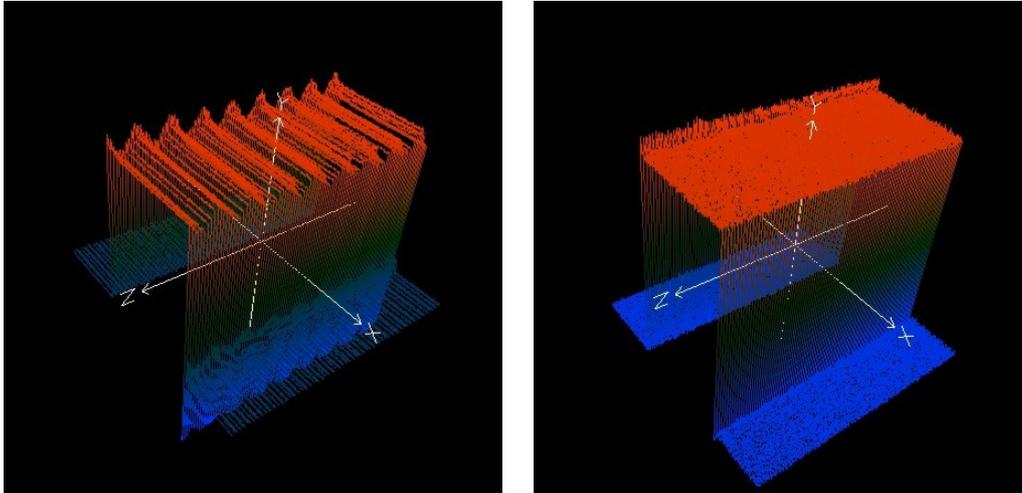


Abbildung 5.7: *Signalschwankungen*. Der Hochfrequenzgenerator wurde extern moduliert. Das Ein- und Ausschalten des HF-Signals brachte eine Störung, die sich in der Amplitude der Detektorsignale wiederfand.

Der Einfluss dieser Störkomponenten der Reflexion schlug sich in einer breiten Streuung der Messwerte des Differenzsignals nieder. Somit entstand in den Messkurven ein starkes Rauschen, in dem der erwartete relativ kleine Kerr-Effekt zu verschwinden drohte. Das bereits im Abschnitt 4.5.1. erwähnte Blendensystem wurde in den reflektierten Strahl sehr nah an der Probe angebracht, so dass sich die erste 1mm Blende schon in 13mm Entfernung von der Probe befindet. Durch den Einsatz dieses Blendensystems wurde so eine  $\sim 3,5$ -fache Reduzierung der Streuwerte in der Signalbreite erreicht.

Diese Effekte ließen sich durch zwei weitere Blenden vor der Reflexion, die den Laserfleck auf der Probe reduzieren, noch weiter verbessern. Die erste Blende wurde dabei direkt vor dem Lasermodul platziert, die zweite zwischen Polarisator und Probe, in dem schon existierenden Loch des Umlenksspiegels des Pyrometers. Es wurden Blenden mit verschiedenen Durchmessern ausprobiert, bis keine weitere signifikante Verbesserung der Streuwerte mehr zu verzeichnen war. So konnte eine weitere 3-fache Reduzierung des schon verbesserten Rauschverhältnisses erzielt werden.

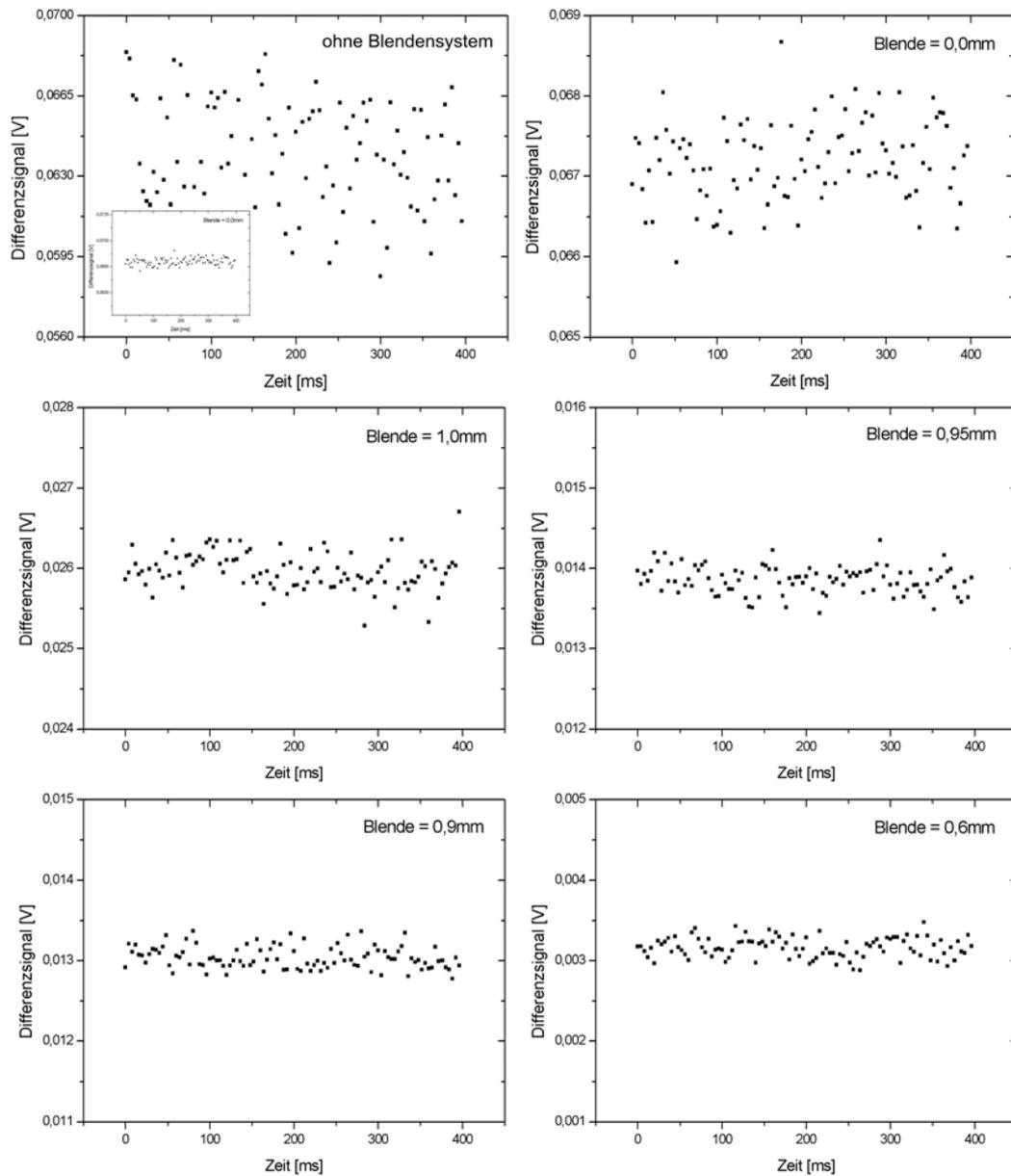


Abbildung 5.8: *Streuung der Messwerte des Differenzsignals.* Die Streukomponenten des Laserlichtes bringen durch Reflexionen an den Wänden des UHF-Rezipienten oder an der Spule zusätzliche Polarisationskomponenten, die eine breite Streuung der Messwerte des Differenzsignals verursachen. *Links oben:* Ohne Blendensystem und ohne die zusätzliche Blende vor dem Lasermodul. *Im Insert:* Bild rechts oben mit der gleichen Skalierung. Die anderen Bilder zeigen die Verbesserung durch die Reduzierung des Laserflecks auf der Probe mittels der vor dem Lasermodul eingebrachten Blende.

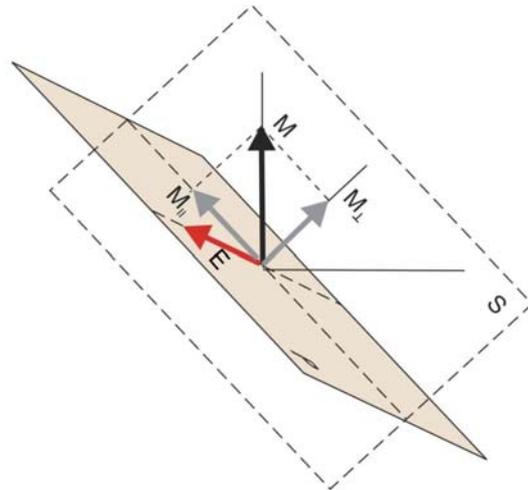
## 5.2 Ergebnisse

Nachdem die Störquellen und damit die große Streuung der Messwerte weitgehend beseitigt werden konnte, wurden verschiedene Messungen an der flüssigen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Probe bei unterschiedlicher Magnetfeldstärke durchgeführt.

### 5.2.1 Magnetisierungsabhängigkeit

Um die erwartete Domänenbildung unter Curie-Temperatur nicht zu zerstören, wurden möglichst kleine äußere Magnetfelder in die Probe induziert. Bei allen Messungen an der geschmolzenen Probe wurden nur Außenfelder mit einem festen Wert zwischen 0 bis 10mT gewählt. Die Magnetfelder wurden über den Pfannkuchenmagneten der vertikalen Regelung senkrecht zur Polarisierung des Lasers induziert, d.h. in diesem Fall parallel zur Einfallsebene. Damit ergibt sich am Messfleck eine Kombination von polarem und longitudinal senkrechtem Kerr-Effekt (s. Abb. 5.9). In der beschriebenen Anordnung addieren sich diese beiden.

Abbildung 5.9: *Kerr-Effek-Konfiguration an der Probenoberfläche.* Das vom vertikalen Regelungsmagneten erzeugte Magnetfeld  $M$  liegt in der Einfallsebene  $S$  des Laserstrahls. Die senkrecht zur Probenoberfläche  $P$  stehende Komponente  $M_{\perp}$  bewirkt einen polaren Kerr-Effekt, während die parallel orientierte  $M_{\parallel}$  einen longitudinalen senkrechten Effekt erzeugt. Die beiden addieren sich in dieser Anordnung.



In Abb. 5.10 werden in dieser Konfiguration aufgezeichnete Messkurven für 0mT, 5mT und 10mT Außenfelder dargestellt. Bei diesen Messungen wurden die Amplituden der Differenzsignale für einen Temperaturbereich von  $T \approx 1315\text{K}$  bis  $T \approx 1250\text{K}$  ermittelt. Dabei befand sich die Probe bei allen Messungen über den gesamten Temperaturbereich in der flüssigen Phase. Wie erwartet entsteht bei diesen kleinen Magnetfeldern bis zur Curie-Temperatur<sup>2</sup> keine ferromagnetische Ordnung und damit auch kein Kerr-Winkel. Nahe  $T_C$  zeigen die aufgenommenen Magnetisierungskurven einen abrupten Anstieg, der auf eine hohe Abhängigkeit von der Stärke der angelegten Magnetfelder hinweist.

<sup>2</sup>  $T_C$  in der flüss. Phase ( $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ ) liegt bei 1253K nach [RHK<sup>+</sup>95] und bei 1251K nach [Büh98].

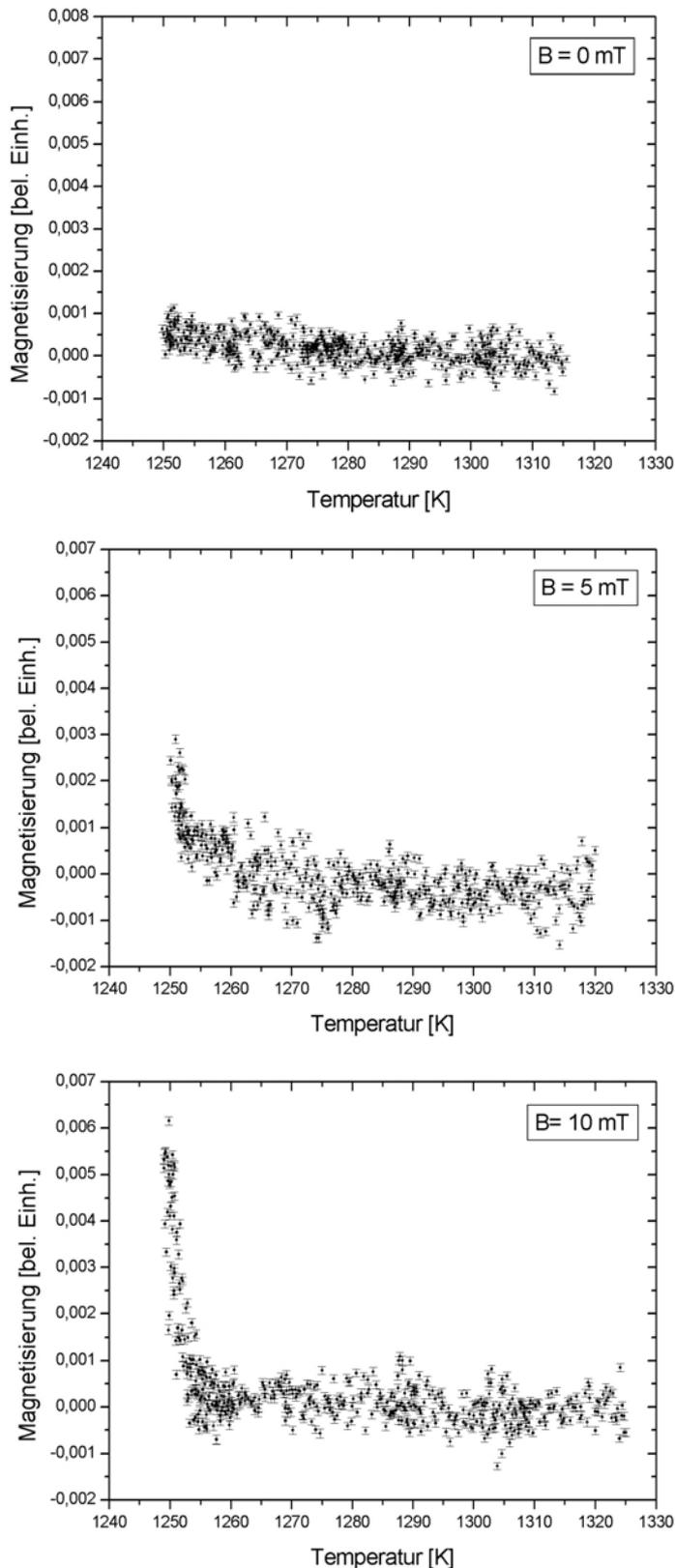


Abbildung 5.10: *Abhängigkeit von der angelegten Magnetfeldstärke. Oben:* In Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes zeigt die gemessene Magnetisierungskurve keine Veränderung im Verlauf in der Nähe von  $T_C$ . *Mitte und Unten:* Es wurden kleine äußere Magnetfelder induziert (5mT und 10mT), um eine Domänenbildung unter  $T_C$  nicht zu zerstören. Bis  $T_C$  bleibt der Verlauf der aufgenommenen Magnetisierungskurven unverändert. In unmittelbarer Nähe von  $T_C$  zeigen die Kurven einen abrupten Anstieg, der auf das Auftreten spontaner magnetischer Ordnung hinweist. Der Anstieg zeigt eine Abhängigkeit von der Stärke der angelegten Magnetfelder.

Die Messung ohne ein angelegtes äußeres Magnetfeld zeigt keinen deutlichen Anstieg in der Magnetisierungskurve. Dies war insofern zu erwarten, als das Magnetisierungsfeld den Kerr-Effekt phänomenologisch ja bedingt.

### 5.2.2 Winkelkalibrierung und Datenanalyse

Um einen Maßstab für die Kerr-Drehung zu erhalten, wurde zur Kalibrierung dieser Messmethode die Amplitudenhöhe des Differenzsignals in Abhängigkeit von dem verstellten Winkel gemessen. Es wurden Messreihen für verschiedene Winkeleinstellungen des Analysators bzgl. der Polarisationssebene des Lasers durchgeführt. Für jede Messreihe wurde der Mittelwert gebildet, der dann gegen den eingestellten Winkel aufgetragen wurde (s. Abb. 5.11). So konnte jeder Amplitude des Differenzsignals ein bestimmter Winkel zugeordnet werden.

Alle Messreihen wurden unter gleichen Bedingungen durchgeführt, bei gleicher Temperatur und ohne eingeschaltetes Magnetfeld. Beim Auftragen der ermittelten Abhängigkeit ist das erwartete lineare Verhalten deutlich zu erkennen. Anhand dieser Kalibrierung ließen sich dann alle nachfolgenden Winkel berechnen.

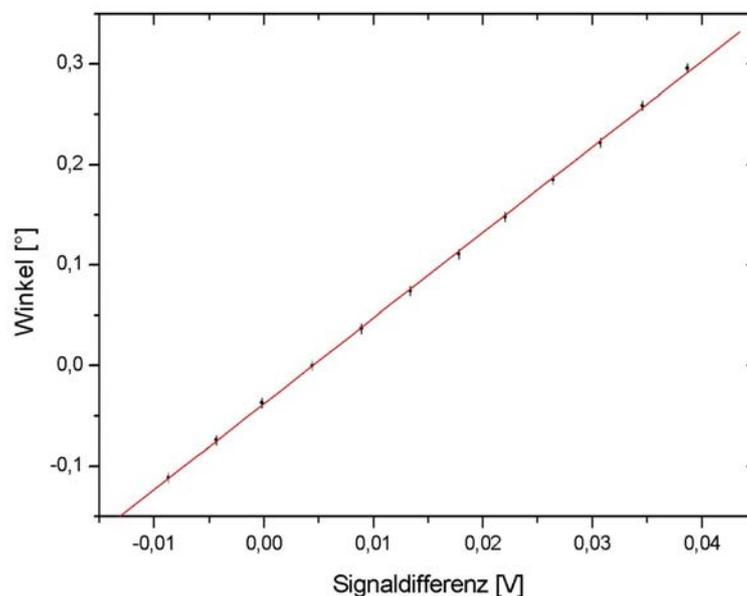


Abbildung 5.11: *Winkelkalibrierung der Differenzsignale*. Die berechneten Amplituden der Differenzsignale aus verschiedenen Messreihen können so einem bestimmten Winkel zugeordnet werden. Es wurde Schritt für Schritt die Winkeleinstellung des Analysators bzgl. der Polarisationsrichtung geändert.

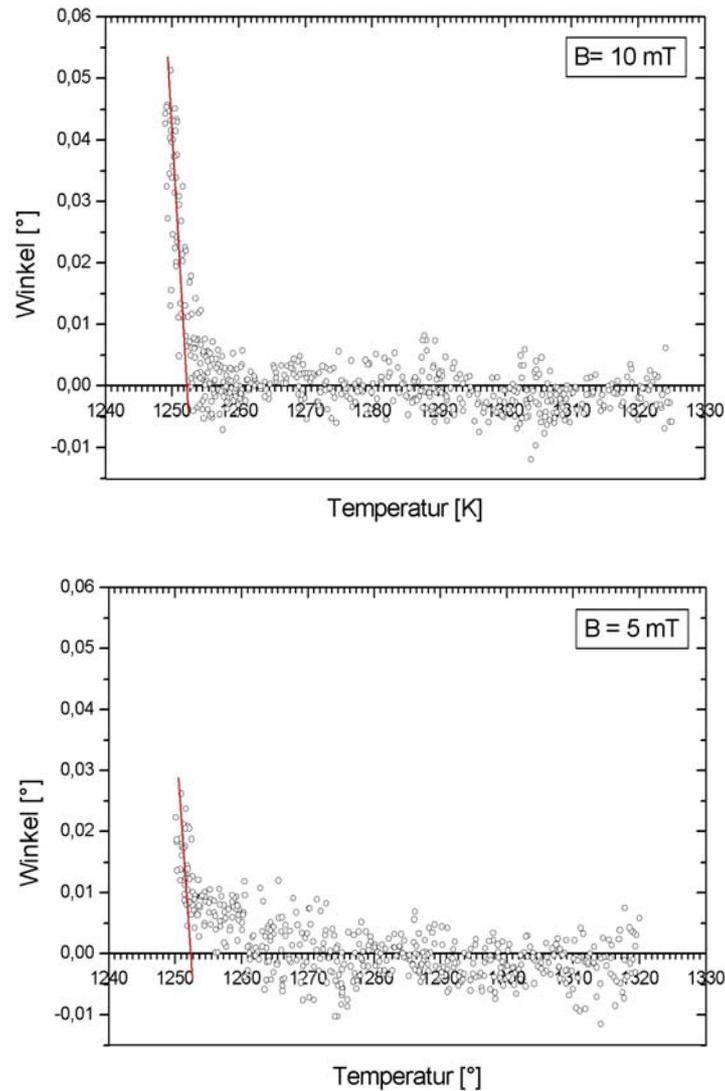


Abbildung 5.12: *Kerr-Winkel bei unterschiedlichen Magnetfeldstärken.* Für kleine äußere Magnetfelder wurden Kerr-Drehungen bis  $\sim 0,05^\circ$  gemessen. Diese Werte entsprechen den in der Fachliteratur dokumentierten typischen Kerr-Winkel-Größen.

Die Messungen bei 5mT und 10mT ergaben nach der Kalibrierung Kerr-Winkel von  $0,03^\circ$  bis  $0,05^\circ$ , was typische Werte für derart kleine äußere Magnetfelder sind. In der Fachliteratur findet man Werte um  $0,01^\circ$  für den longitudinalen und  $0,05^\circ$  für den polaren Kerr-Effekt, die je nach Material und Feldstärke variieren [WB88, Sch92]. Da bei den in diesem Experiment gemessenen Drehungen sowohl polare als auch longitudinale Komponenten des Kerr-Effekt auftreten, bewegen sich diese Werte im Rahmen der experimentellen Erfahrung, was insoweit ihre Aussagekraft bestätigt.

Leider lassen sich an den gemessenen Kurven am Phasenübergang keine Anpassungen mit der Funktion  $M \sim (1-T/T_C)^{\beta}$  für eine genaue Bestimmung von  $T_C$  durchführen, weil dafür ausreichend viele Messwerte im Sättigungsbereich notwendig wären. Mit dem Wissen, dass bei Kerr-Winkel-Messungen der Fit an der ansteigenden Kante entlang der Messwerte quasi linear verläuft, wurde hier daher ein linearer Fit durchgeführt. Auf diese Weise lässt sich die Curie-Temperatur schätzen, die für diese Messungen demnach bei 1253K liegt.

Der Bereich des Phasenübergangs, d.h. die letzten 10-15K, wurde dann noch einmal sorgfältig untersucht. Bei genauerem Betrachten der Daten der letzten Messreihen und nach einer weiteren Bearbeitung der Daten durch Datenglättung (gleitender Durchschnitt) konnte dabei die Andeutung eines Plateaus am Ende der Kurve festgestellt werden. Es ist ein kleiner Bereich von  $\sim 0,5K$ , in dem der Anstieg der Kurve nicht fortgesetzt wird, obwohl die Temperatur weiter sinkt. Er kommt bei allen Messreihen vor, die bis unter  $T_C$  aufgezeichnet wurden (s. Abb. 5.13-14-15) und sein Auftreten ist von der Stärke des angelegten Magnetfeldes unabhängig. Das ist ein Hinweis darauf, dass die spontane Magnetisierung stattgefunden hat und dass der Sättigungsbereich erreicht wurde.

Die Messkurven, bei denen die Wasserstoffzufuhr ihr Limit an Unterkühlung schon vor dem Ende der Aufnahme erreicht hat, zeigen zunächst auch einen ähnlichen Verlauf, der aber dann mit einer Ansammlung von Messpunkten bei einer bestimmten Temperatur aufhört (s. Abb. 5.16 oben). Während die Temperatur nur noch wenig abnimmt (quasi stabile Temperatur), scheint die Magnetisierung jedoch weiter zu steigen, was unter phänomenologischen Gesichtspunkten auch stimmig ist, da die Ausbildung und Stabilisierung lokaler *Spin-Cluster* schon begonnen hat (s. Kapitel 5.3). Ansonsten stimmt der Verlauf der Kurve bis zu der bestimmten Temperatur mit dem in Abb. 5.13 überein. Dies ist auf die Einstellung der Wasserstoffkühlung zurückzuführen und zeigt sich durch ein starkes Abflachen der Temperaturaufzeichnung (exponentielle Abnahme der Temperatur) bei kleineren Unterkühlungsstufen und eine weite Öffnung des Ventils. Die Temperatur sinkt dadurch in den letzten 30-50ms minimal ab.

Ein vollkommen anderes Bild bieten die Aufzeichnungen, bei denen die Temperatursenkung einen fast linearen Verlauf zeigt, die aber auch vor dem Erreichen der Curie-Temperatur enden. Diese zeigen zunächst auch einen Anstieg der Magnetisierung, der aber dann ohne die beschriebene Anhäufung von Messpunkten oder einen Magnetisierungssprung bei der letzten erreichten Temperatur aufhört. In Abb. 5.16 (unten) kann man einen derartigen Verlauf betrachten. Es handelt sich dabei um einen Teilbereich einer ganzen Messkurve, d.h. um eine einzelne Messreihe, die mit der darauffolgenden in einem Temperaturbereich von insgesamt 35K gut übereinstimmt.

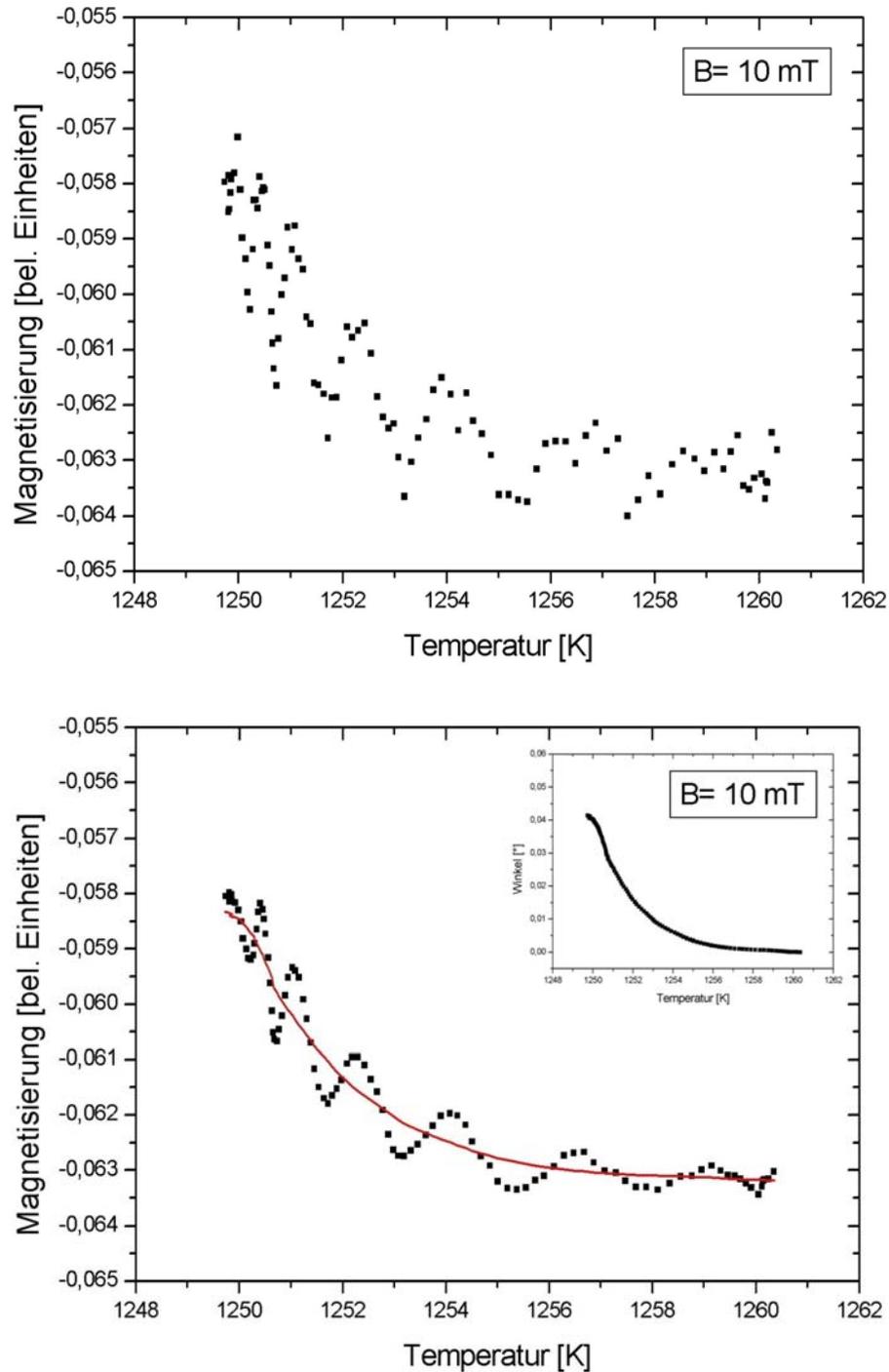


Abbildung 5.13: Messreihe im Bereich des Phaseübergangs bei 10mT. Unten: Die Datenanalyse zeigt die Andeutung eines Sättigungsbereichs bei  $T_C$ . Im Insert: Die geglättete Messkurve nach Winkelkalibrierung als Funktion der Temperatur.

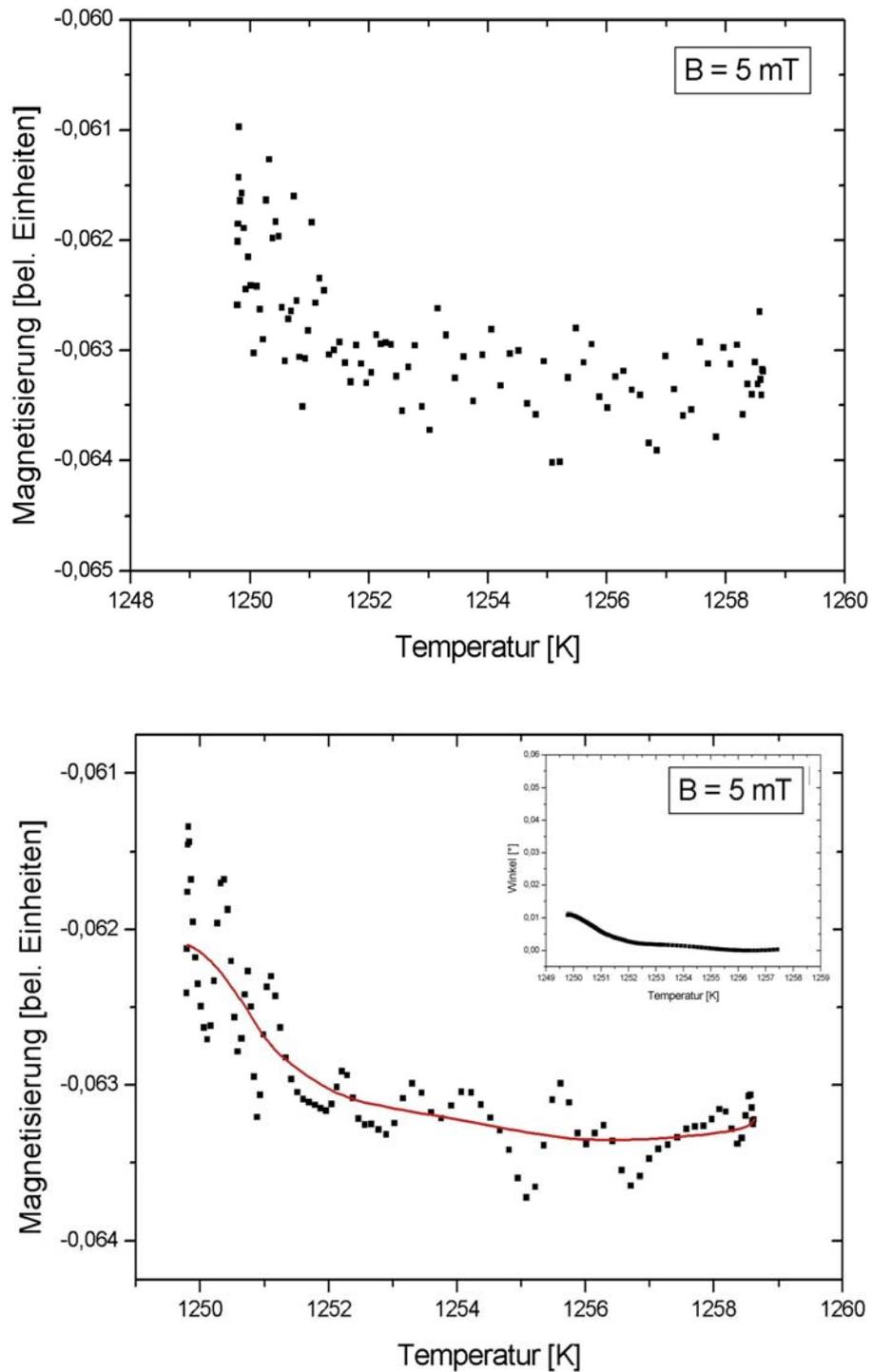


Abbildung 5.14: Messreihe im Bereich des Phasenübergangs bei 5mT. Unten: Auch hier deutet die Datenanalyse auf ein Plateau unter  $T_C$  hin. Im Insert: Die geglättete Messkurve nach Winkelkalibrierung als Funktion der Temperatur.

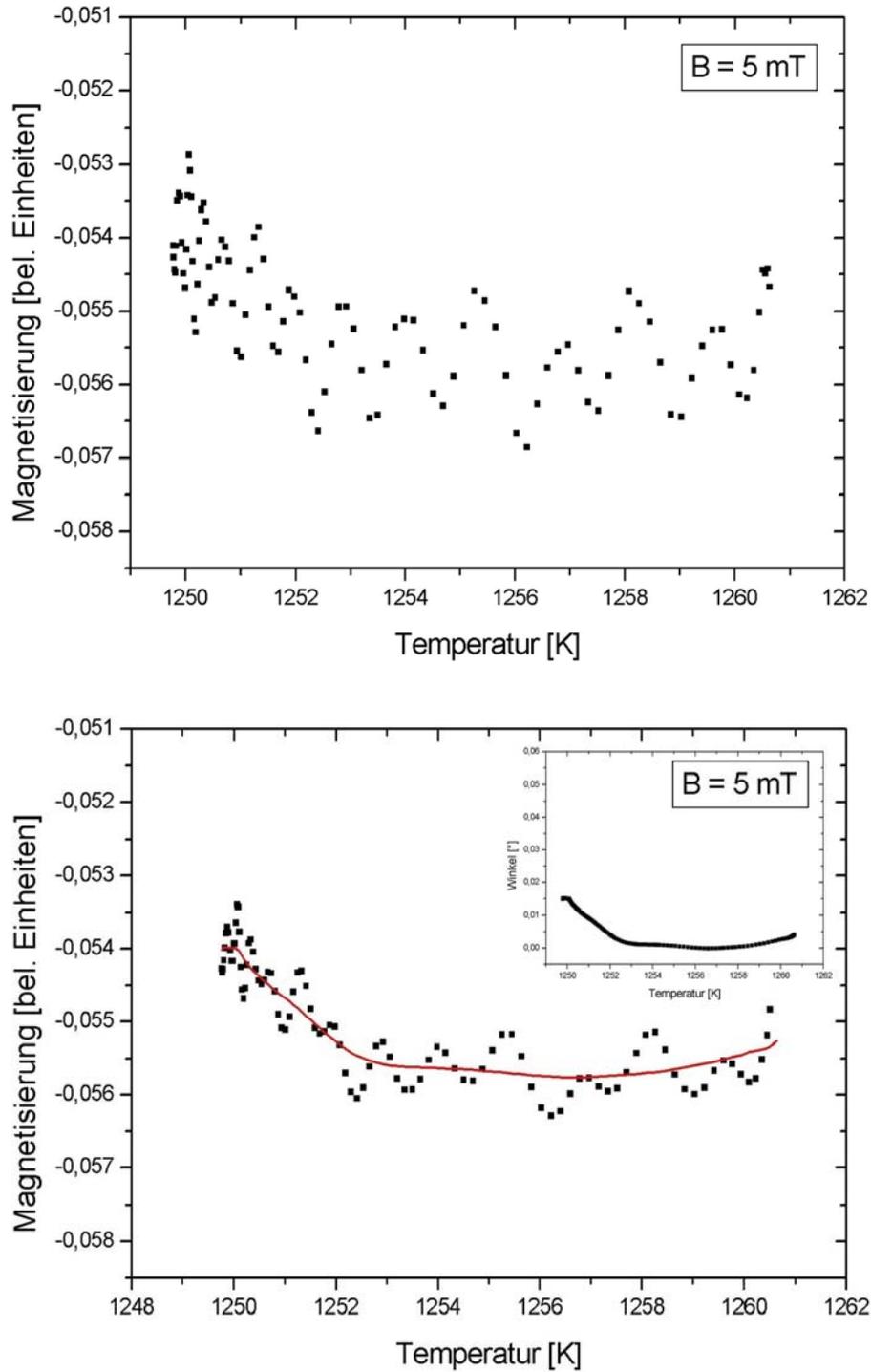


Abbildung 5.15: Weitere Messreihe im Bereich des Phasenübergangs bei 5mT. Die Kurve zeigt den gleichen Verlauf wie in Abb. 5.14. Im Inset: Die geglättete Messkurve nach Winkelkalibrierung als Funktion der Temperatur.

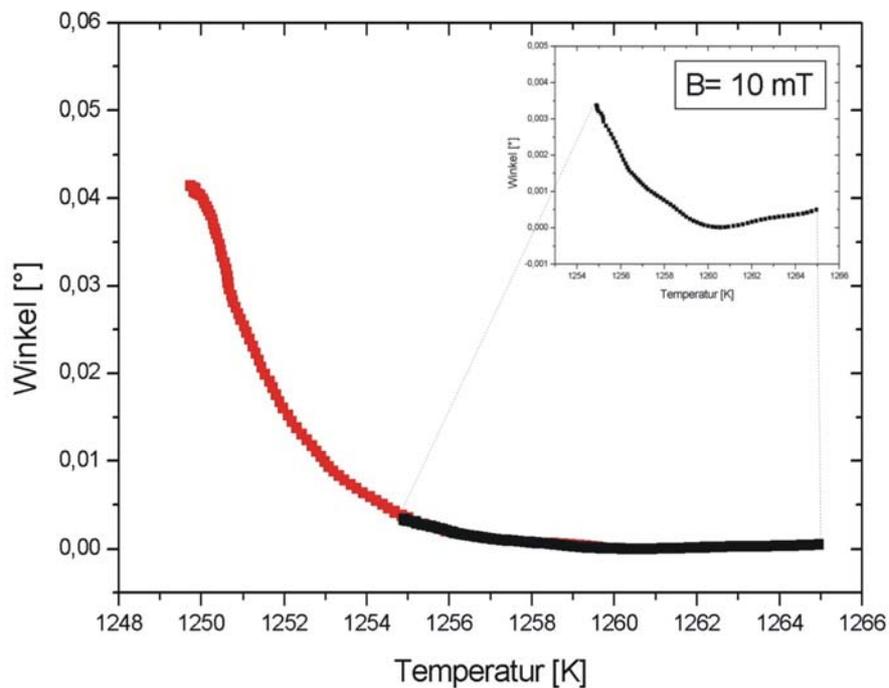
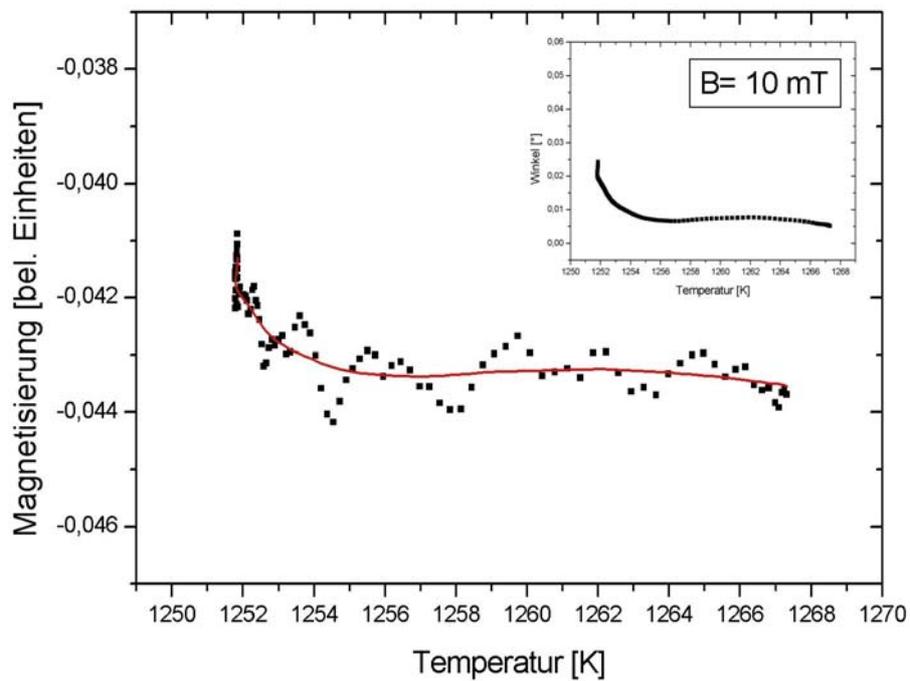


Abbildung 5.16: *Oben*: Die Messreihe zeigt am Ende einen weiteren abrupten Anstieg in der Nähe von  $T_C$  bei konstanter Temperatur (exp. Abnahme der Temp.). *Unten*: Messreihe (schwarz), die mit der nachfolgenden (rot) perfekt übereinstimmt. Sie zeigt keinen Knick im Verlauf am Ende der Kurve.

### 5.2.3 Messungen an fester Probe

Für ein besseres Verständnis der bei der flüssigen Probe erhaltenen Messergebnisse und für eine bessere Interpretierbarkeit der Daten wurde der Aufbau für Magnetisierungsmessungen an einer festen Probe modifiziert. Zu diesem Zweck wurde die Levitationsspule durch eine neue, reine Heizspule ausgetauscht, bei der aber anders als vorher die Windungen nur in einer Richtung gewickelt wurden. Das HF-Feld zeigt somit nur nach unten und fixiert die Probe in einem aus Bor-nitrid hergestellten Tiegel in der Spule. Die Probe wird wie bei dem anderen Verfahren über die HF-Leistung aufgeheizt und auch die Kerr-Effekt-Messung verläuft analog zur der mit der flüssigen Probe.

Der Umbau war notwendig, um die in Abschnitt 5.1.1 dargestellten, beim Schweben der festen Probe auftretenden Störungen im Messsignal zu vermeiden. Bor-nitrid weist eine hexagonale Kristallstruktur auf und besitzt eine Temperaturbeständigkeit bis 2500 °C. Er lässt sich außerdem mechanisch gut bearbeiten und eignet sich somit ideal als Tiegelmateriale. Der Tiegel hat eine kleine runde Vertiefung, in der die Probe positioniert wird, und um einen möglichst stabilen Sitz in der Spule zu gewährleisten, läuft er am unteren Ende konisch zusammen.

Die Detektorsignale weisen eine kleinere Intensität als bei der Reflexion an der flüssigen Probe auf, zeigen aber keine großen Schwankungen innerhalb des Rechtecks (Pegelbereich), wie sie bei der schwebenden festen Probe auftreten (die Probe dreht sich nicht mehr in diesem Fall).

Die Messung an der festen Probe zeigt einen ähnlichen Verlauf wie bei der flüssigen Probe (s. Abb. 5.17) auf. Bei  $T_C^3$  steigt die Kurve bis zur Sättigung und verläuft dann auf einem Plateau weiter. Es ist eine vom Verlauf typische Kerr-Winkel-Messkurve, die im Vergleich mit Messungen oder Computersimulationen anderer Forschungsgruppen dasselbe Verhalten aufweist [HKM<sup>+</sup>94]. Leider werden die durch die Wasserkühlung erzeugten Vibrationen ohne Dämpfung auf die Probe weitergegeben, so dass eine doch relativ große Streuung der Messwerte zu verzeichnen ist.

In Abb. 5.18 wird zum Vergleich eine Messung an der festen Probe gezeigt, die an derselben Anlage mit einem Fluxmeter<sup>4</sup> durchgeführt wurde. Sie zeigt das gleiche Abknicken der Kurve bei  $T_C$ , das auf das Auftreten ferromagnetischer Ordnung hinweist.

---

<sup>3</sup> Die Curie-Temperatur der festen Phase für  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  liegt bei  $T_C = 1273\text{K}$  [Bak92, PNH<sup>+</sup>94]

<sup>4</sup> Fluxmaster, S. Mayer Meßgeräte

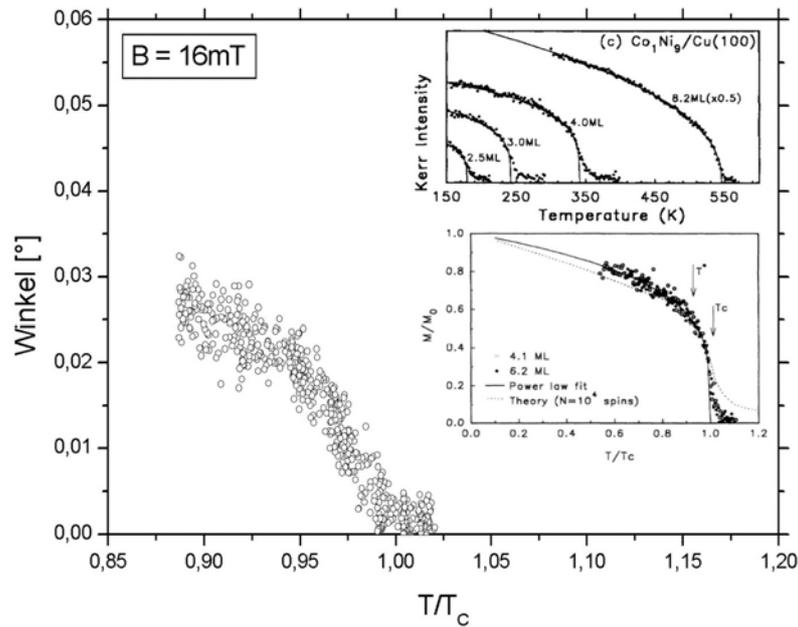


Abbildung 5.17: Messung des Kerr-Winkels an fester  $Co_{80}Pd_{20}$ -Probe. Bei  $T_C$  (feste Phase 1273K) weist die Kurve einen starken Anstieg auf, der dann in der Sättigung in ein Plateau übergeht. *Insert oben*: zum Vergleich, Kerr-Effekt-Messungen an  $Co_1Ni_9/Cu(100)$ -dünne Schichten. *Insert unten*: Monte-Carlo-Simulation für das 2D XY Modell [HKM<sup>+</sup>94].

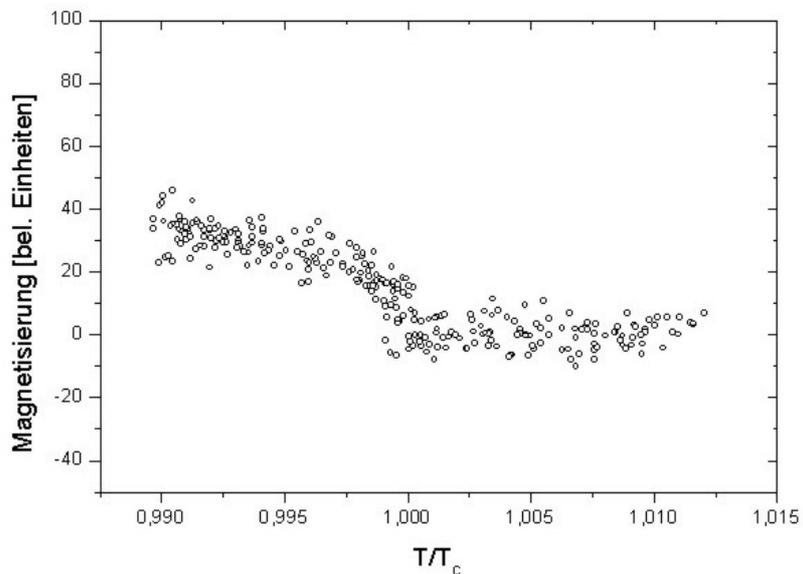


Abbildung 5.18: Magnetisierungsmessung an fester  $Co_{80}Pd_{20}$ -Probe (Fluxmeter). Sie zeigt das gleiche Verhalten der Kurve bei  $T_C$ , die auf das Auftreten ferromagnetischer Ordnung hinweist.

## 5.3 Diskussion und Ausblick

Obwohl die Möglichkeit eines Auftretens spontaner Ordnung in einer ferromagnetischen Flüssigkeit schon in den 60iger Jahren des letzten Jahrhunderts von HANDRICH postuliert wurde, gelang es erst 1997 ALBRECHT et al., den ersten experimentellen Nachweis dafür zu liefern.

Seither haben sich auch andere dieser Herausforderung gestellt und versuchen mit verschiedenen Methoden ferromagnetische Ordnung in metallischen Flüssigkeiten experimentell nachzuweisen, so z.B. die Arbeitsgruppe von Prof. Leiderer in Konstanz oder die von F. Gaucherand in Grenoble. Auch theoretische Modelle mit eigenen Dichtefunktionaltheorien wurden zur Beschreibung derartiger Systeme entwickelt, wie z.B. das von GROH und DIETRICH.

Das System  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  bietet die interessante und bislang einzigartige Eigenschaft, eine relativ kleine Temperaturdifferenz zwischen der Curie- und Liquidustemperatur zu besitzen, was Unterkühlungsexperimente bis unter  $T_C$  möglich macht. Es weist eine vollständige Mischbarkeit auf. Auf Basis der in Streuexperimenten mit Neutronenstrahlen gewonnenen Beugungsspektren und dem Vergleich mit dem in Simulationsrechnungen untersuchten unterschiedlichen Strukturmodellen wird eine ikosaedrische Nahordnung in der unterkühlten Schmelze nicht ausgeschlossen<sup>5</sup> [HMHK05]. Strukturelle Untersuchungen haben gezeigt, daß die Flüssigkeit auch bei tiefer Unterkühlung vollständig relaxiert ist [Büh98]. Somit fehlt hier, anders als bei den heute etablierten amorphen Ferromagnetika, jede Anisotropie durch Verspannungen<sup>6</sup>. In einem vollkommen relaxierten System sollten sich somit andere Domänenstrukturen bilden als in einem Festkörper. Zur Untersuchung dieser Strukturen eignet sich besonderes der Kerr-Effekt.

Der Kerr-Effekt liefert eine berührungslose Messmethode, die in Kombination mit elektromagnetischer Levitation zum Nachweis auftretender Oberflächenmagnetisierungen an flüssigen unterkühlten Metallschmelzen genutzt werden kann. Das Besondere am Kerr-Effekt ist dabei auch, dass er streng an die ferromagnetische

---

<sup>5</sup> Die ikosaedrische Nahordnung wirkt sich auf die Kristallkeimbildung aus. Ein Großteil der Atome eines *Clusters* (Atomkonfigurationen, die der Struktur des später auskristallisierenden Festkörpers ähneln) befindet sich in der Grenzfläche zur umgebenden Schmelze. Die Grenzflächenenergie und damit die maximale Unterkühlbarkeit der Schmelze ist umso niedriger, je stärker sich die Nahordnung von unterkühlter Schmelze und die des während der Kristallkeimbildung entstehenden Festkörpers ähneln. D.h. die maximale Unterkühlbarkeit ist um so größer, je mehr sich die Struktur des Kristallkeims von der ikosaedrischen Nahordnung unterscheidet [HMHK05].

<sup>6</sup> Strukturelle Parameter spielen für die Kopplung der spontanen magnetischen Ordnung eine außerordentlich wichtige Rolle. Aufgrund von Anisotropien – durch kristalline Vorzugsrichtungen und Verspannungen – kommt es zur Ausbildung einer Domänenstruktur mit Blochwänden, wie sie von Festkörpern bekannt ist.

Phase gebunden ist, so dass allein schon das Auftreten einer Kerr-Drehung in der Polarisation des reflektierten Lichtes ein eindeutiger Hinweis auf eine Änderung der Magnetisierung an der Probenoberfläche ist. Der Kerr-Effekt zeichnet sich durch einen steilen Anstieg der Messkurven bei der Curie-Temperatur aus.

Das vorgestellte Experiment wurde so konzipiert und aufgebaut, dass es möglich war, mit Hilfe des Kerr-Effekts den gesamten magnetischen Phasenübergang einer flüssigen Metallschmelze ( $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ ) genau abzutasten und den in der Nähe der  $T_C$  auftretenden Magnetisierungsvorgang aufzunehmen. Der Beobachtungsraum dieser Methode beschränkt sich auf eine Fläche von max.  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ , was in etwa dem Bereich der Domänengröße bei Festkörpern entspricht.

Die in Aufzeichnungen auftretenden Oszillationen im Messsignal lassen sich größtenteils auf Probenschwingungen zurückführen. Diese verursachen eine starke Streuung des reflektierten Laserlichtes und damit auch der Messwerte. Das Ausblenden eines Teils des reflektierten Laserlichtes durch den Einsatz eines geeigneten Blendensystems erwies sich als wirkungsvoll und brachte eine deutliche Reduzierung der Amplituden der aufgezeichneten Oszillationen. Die Schwingungen bzw. die Amplituden sind sehr klein und liegen außerhalb des Empfindlichkeitsbereichs der Positionsdioden (Vierfelddioden), so dass sie von der Probenstabilisierung nicht detektiert und damit auch nicht eliminiert werden können. Die Reduzierung dieser Amplituden durch das Blendensystem hat auch seine Grenzen, da bei einer extremen Verkleinerung der Blendenöffnung das optische Messsystem sehr empfindlich auf jede Positionsänderung der Probe reagieren würde. Schon die kleinsten Schwingungen würden große Intensitätsschwankungen verursachen und somit massive Störungen im Messsignal hervorrufen. Außerdem wäre die weitere Blendenverkleinerung mit einer Abnahme der Intensität des Laserlichtes verbunden, welche sich auch negativ in der Qualität der Messsignale und der Genauigkeit der Messung widerspiegeln würde. So musste ein Kompromiss zwischen Intensität, Messempfindlichkeit und Signalqualität gefunden werden.

Alle aufgezeichneten Messkurven zeigen denselben bekannten Verlauf von Kerr-Effekt-Messungen und wurden bei einer schwebenden stark unterkühlten flüssigen Probe durchgeführt. Bis in die Nähe der  $T_C$  bleibt das Signal unverändert, dann nimmt der Kerr-Winkel je nach Stärke des angelegten äußeren Magnetfelds stark zu. Es wurden kleine Magnetfelder (5mT, 10mT) induziert, um die bei  $T_C$  auftretende spontane Magnetisierung nicht zu zerstören. Die im Bereich der Curie-Temperatur gemessenen Kerr-Drehungen liegen für 5mT zwischen  $0,02^\circ$  und  $0,03^\circ$  und bei 10mT um  $0,05^\circ$ . In der vorgestellten Konfiguration des Messexpe-

---

<sup>7</sup> Der reflektierte Laserstrahl ist aufgrund des kleinen Krümmungsradiuses der Probe (Proben-durchmesser ca. 1mm) stark divergent.

riments treten sowohl polare, als auch longitudinale Komponenten des Kerr-Effekt auf, so dass diese Werte sich durchaus im Rahmen bekannter experimenteller Erfahrungswerte bewegen, was die Aussagekraft der Ergebnisse untermauert [WB88, Sch92].

Die in dieser Arbeit ermittelte Curie-Temperatur der flüssigen Phase liegt bei 1253K und bleibt somit im Bereich der von RESKE et al. und C. BÜHRER gemessenen Werte [RHK<sup>+</sup>95, Büh98]<sup>8</sup>. In den Messergebnissen lässt sich ein Unterschreiten der Curie-Temperatur um 2-3K erkennen und in den letzten 0,5K deutet sich in der Kurvenform bei genauerem Betrachten ein Plateau an, was auf den Anfang eines Sättigungsbereichs hinweist.

Kerr-Winkel-Messungen an der festen Probe ergaben ebenfalls einen starken Anstieg beim Durchlaufen der Curie-Temperatur dieser Phase (1273K). Dies ist eine weitere Bekräftigung der Gültigkeit der hier präsentierten Messmethode.

Der Zusammenhang zwischen wachsendem Kerr-Winkel und dem Erreichen der Curie-Temperatur ist eindeutig, die Ergebnisse aus den Messungen von ALBRECHT oder BÜHRER wurden somit bestätigt. Auch hier konnte das Auftreten spontaner magnetischer Ordnung in der flüssigen Phase einer Metallschmelze dokumentiert werden. Ein direkter Vergleich des Verlaufs der Messkurven lässt sich hingegen nicht durchführen, da in den früheren Messungen das Streufeld der Probe (über das gesamte Volumen) gemessen wurden, somit also eine vollkommen andere Messmethode angewandt wurde.

In Rahmen einer Molekularfeld-Theorie, die räumliche Fluktuationen der Austauschwechselwirkung berücksichtigt, muss zwischen zwei Ursachen dieser Fluktuationen unterschieden werden: der chemischen<sup>9</sup> und der topologischen<sup>10</sup> Unordnung. Beide führen zu einer Absenkung der Curie-Temperatur (s. die Differenz zwischen  $T_C$  bei flüssiger und fester Probe). Der Effekt der chemischen Unordnung ist jedoch stärker als der der ausschließlich topologischen Variation [Fä84]. Die Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn und die thermische Bewegung des Elektronenspins treten bei ferromagnetischen Festkörpern in Konkurrenz. Unterhalb der Übergangstemperatur  $T_C$  handeln alle Spins aufgrund der stärkeren Wechselwirkung kooperativ, die thermische Korrelationslänge  $\xi(T < T_C)$

---

<sup>8</sup> Die gemessene Curie-Temperatur hängt immer von der Genauigkeit der Zusammensetzung und von der Reinheit der  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  Legierung ab. Außerdem darf der bei der Einstellung des Pyrometers messbedingt auftretende Fehler der Temperaturmessung nicht vernachlässigt werden (s. Kapitel 4.4).

<sup>9</sup> engl. "Site-disorder" – nicht- oder wenig magnetische Atome in der Matrix eines Ferromagneten sorgen für eine inhomogene Verteilung der Austauschwechselwirkung (z.B. festes  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ ).

<sup>10</sup> engl. "Bond-disorder" – Fluktuationen der Nächste-Nachbarabstände und die fehlende Fernordnung lassen die Wechselwirkung variieren (z.B. ein amorphes, ferromagnetisches Reinmetall).

ist unendlich. Bei sehr hohen Temperaturen  $T \gg T_C$  ist die Korrelationslänge wesentlich kleiner als der Abstand zum Nachbarn. So entsteht ein paramagnetisches System, in dem alle Spins individuell reagieren. Hier sind, wie bei  $T < T_C$  auch, die Struktur und Fremdatome (die lokale Inhomogenitäten hervorrufen können) irrelevant und der effektive Exponent  $\gamma(T \gg T_C) = 1$  entspricht dem der einfachen Molekularfeld-Theorie mit dem Curie-Weiss-Gesetz. Die Struktur wird aber von erheblicher Bedeutung im Bereich zwischen  $T = T_C$  und  $T > T_C$ . Die Korrelationslänge  $\xi(T)$  definiert nun einen begrenzten Bereich, in dem die Spins kooperativ reagieren. Bei Annäherung an die Curie-Temperatur kommt es zur Ausbildung von lokalen Spin-Clustern – einer begrenzten Anzahl von kollektiv ausgerichteten Spins. Die Ausrichtung variiert über das gesamte Probenvolumen. Sobald die Curie-Temperatur überschritten wird, werden die Cluster im homogenen System (wo alle Positionen im Gitter gleichwertig sind – z.B. reines Kobalt) gleichmäßig kleiner, bis der paramagnetische Bereich erreicht wird. Nichtmagnetische Fremdatome (Pd) verursachen im festen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  Fluktuationen der Austauschwechselwirkung und führen zu einer Absenkung der Curie-Temperatur, da die Kopplung früher als im reinen Ferromagneten zusammenbricht. Es gibt Bereiche, in denen die Cluster aus unterschiedlich vielen Spins bestehen können. So entsteht bei Streufeldmessungen der Anschein (über das Probenvolumen gemittelt), dass der weitere Zerfall verzögert werde. Im Fall des Systems des flüssigen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  (zusätzlich topologisch ungeordnet) treten aufgrund des variablen Atomabstandes weitere Fluktuationen auf, was zu einem weiteren Abfall von  $T_C$  führt. Aufgrund der großen Instabilität und Fluktuation der Spin-Cluster, des messtechnisch auf  $20 \times 20 \mu\text{m}$  der Probenoberfläche eingeschränkten Beobachtungsraums und der kurzen Beobachtungszeit (Pulslänge:  $80 \mu\text{s}$ ) wird bei Kerr-Effekt-Messungen im Vergleich zu Streufeldmessungen (wo über das gesamte Volumen der Probe gemessen wird – Bandbreite Fluxgate:  $\sim 200\text{Hz}$ , Faradaywaage  $\sim 5\text{Hz}$ ) ein Anstieg der Messkurven nur in unmittelbarer Nähe von  $T_C$  gemessen. Der Anstieg folgt erst bei Erreichen einer stabilen persistierenden Spin-Clustergröße, die kurz vor der Domänenbildung eintritt. Dieses Verhalten erklärt das schnelle Anwachsen des Kerr-Winkels in einem relativ kleinen Temperaturbereich um  $T_C$  (2-3K).

Sowohl das System  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ , als auch die hier vorgestellte Messanlage bieten ein weites Spektrum möglicher Untersuchungen. So könnte weiter versucht werden, das von GROH und DIETRICH errechnete Vortexstruktur-Modell der Domänen zu überprüfen. Ein Rastern der Probe, das Aufschluss über die Spinausrichtung an der Probenoberfläche bringen könnte, dürfte aber sehr schwierig sein, da in allen Konfigurationen des Messsystems unterschiedliche Komponenten der Polarisierung auftreten, die dann in Kombination mit einer nur schwer genau einzustellenden Richtung des angelegten Magnetfeldes die Zuordnung und Interpretation der Ergebnisse bedeutend erschweren würde.

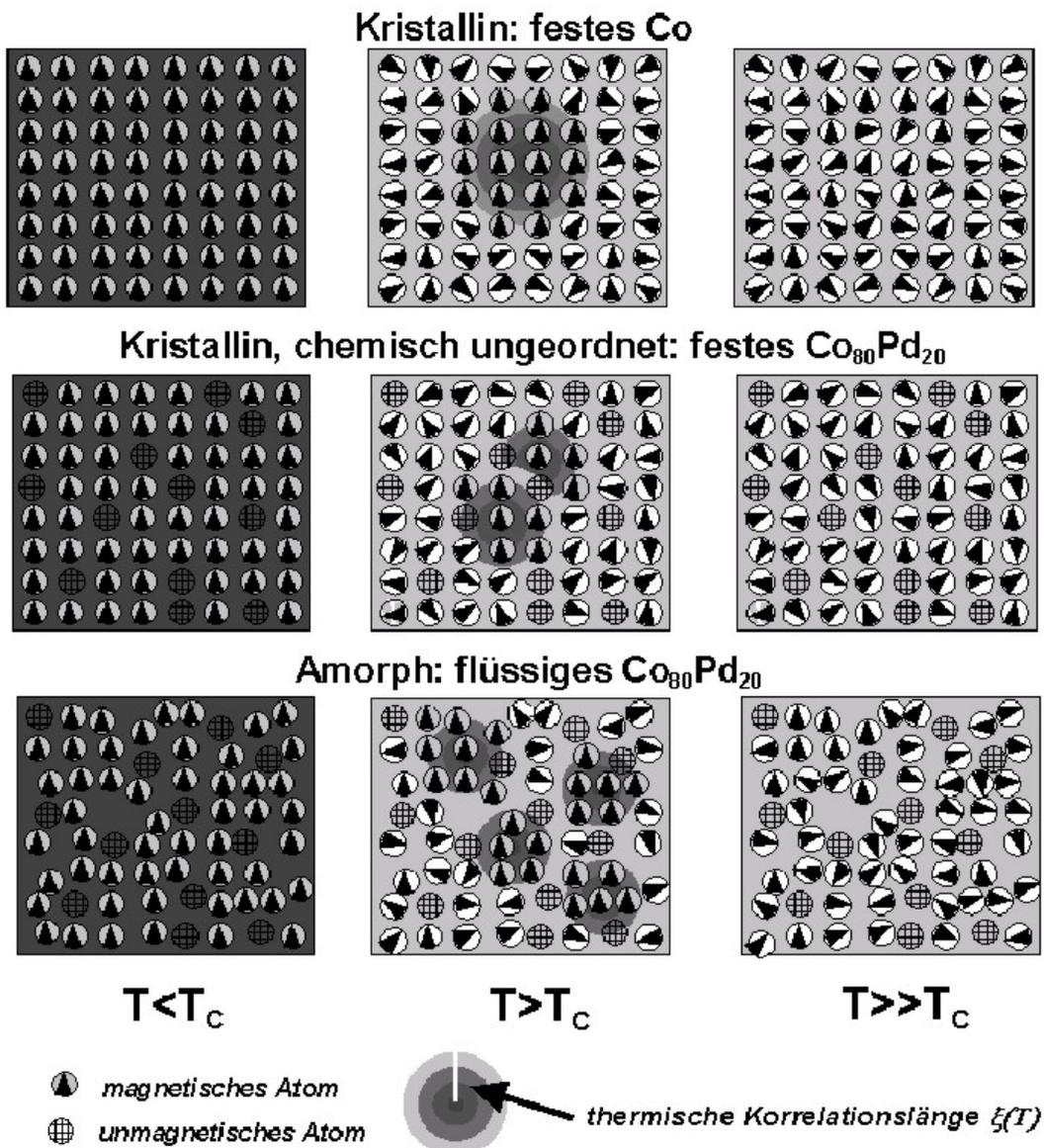


Abbildung 5.19: Modelldarstellung des Verhaltens verschiedener Materialien beim magnetischen Phasenübergang. Links: Wenn die Temperatur deutlich niedriger als die Übergangstemperatur  $T_c$  ist, reagieren die Spins kollektiv und sind alle ausgerichtet. Die thermische Korrelationslänge  $\xi(T)$  ist unendlich. Mitte: Bei  $T > T_c$  wird  $\xi(T)$  kleiner und kommt in den Bereich der Atomabstände. Rechts: Wenn  $T \gg T_c$ , wird  $\xi(T)$  deutlich kleiner als der Nächst-Nachbarabstand, die Ausrichtung der Spins ist individuell (Paramagnetismus). Im Falle des Systems Co-Pd wird das Palladium durch die magnetischen Kobaltatome polarisiert.

Die Messung der Plankstrahlung der Probe wäre dagegen eine ganz andere Herangehensweise. Bei einem ferromagnetischen Festkörper ist diese Strahlung zirkular polarisiert. Dies konnte erstmals 1977 an der thermischen Strahlung im Wellenlängenbereich  $0,6\text{-}2,5\mu\text{m}$  von Eisen durch K. MÜLLER et al. gezeigt werden [MFK77]. Hochauflösende Infrarot-Kameras in Verbindung mit modernen Verfahren der Bildaufbereitung (Digitales-Subtraktions-Verfahren) könnten die Messung dieses  $10^{-5}$ -Effekts möglich machen. Die Wellenlängenabhängigkeit des Effekts ist allerdings für  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$  nicht bekannt und lässt sich nicht genau berechnen<sup>11</sup>.

Messungen mit Neutronendepolarisation an den flüssigen  $\text{Co}_{80}\text{Pd}_{20}$ -Proben wurden bereits 1998 erfolgreich durchgeführt [Büh98]. Die Messmethode hat sich als sehr empfindlich erwiesen und braucht im Gegensatz zu  $\mu\text{SR}$ -Messungen nur kurze Messzeiten. Ein Strahl kalter polarisierter Neutronen sollte theoretisch auch Informationen über die magnetische Struktur liefern. In der Praxis ist diese Messtechnik aber wegen des erforderlichen Neutronenstroms sowie der diffizilen Ziel-einrichtung kaum durchführbar.

Interessant wäre es auch, andere Legierungen hinsichtlich der Unterkühlungsmöglichkeiten zu untersuchen. Es ist durchaus wahrscheinlich, dass mehrkomponentige Legierungen existieren, die vielleicht ein noch günstigeres Verhältnis von Schmelz- und Curie-Temperatur und eine gute Unterkühlbarkeit aufweisen. So könnte eine Erweiterung der Legierung auf ein ternäres System vermutlich von Vorteil sein<sup>12</sup>. Eisen und Nickel sind dabei möglicherweise geeignete Kandidaten, da sie die magnetische Kopplung nicht negativ beeinflussen würden.

---

<sup>11</sup> Die Genauigkeit der Rechnung reicht für die Ermittlung des optimalen Messintervalls ( $\Delta\lambda$ ) nicht aus, das zur Bestimmung des Nulldurchgangs der Polarisation unerlässlich wäre.

<sup>12</sup> Versuche mit B und C brachten keine Verbesserung (priv. Mitteilung D. Platzek und J. Reske).

# Anhang A

## Korrekturfunktionen der elektromagnetischen Levitation

Zur Korrektur der Levitationskraft  $F_L$  in Abhängigkeit vom Parameter  $x$  wird die Funktion  $G(x)$  eingeführt:

$$G(x) = 1 - \frac{3}{2x} \cdot \frac{\sinh(2x) - \sin(2x)}{\cosh(2x) - \cos(2x)} \quad (\text{A1})$$

Analog dazu die Funktion  $F(x)$  zur Korrektur der elektrischen Leistung  $P_L$  in Abhängigkeit vom Parameter  $x$ :

$$F(x) = x \cdot \frac{\sinh(2x) + \sin(2x)}{\cosh(2x) - \cos(2x)} - 1 \quad (\text{A2})$$

dabei ist  $x$  der Quotient aus Probenradius  $r$  und Skintiefe  $\delta$  [Fä84].

## Anhang B

### Feldberechnung der Levitationsspule

Bei der Feldberechnung der Levitationsspule wurde ein Spulenstrom von 42A angenommen, was einer HF-Leistung von 1,2kW bei 18MHz entspricht. Basis ist ein einfaches Modell aufaddierter Leiterschleifen, das das Nahfeld berücksichtigt [Büh98].

$$H(z) = 2 \cdot 42 \cdot \left\{ \frac{1.5^2}{(1.5^2 + (z - 3)^2)^{1.5}} + \frac{1.5^2}{(1.5^2 + (z - 2.2)^2)^{1.5}} \right. \\ + \frac{1.5^2}{(1.5^2 + (z - 1.4)^2)^{1.5}} + \frac{1.5^2}{(1.5^2 + (z - 0.6)^2)^{1.5}} \left. \right\} \\ - \left\{ \frac{0.5^2}{(0.5^2 + (z + 3)^2)^{1.5}} + \frac{0.8^2}{(0.8^2 + (z + 2.2)^2)^{1.5}} \right. \\ + \frac{0.95^2}{(0.95^2 + (z + 1.4)^2)^{1.5}} + \frac{1.1^2}{(1.1^2 + (z + 0.6)^2)^{1.5}} \\ + \frac{1^2}{(1^2 + (z + 2.6)^2)^{1.5}} + \frac{1.2^2}{(1.2^2 + (z + 1.8)^2)^{1.5}} \\ \left. + \frac{1.5^2}{(1.5^2 + (z + 1)^2)^{1.5}} \right\} \quad [A/mm]$$

# Anhang C

## Fotos des Experiments

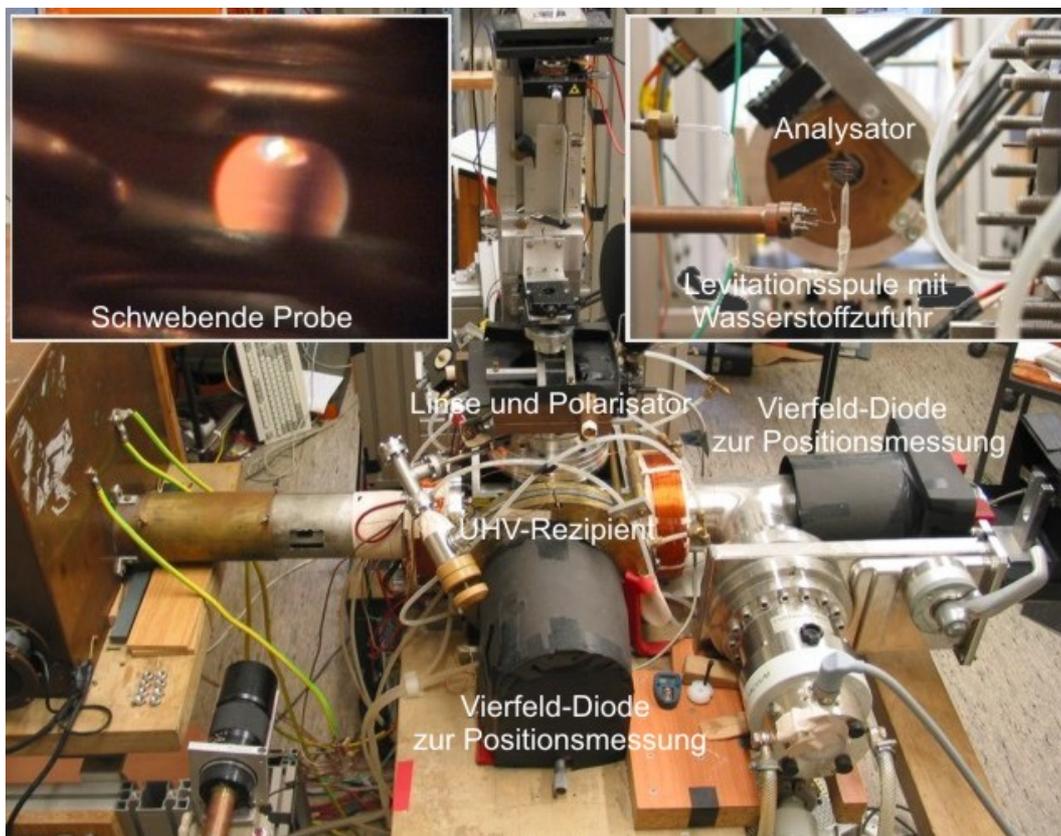


Abbildung C.1: *Aufbau des Experiments*. Die Probe befindet sich in der Levitationsspule innerhalb des UHV-Rezipienten. Die optische Messeinrichtung mit dem Laser und dem Polarisator ist auf einem separaten Gestell aus Aluminium-Profilen aufgebracht. *Insert Links*: Schwebende unterkühlte Probe. *Insert Rechts*: Levitationsspule mit Wasserstoffzufuhr außerhalb des UHV-Rezipienten mit Analysator im Hintergrund.

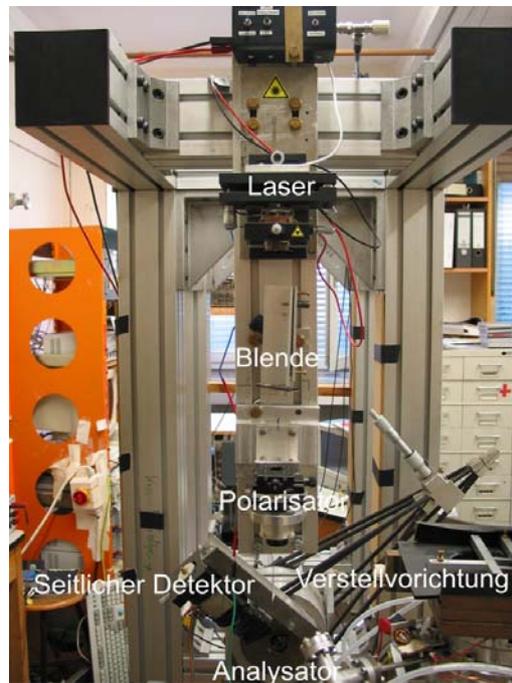


Abbildung C.2: *Optische Messeinrichtung*. Der Laserstrahl wird über eine Blende, eine Linse und einen Polarisator auf der Probe (nicht im Bild) fokussiert und dann über einem Analysator in zwei Strahlteile aufgeteilt. Diese werden an zwei Detektoren in Spannungssignale umgewandelt.

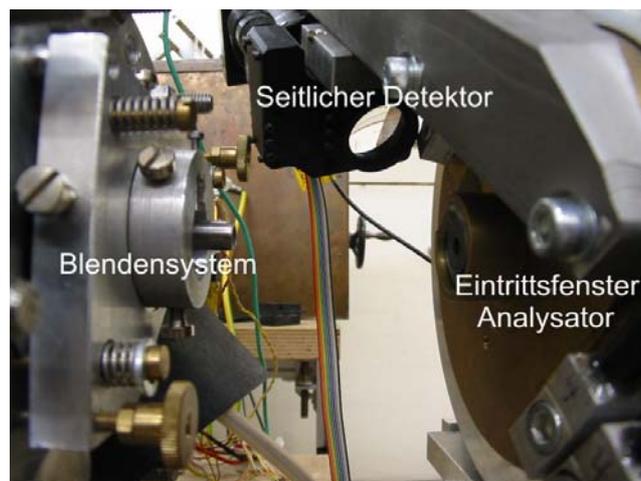


Abbildung C.3: *Blendensystem und Eintrittsfenster des Analysators*.

# Literaturverzeichnis

- [ABF<sup>+</sup>97] T. Albrecht, C. Bühler, M. Fähnle, K. Maier, D. Platzek und J. Reske. *First observation of ferromagnetism and ferromagnetic domains in a liquid metal*. Applied Physics A (Materials Science Processing), **65** (2) (1997) 215
- [Abr57] A.A. Abrikosov. Sov. Phys. Stat. Sol. JETP, **5** (1957) 1174
- [AK23a] H. Anschutz-Kaempfe. Patent Nr.:193397 (1923)
- [AK23b] H. Anschutz-Kaempfe. Patent Nr.:1589039 (1923)
- [Alb96] T. Albrecht. *Nachweis der ferromagnetischen Phase der Co<sub>80</sub>Pd<sub>20</sub>-Schmelze*. Diplomarbeit, Universität Bonn, Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nußallee 14-16, 53115 Bonn (1996)
- [AT89] M.P. Allen und D.J. Tildesley. *Computer Simulation of Liquids*. (Clarendon, Oxford) (1989)
- [Bak92] H. Baker. *Alloy Phase Diagrams*. ASM International, Materials Park (1992)
- [BBF<sup>+</sup>00] C. Bühler, M. Beckmann, M. Fähnle, U. Grünewald und K. Maier. *The liquid ferromagnet Co<sub>80</sub>Pd<sub>20</sub> and its critical exponent*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, (212) (2000) 211
- [Beck02] M. Beckmann. *Modulationskalorimetrie und magnetooptische Untersuchungen am magnetischen Phasenübergang von flüssigem Co<sub>80</sub>Pd<sub>20</sub>*, Dissertation, Universität Bonn, Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nußallee 14-16, 53115 Bonn (1998)

- [BF96] N. Börnsen und M. Fähnle. *Ab-initio Calculation of Local Magnetic Moments for the liquid Ferromagnet  $Co_{1-x}Pd_x$* . Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **159** (1996) 313
- [BHM<sup>+</sup>96] C. Bühner, U. Holzwarth, K. Maier, D. Platzek und J. Reske. *Positron Annihilation in Solid, Liquid and Undercooled Melts*. Applied Physics A, **63** (1996) 191
- [Blo30] F. Bloch. *Zur Theorie des Ferromagnetismus*. Zeitschrift für Physik, **61** (1930) 206
- [Blo32] F. Bloch. *Zur Theorie des Austauschproblems und der Remanenzerscheinung der Ferromagnetika*. Zeitschrift für Physik, **74** (1932) 295
- [Bör96] N. Börnsen. *Elektronentheoretische Untersuchungen zum Magnetismus amorpher und flüssiger Co-Pd-Legierungen*. Diplomarbeit, Universität Bonn, Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nußallee 14-16, 53115 Bonn (1996)
- [Bra89] E.H. Brandt. *Levitation in Physics*. Science, **243** (1989) 349
- [BS87] L. Bergmann und C. Schäfer. *Lehrbuch der Experimentalphysik*. Walter de Gruyter Berlin New York (1987)
- [BSC96] P. Bruno, Y. Suzuki und C. Chappert. *Magneto-optical Kerr effect in a paramagnetic overlayer on a ferromagnetic substrate: a spin-polarized quantum size effect*. Phys. Rev. B, **53** (1996) 9214-9220
- [Büh98] C. Bühner. *Der Flüssige Ferromagnet - Kritisches Verhalten am magnetischen Phasenübergang der flüssigen Phase von  $Co_{80}Pd_{20}$* . Dissertation, Universität Bonn, Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nußallee 14-16, 53115 Bonn (1998)
- [CJM+64] D. Cribier, B. Jcot, L. Madhav Rao und B. Farnoux. Phys. Rev. Lett., **9** (1964) 106
- [Cur95] P. Curie. *Propriétés Magnétiques des Corps*. Ann. Chem. Phys., **5** (1895) 1895
- [CW95] A. Carl und D. Weller. *Oscillatory Paramagnetic Magneto-Optical Kerr Effect in Ru Wedges on Co*. Phys. Chem. Phys. Rev. Lett., **74** (1975) 190-193

- [Dir26] P.A.M. Dirac. Proceedings of the Royal Society, **112 A** (1926) 661
- [Ehr33] P. Ehrenfest. Proc. Kon. Akad. Wetenschap, Amsterdam, **36** (1933) 147
- [Fä84] M. Fähnle. *Monte Carlo Study of Phase Transitions in Bond- and Site-Disordered Ising and Classical Heisenberg Ferromagnets*. J. Magn. Magn.Mat., **45** (1984) 279
- [Fis83] K.H. Fischer. *Spin glasses*. Physica Status Solidi B-Basic Research, **116** (1983) 357
- [FJ65] E. Fromm und H. Jehn. *Electromagnetic Forces and Power Absorption in Levitation Melting*. British Journal of Applied Physics, **16** (1965) 653
- [GD94a] B. Groh und S. Dietrich. *Long-ranged orientational order in dipolar fluids*, **72** (1994) 2422-2425
- [GD94b] B. Groh und S. Dietrich. *Ferroelectric phase in Stockmayer fluids*. Physical Review, **50 E** (1994) 3814-3833
- [GD96] B. Groh und S. Dietrich. *Structural and thermal properties of orientationally ordered dipolar fluids*. Physical Review, **53 E** (1996) 2509-2530
- [Gro96] B. Groh. *Langreichweitige Orientierungsordnung in dipolaren Flüssigkeiten*. Dissertation, Bergische Universität GH Wuppertal, Gaußstr. 20, 42097 Wuppertal (1996)
- [GD98] B. Groh und S. Dietrich. *Inhomogeneous magnetization in dipolar ferromagnetic liquids*. Physical Review, **57 E** (4) (1998) 4535
- [GK80] W. Gebhardt und U. Krey. *Phasenübergänge und kritische Phänomene*. Vieweg, Braunschweig (1980)
- [GM74] C.J. Glinka und V.J. Minkiewicz. AIP Conference Proceedings, **24** (1974) 283
- [GP69] P.G. de Gennes and P. A. Pincus, Solid State Commun., **7** (1969) 339
- [Gub60] A.I. Gubanov. *Fizika Tverdogo Tela* ( $\Phi$ TT), **2** (502)

- [GZJ77] J.C.L. Guillou und J. Zinn-Justin. *Critical Exponents for the n-Vector Model in Three Dimensions from Field Theory*. Phys. Rev. Lett., **39** (2) (1977) 95
- [Han69] K. Handrich. *A Simple Model for Amorphous and Liquid Ferromagnets*. Phys. Stat. Sol., **32** (1969) K55
- [Hei26] W. Heisenberg. Zeitschrift für Physik, **38** (1926) 441
- [Her91] D.M. Herlach. *Nichtgleichgewichtserstarrung unterkühlter Metallschmelzen*. Habilitationsschrift, Universität Bochum (1991)
- [HK80] K. Handrich und S. Kobe. *Amorphe Ferro- und Ferrimagnetika*. Akademie Verlag, Berlin (1980)
- [HKM<sup>+</sup>94] F. Huang, M.T. Kief, G.J. Mankey und R.F. Willis. *Magnetism in the few-monolayers limit: A surface magneto-optic Kerr-effect study of the magnetic behavior of ultrathin films of Co, Ni, and Co-Ni alloys on Cu(100) and Cu(111)*. Phys. Rev. B, **49** (1994) 3962
- [HMHK05] D. Holland-Moritz, D. Herlach und K. F. Kelton. *Unterkühlt und dicht gepackt*. Phys. Journal, **4** (2005) 37
- [HS98] A. Hubert und R. Schäfer. *Magnetic Domains, The Analysis of Magnetic Microstructures*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (1998)
- [Hul32] H.R. Hulme. Proceedings of the Royal Society, **A 135** (1932) 237
- [Hun25] F. Hund. Zeitschrift für Physik, **33** (1925) 855
- [Isi25] E. Ising. Zeitschrift für Physik, **31** (1925) 253
- [Jac97] G. Jacobs. Mündliche Mitteilung
- [JEM<sup>+</sup>96] G. Jacobs, I. Egry, K. Maier, D. Platzek, J. Reske und R. Frahm. *Extended X-ray-absorption fine structure studies of levitated undercooled metallic melts*. Review of Scientific Instruments, **67** (10) (1996) 3683
- [KC68] J.S. Kouvel und J.B. Comly. Physical Review Letters, **20** (1968) 1237

- [Kit76] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag München Wien (1976)
- [Kit99] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag München Wien (1999)
- [KL92] H. Kronmüller und M. Lambeck. Bergmann - Schaefer: *Lehrbuch der Experimentalphysik - Festkörper*. Walter de Gruyter; Berlin · New York (1992)
- [Kla98] S. Klapp. *Phasenübergänge in dipolaren Fluiden*. Dissertation, Freie Universität Berlin, 1998.
- [Lan05a] P. Langevin. *J. Phys.*, **4** (1905) 678
- [Lan05b] P. Langevin. *Ann. Chim. Phys.*, **5** (1905) 70
- [Lan37] L. Landau. *Phys. Z. Sowjet.*, **5** (1937) 26
- [Leg77] A.J. Leggett. *Superfluid  $^3\text{He}$  A is a liquid ferromagnet*. *Nature* (London), **270** (1977) 585
- [Lie76] F. Lieneweg. *Handbuch der technischen Temperaturmessung*. Vieweg, Braunschweig (1976)
- [LL35] L. Landau und E. Lifshitz. *Phys. Z. Sowjet.*, **8** (1935) 153
- [MFK77] K.Müller, F. Fuchs und F.K. Kneubühl. *Partial circular polarization of the spectral thermal emission from ferromagnetic iron*. *Physics Letters*, **64A** (2) (1977) 249
- [Muc23] O. Muck. Patent Nr.:422004 (1923)
- [Nak56] Y. Nakagawa. *Journal of the Physical Society of Japan*, **11** (1956) 855
- [Nak59] Y. Nakagawa. *Magnetic Susceptibility of Liquid Alloy of Copper with Cobalt, Iron, Manganese and Chromium*. *Journal of the Physical Society of Japan*, **14** (10) (1959) 1372
- [Née32] L. Néel. *Annales de Physique, Paris*, **18** (1932) 5
- [Née44] L. Néel. *Cahiers de Physique*, **25** (1944) 1

- [Nol86] W. Nolting. Quantentheorie des Magnetismus. Teubner Studienbücher, Stuttgart (1986)
- [Ons44] L. Onsager. Physical Review, **65** (1944) 117
- [Pau27] W. Pauli. Zeitschrift für Physik, **41** (1927) 81
- [Pla97] D. Platzek. *Ein flüssiger Ferromagnet: Untersuchungen mit mikroskopischen Sonden*. Dissertation, Universität Bonn, Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nußallee 14-16, 53115 Bonn (1997)
- [PNH<sup>+</sup>94] D. Platzek, C. Notthoff, D.M. Herlach, G. Jacobs, D. Herlach und K. Maier. *Liquid metal undercooled below its Curie temperature*. Applied Physics Letters, **65** (13) (1994) 1723
- [PW78] D.N. Paulson und J.C. Wheatley. *Evidence for Electronic Ferromagnetism in Superfluid  $^3\text{He-A}$* . Phys. Rev. Lett., **40** (9) (1978) 557
- [QB98] Z.Q. Qiu und S.D. Bader. *Kerr effect and surface magnetism*. Nonlinear Optics in Metals by K.H. Bennemann, Clarendon Press, Oxford (1998) 1
- [RHK<sup>+</sup>95] J. Reske, D.M. Herlach, F. Keuser, K. Maier und D. Platzek. *Evidence for the Existence of long-range magnetic ordering in a liquid undercooled metal*. Phys. Rev. Lett., **75** (4) (1995) 737
- [Sch92] J. Schoenes. in *Materials Science and Technology* by R.W. Cahn, P. Haasen, and E.J. Kramer (Verlag-Chemie, Weinheim, 1992) Vol. 3
- [SD83] K. Sano, M. Doi. J. Phys. Soc. Jpn., **52** (1983) 2810
- [SUL72] J. Schelten, H. Ullmaier und G. Lippmann. Z. Phys., **253** (1972) 219
- [TF49] D. Turnbull und J.C. Fisher. Journal of chemical Physics, **17** (1949) 71
- [Tur52] D. Turnbull. *Kinetics of Solidification of Supercooled Liquid Mercury Droplets*. Journal of chemical Physics, **20** (2) (1952) 411
- [UU67] G. Urbain und E. Übelacker. *The Measurement of the Magnetic Susceptibility of some Elements (Fe, Co, Ni, Ge, Sn, Te) in the Liquid State*. Advanced Physics, **16** (1967) 429

- [UYU<sup>+</sup>98] S. Uba, A.N. Yaresko, L. Uba, A.Y. Perlov, V.N. Antonov, R. Gontarz und H. Ebert. *Influence of alloy composition and local environment on the magneto-optical properties of  $\text{Co}_x\text{Pd}_{1-x}$  alloys*. Physical Review B, **57** (3) (1998) 1534
- [Vle32] J.H. van Vleck. *Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities*. University Press, Oxford (1932)
- [Vog99] H. Vogel. *Gerthsen Physik*. Springer Berlin (1999)
- [Vol99] R. Vollmer. *Lineare und nichtlineare Magnetooptik an ultradünnen ferromagnetischen Schichten und Vielschichten*, in: Forschungszentrum Jülich GmbH (Hrsg.), *Magnetische Schichtsysteme*, Vorlesungsmanuskripte, Jülich, 1999.
- [VW26] M. Volmer und A. Weber. *Zeitschrift für physikalische Chemie*, **119** (1926) 227
- [WB88] E.P. Wohlfahrt, K.H.J. Buschow, *Ferromagnetic Materials Vol.4* (1988)
- [Wei73] H. Weitzel. *Magnetische Ordnung und Neutronenbeugung*. Physik in unserer Zeit, **4** (2) (1973) 48
- [Wil79] K.G. Wilson, *Problems in Physics with Many Scales of Length*. Sci. Am. 241/2 (1979) 140
- [Will88] W. Willnecker. *Forschungsbericht*. Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt (1988)
- [WO10] P. Weiss und H. Kamerlingh Onnes. *J. Phys.*, **9** (1910) 555
- [WP92a] D. Wei und G.N. Patey. *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 2043
- [WP92b] D. Wei und G.N. Patey. *Phys. Rev. Lett.*, **46 A** (1992) 7783
- [YUU+98] A.N. Yaresko, L. Uba, S. Uba, A.Y. Perlov, R. Gontarz und V.N. Antonov. *Magneto-optical Kerr spectroscopy of palladium*. Physical Review B, **58** (12) (1998) 7648
- [Yan52] C.N. Yang, *The Spontaneous Magnetization of a Two-Dimensional Ising Model*. *Phys. Rev.*, **85** (1952) 808

- [Zve97] A.K. Zvezdin und V.A. Kotov. *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials*. Institute of Physics Publishing, Bristol (1997)
- [ZW94] H. Zhang und M. Widom. *Phys. Rev.*, **E 49** (1994) 3591



# Danksagung

Zum Abschluss ist es mir ein großes Anliegen und auch eine Freude, all denen danken zu können, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein Dank gilt an erster Stelle meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Karl Maier, der mir durch seine wissenschaftliche Kompetenz und sein angenehmes persönliches Wesen immer ein großes Vorbild war. Seine Unterstützung, das Interesse und die wertvollen Ratschläge haben diese Arbeit wesentlich gefördert. Ihm und seiner Frau möchte ich auch besonders danken für die einmalige familiäre Atmosphäre und den Zusammenhalt innerhalb der Arbeitsgruppe, zu dem sie beide mit Abstand den größten Beitrag geleistet haben (nicht zuletzt mit fantastischen Käse-Spätzle und Schwarzriesling!).

Für die Übernahme des Korreferats möchte ich Herrn Priv. Doz. Dr. Reiner Vian den meinen herzlichen Dank aussprechen.

Vielen Dank auch meinen ehemaligen Mitstreitern Moritz Beckmann und Andreas Goris für den außerordentlichen Spaß und die besondere Teamarbeit, die zu einer hohen Arbeitsmotivation beigetragen haben. Meinen Kollegen Poornima Anbalagan, Patrick Eich, André Engelbertz (extra Dank für die Programmierhilfe!), Matz Haaks, Stefanie Haubrich, Christian Lenk, Ingo Müller, Thorsten Müller, Carmen Morar, Christine Negrini, Ole Oehms, Thorsten Staab, M. Reza Zamani Meymian sowie den Ehemaligen Karsten Bennewitz, Christoph Bommas, Tyler Hartman, Martin Hoevel, Andreas Puls, Michael Röbel und Christiane Zamponi, die meine Promotionszeit durch eine ausgewogene Mischung aus wissenschaftlichen Diskussionen und privater Zerstreuung zu einem angenehmen Lebensabschnitt gemacht haben, möchte ich an dieser Stelle danken.

Den Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt, der Elektronikwerkstatt und der Schreinerei des HISKP sei gedankt für die gute Zusammenarbeit und außerordentliche Hilfestellung insbesondere bei dringlichen Aufgaben.

Meinen Schwiegereltern gilt mein besonderer Dank für ihre vielfältige Unterstützung und das Vertrauen, das sie in mich und meine Arbeit gesetzt haben.

Nicht zuletzt danke ich auch meinen Eltern für ihre liebevolle Anteilnahme an meinem Leben – auch über eine große Entfernung hinweg.

Sehr dankbar bin ich meiner Frau Katrin für ihre unerschöpfliche Motivation und Unterstützung und nicht zuletzt für ihre Geduld, mit der sie mir während der Erstellung der Dissertation zur Seite gestanden hat. Unseren Kindern Sebastian und Matthias danke ich für das wunderbare Lächeln, mit dem sie mich täglich begrüßt haben.