

Mariacristina Malagoli: Electronic and magnetic properties of local moment systems rare earth metals and oxides. 2001

Die magnetischen und elektronischen Eigenschaften von Gd und Gd-Oxid sind mit Spin- und Winkel-aufgelöster Photoemission unter Verwendung von Synchrotronstrahlung untersucht worden. Die elektronische Bandstruktur der (5d6s)-Valenzzustände in ferromagnetischem Gd(0001) konnte experimentell bestimmt werden. Für die Interpretation der Spektren ist die Beachtung der Lebensdauer verbreiterung der photoemittierten Elektronen wesentlich. Die gemessenen Photoemissionsspektren wurden mit Ergebnissen spin-aufgelöster LSDA-Rechnungen verglichen. Die Dispersion des (5d6s)-Bandes kann konsistent innerhalb der Einteilchen-Bandtheorie beschrieben werden, wenn die Verbreiterung der Lebensdauer der Photoelektronen in den Rechnungen berücksichtigt wird. Im Gegensatz zu vorherigen Untersuchungen konnte gezeigt werden, dass für die Beschreibung der Valenzbandzustände der Selten-Erd Metalle die über Korrelationseffekte induzierte Verringerung der Bandbreite eine wesentlich geringere Rolle spielt.

Die Struktur des Valenzbandes von ferromagnetischem Gadolinium-Filmen ist zusätzlich als Funktion der Temperatur untersucht worden. Dabei zeigte sich eine klare Abweichung von einem Stoner-Verhalten, welches Volumen-artigem Selten-Erd Metallen zugeordnet war. Die Spektren zeigen, daß die Verringerung der Austausch-Aufspaltung der Volumenzustände mit steigender Temperatur (wie sie im Stoner-Modell vorhergesagt ist) von einer Verringerung der Spin-Polarisation begleitet ist, wobei dieses Verhalten eher einem Spin-mixing zugeordnet ist. Es zeigt sich, dass sich beide Einflüsse zu unterschiedlichen Anteilen mischen, je nachdem, welche effektive Austauschaufspaltung der jeweils betrachtete Zustand aufweist. Eine Beschreibung des Temperaturverhaltens in Selten-Erd Metallen kann also im Gegensatz zum bisherigen Wissensstand weder ausschließlich im Stoner- noch im Spin-Mixing-Modell erfolgen.

Weiterhin wurde die Adsorption von Sauerstoff und Wasserstoff auf der Gd(0001)-Oberfläche untersucht. In einem ersten Schritt findet eine Chemisorption der Sauerstoff und Wasserstoffmoleküle auf der Oberfläche statt. Diese Belegung kann durch photo-stimulierte Desorption effektiv entfernt werden. Eine weitere Exposition mit Sauerstoff (bis zu 1 L) führt zur Ausbildung einer Gd-Oxid-Schicht auf dem reinem Gadolinium. Diese oberste Schicht weist Sauerstoff-induzierte Valenzbandzustände auf, deren Struktur mit Spin-aufgelöster Photoemission untersucht wurde. Dabei zeigten sich erstmals Hinweise auf eine magnetische Ordnung der Gd-Oxid-Schicht. Bei Raumtemperatur bildet die Gd-Oberfläche eine Diffusionsbarriere für Wasserstoff, wohingegen Sauerstoff in den Festkörper eindringen kann.

Die Oxidation von dünnen Gadoliniumfilmen führt zur Ausbildung halbleiterartigem Gd-Oxids, charakterisiert durch eine starke Bandverbiegung, dessen Stärke sich auch als Funktion einer weiteren nachfolgenden Gd- und O₂-Belegung beschreiben lässt. Nach der Exposition dicker (>10 ML) Gd-Filmen mit bis zu 10 L Sauerstoff bildet sich das gegenüber einer weiteren Oxidation inerte Gd₂O₃. Ein epitaktisches Wachstum kann einerseits für diese Isolatorschicht auf dem darunter liegenden Gadolinium, als auch umgekehrt für Gd auf einer darunter liegenden Oxidschicht erzielt werden. Damit ist die Präparation epitaktisch gewachsener Dreischichtsysteme bestehend aus zwei durch eine Gd₂O₃-Schicht getrennten Gd-Lagen möglich. Diese Anordnung entspricht einer TMR-Struktur und bietet aufgrund des epitaktischen Aufbaus gute Voraussetzungen für theoretische Untersuchungen.

The magnetic and electronic properties of Gd and Gd-oxide local moment systems have been investigated by means of spin and angular resolved photoemission with synchrotron radiation. The electronic band structure of the (5d6s)-valence states in ferromagnetic Gd(0001) has been determined experimentally. The spin analysis shows the importance of including the photoelectron lifetime broadening in the interpretation of the experimental band structure. The photoemission results are compared with spin-polarized LSDA calculations of the surface and bulk Gd band structure. The

comparison demonstrates that the (5d6s)-band dispersion can be consistently described within single particle band theory if the effects of the photoelectron lifetime broadening are included. Contrary to previous investigations, these results reduce the importance of band narrowing due to correlation effects in the description of rare earths valence states.

The valence band structure of ferromagnetic Gd films has been studied as a function of the temperature, revealing a clear deviation from the Stoner behaviour that was attributed so far to the bulk magnetism in rare earths. The spectra evolution shows that a decrease in exchange splitting of the bulk states with increase in temperature (as predicted by the Stoner model) is accompanied by a decrease of the spin polarization, which is expected for a Spin mixing-like behaviour. The two different behaviours are found to mix together in different way depending on the effective exchange coupling of the considered state. The finite temperature effects in rare earths cannot be described within the pure Stoner or Spin mixing models proposed until now in the literature.

The effects of oxygen and hydrogen adsorption on Gd(0001) surface has been investigated.

In the first stage both hydrogen and oxygen chemisorbs on the surface and can be efficiently removed due to a photon stimulated desorption.

Further oxygen exposures (up to 1 L) give rise to a surface 2-dimensional Gd-oxide on top of the ferromagnetic Gd film. This oxide is characterized by oxygen-induced states in the valence band, whose spin polarization has been studied by spin resolved photoemission, providing the first evidence of the magnetic order of the surface. While, at room temperature, the adsorption of hydrogen is limited to the surface of the Gd film, oxygen penetrates into the bulk. The oxidation of thin Gd films gives rise to oxides with semiconducting properties, showing a strong band bending, whose value is a function of the subsequent Gd and oxygen exposures.

After the exposure to about 10 L of oxygen of thick (> 30 ML) Gd films the Gd_2O_3 sesquioxide is formed, which do not react with oxygen anymore. This insulating oxide grows epitaxially on Gd films, which in turn has been found to grow epitaxially on the oxide films. This result opens the possibility to prepare and investigate epitaxially ordered trilayer structures composed of two Gd-ferromagnetic-metal films with interposed sesquioxide insulating film. This metal-oxide trilayer structure corresponds to the basic TMR configuration and, being epitaxially ordered, can be easier studied from the theoretical point of view.