



Развитие фотоэмиссионных методов исследования магнитных наноструктур на основе 4f-элементов

Тарасов Артем Вячеславович ¹

Вялых Д.В.^{2,3}, Креллнер К.⁴, Усачев Д.Ю.¹

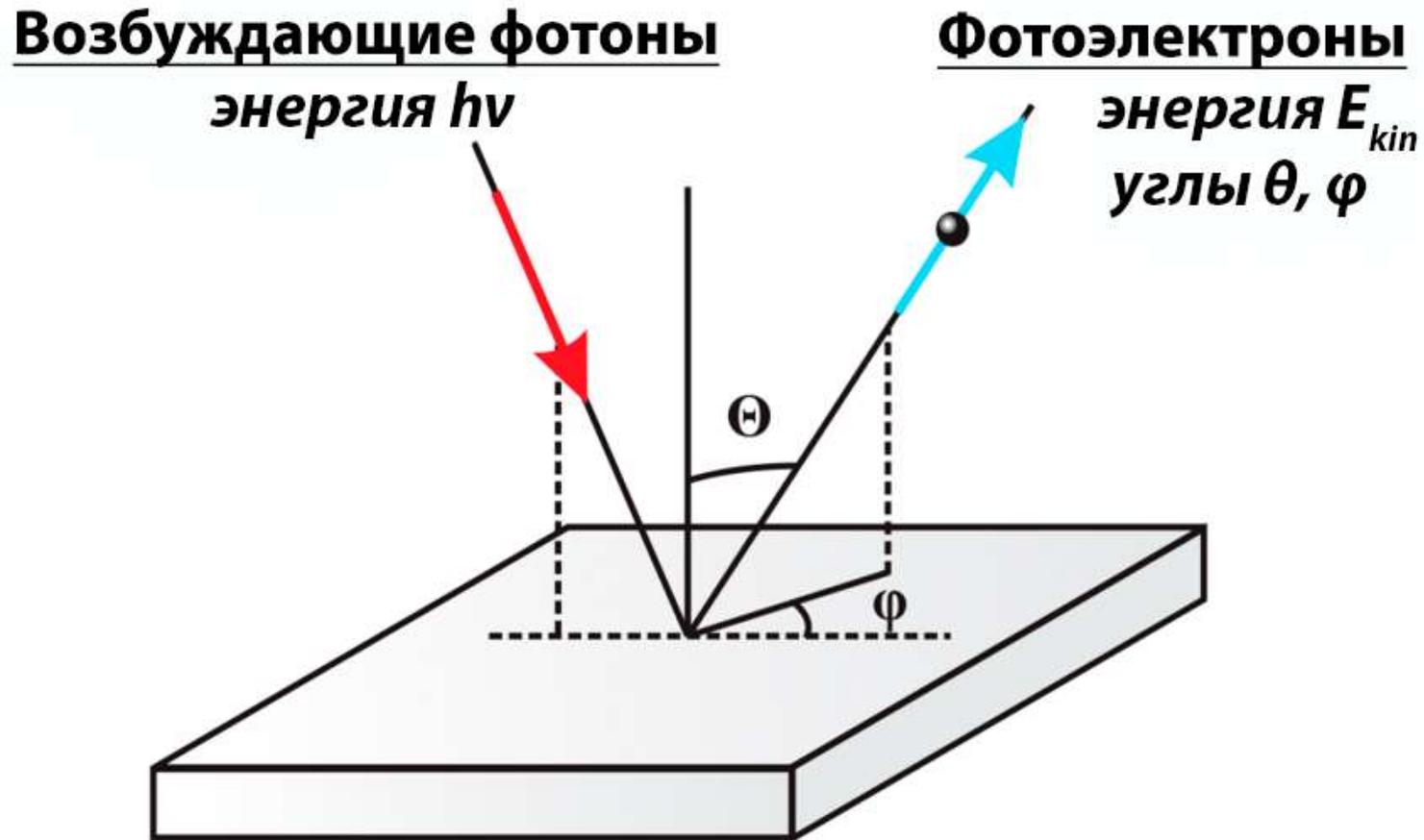
1. Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия
2. Международный физический центр в Доностии, Сан-Себастьян, Испания
3. Ikerbasque, Баскский фонд науки, Бильбао, Испания
4. Франкфуртский университет Гете, Франкфурт-на-Майне, Германия

e-mail: artem.tarasov@spbu.ru





Новые методики анализа 4f-фотоэмиссии



~~Очень высокая поверхностная чувствительность~~
Binding energy



Определение ориентации магнитных моментов



Моделирование 4f-спектров

$$\hat{H}_{4f} = \hat{H}_{CF} + \hat{H}_{ES} + \hat{H}_{SO} + \hat{H}_{CI} - \text{гамильтониан 4f-оболочки}$$

Рассматривался дипольный переход из начального состояния 4f-орбитали $|wLSJM_J\rangle$ в конечное состояние $|w'L'S'J'M'_j\rangle$ с вылетевшим фотоэлектроном $|\vec{k}m'_s\rangle$.

$$|JM_J\rangle = \sum_{wLS} C_{wLS}^J |wLSJM_J\rangle \quad \text{COB смешивает LS-состояния}$$

$$\sigma_{M_J J'}(\vec{k}) = N \sum_{\substack{mm_s \\ (M'_j)}} \sigma_m(\vec{k}) \left[\sum_{\substack{wLS \\ w'L'S'}} C_{wLS}^J C_{w'L'S'}^{J'} Q_{wLS}^{w'S'L'} U_{LSJM_J}^{L'S'J'M'_j l m m_s} \right]^2$$

Можно рассчитать 4f-спектры для разных M_J .

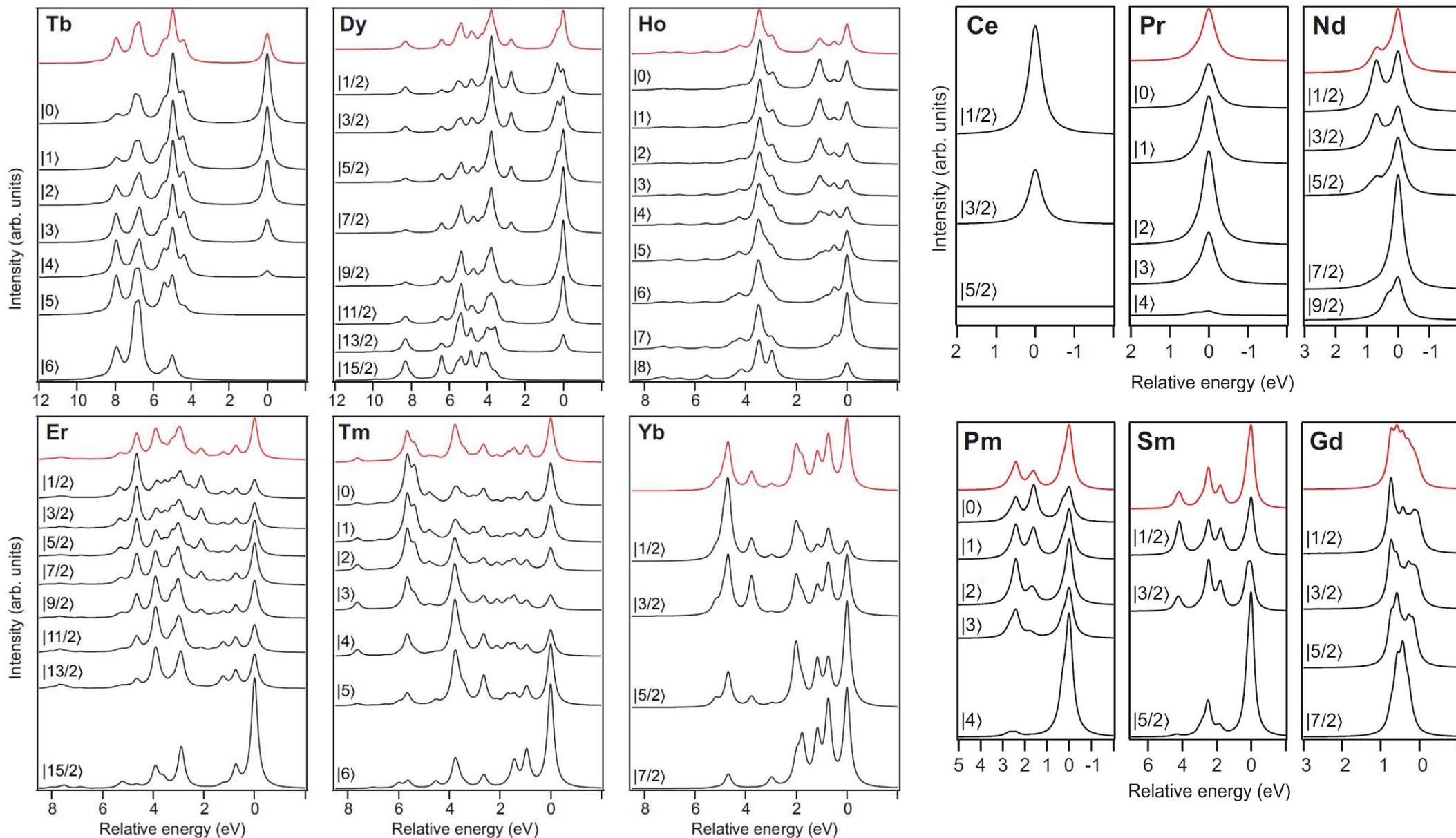
$\sigma_m(\vec{k})$ можно считать с помощью программного пакета EDAC¹

Коэффициент U включает в себя четыре коэффициента Клебша-Гордана:

$$U_{LSJM_J}^{L'S'J'M'_j m m_s} = \sum_{\substack{M M_S \\ M' M'_S}} C_{L'M' l m}^{LM} C_{S'M'_S \frac{1}{2} m_s}^{SM_S} C_{LM SM_S}^{JM_J} C_{L'M' S'M'_S}^{J'M'_j}$$



Набор рассчитанных 4f-спектров Ln³⁺

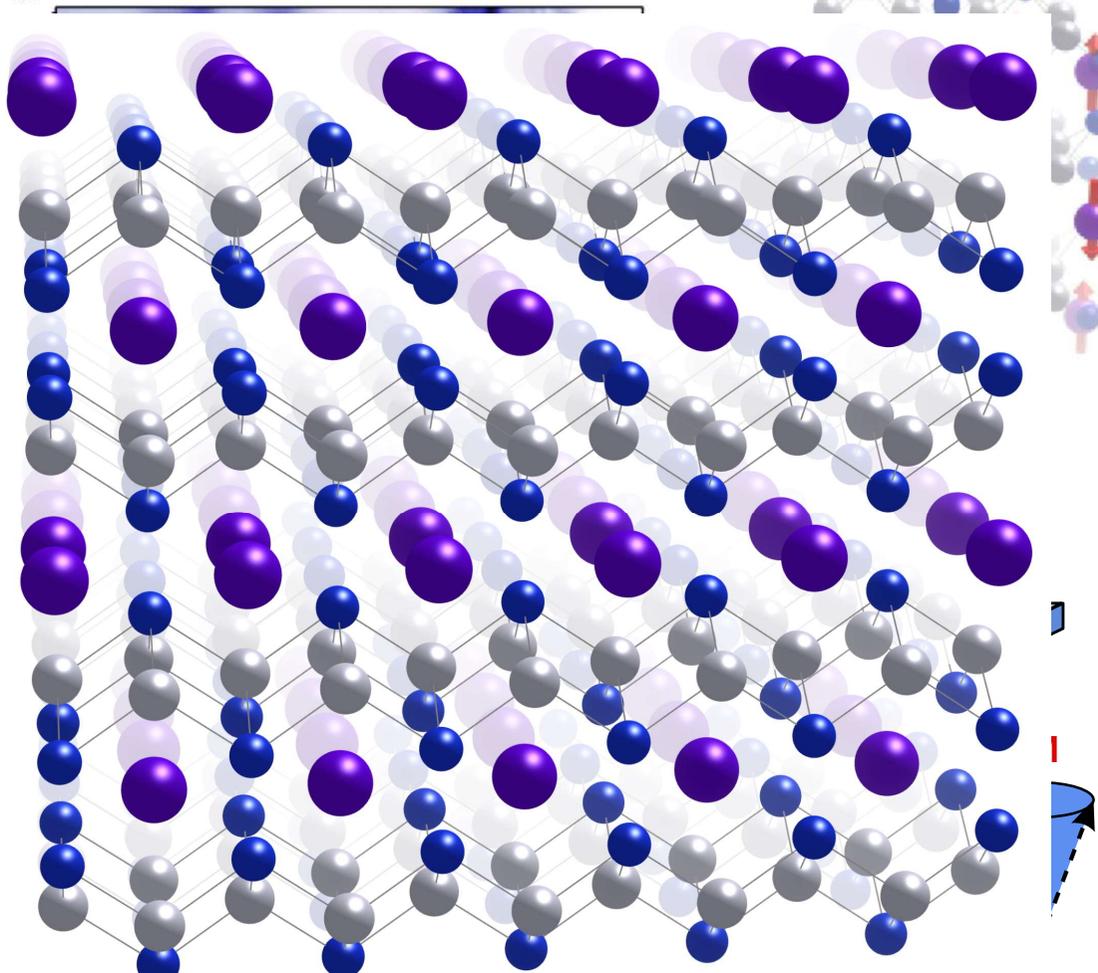
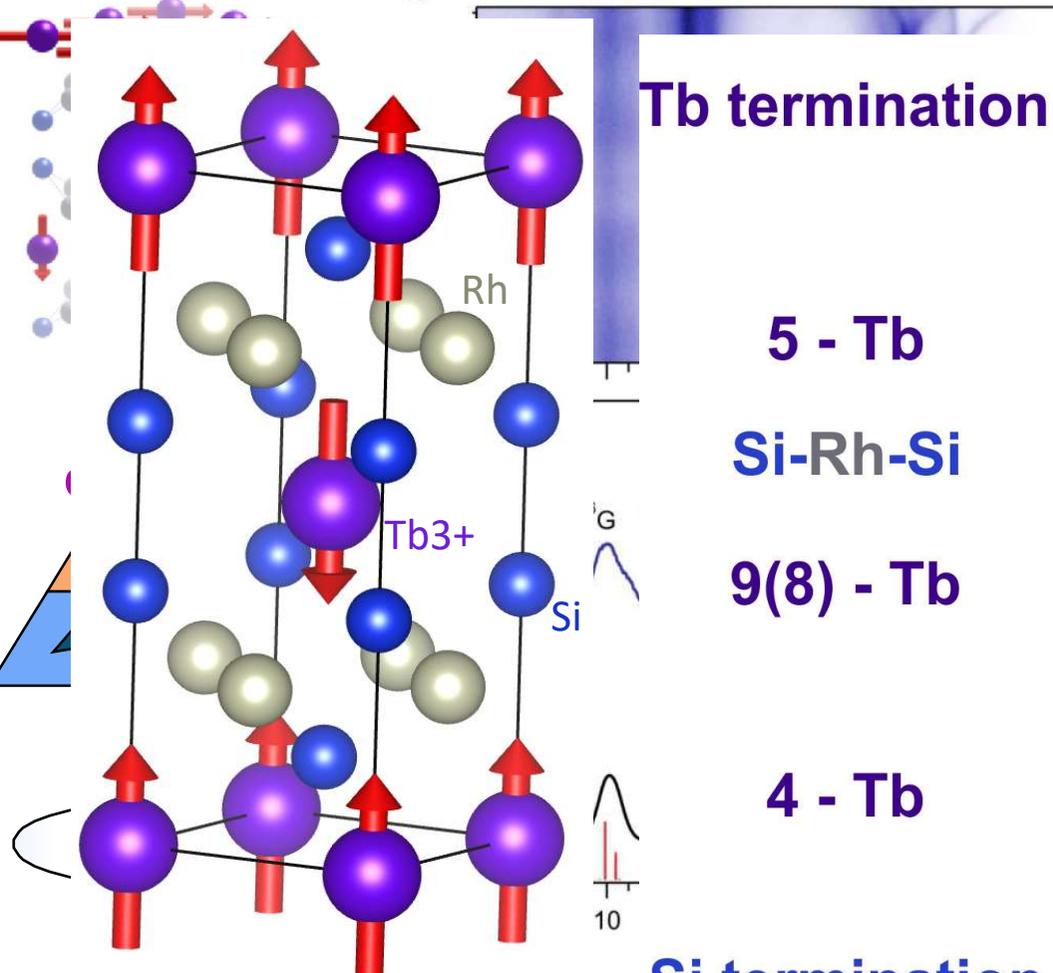




Анализ 4f-спектров TbRh₂Si₂

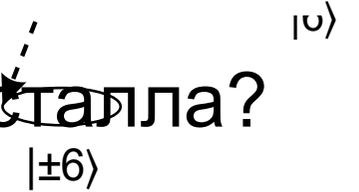
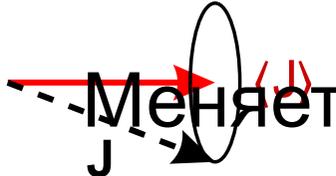
a Tb termination

b Si termination



Si termination

Определены возможные направления магнитных моментов вблизи поверхности кристалла?
магнитное упорядочение моментов в слоях



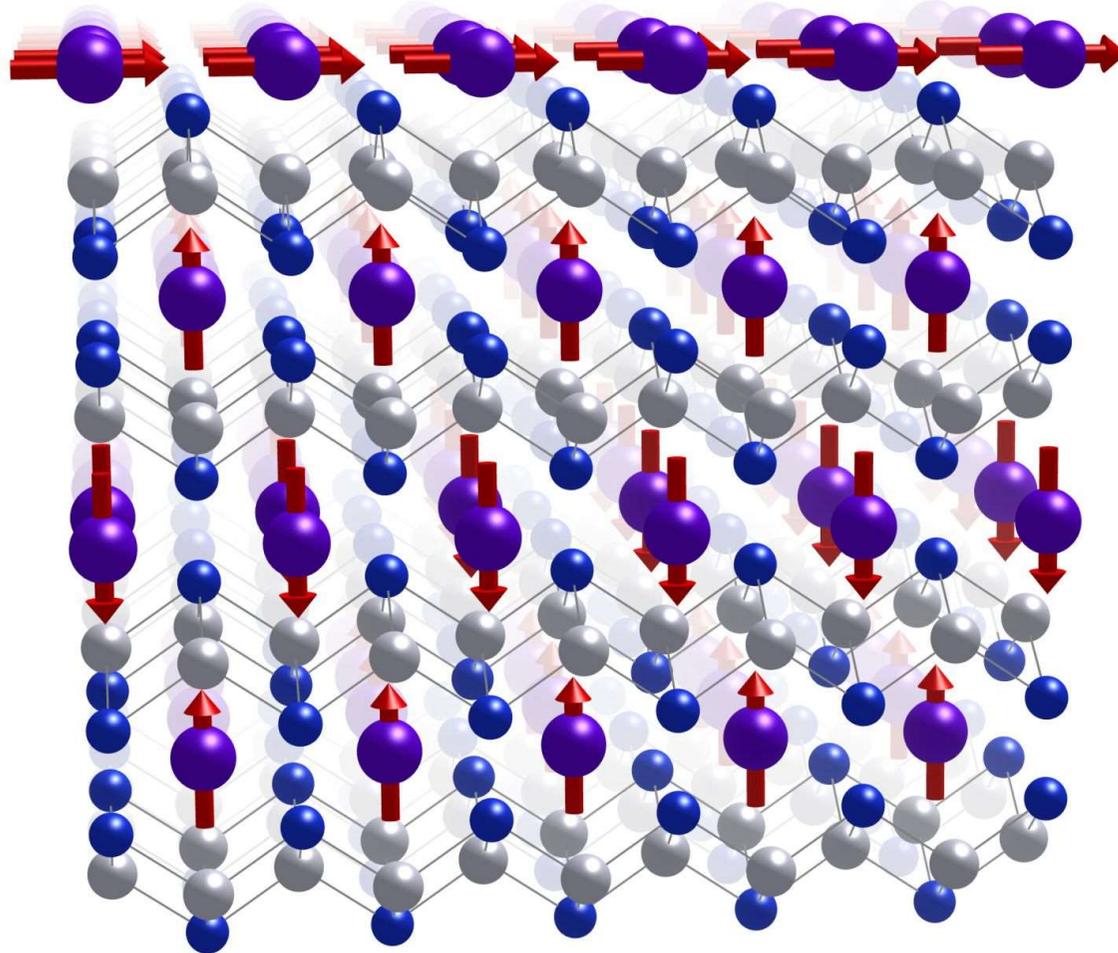


Анализ поведения кристаллического поля



Магнитное упорядочение TbRh₂Si₂

Tb termination



Первый слой

$$M_J = 0$$

5 - Tb

Si-Rh-Si

9(8) - Tb

4 - Tb

Si termination

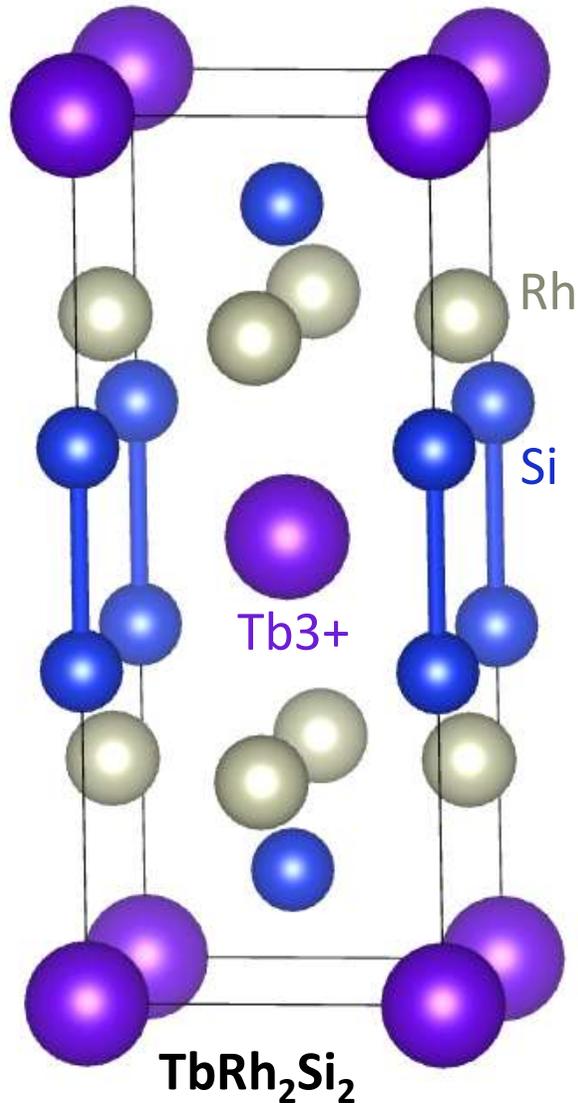
Изменение
Кристаллического поля
На поверхности?

Четвертый слой

$$M_J = 6$$



Параметры кристаллического поля



Тетрагональная структура

D_{4h} (4/mmm) в объеме

C_{4v} (4mm) на поверхности

Tb³⁺: [Xe]4f⁸

L=3

S=3

J=6

$$\hat{H} = \hat{H}_{ion} + \hat{H}_{CEF}$$

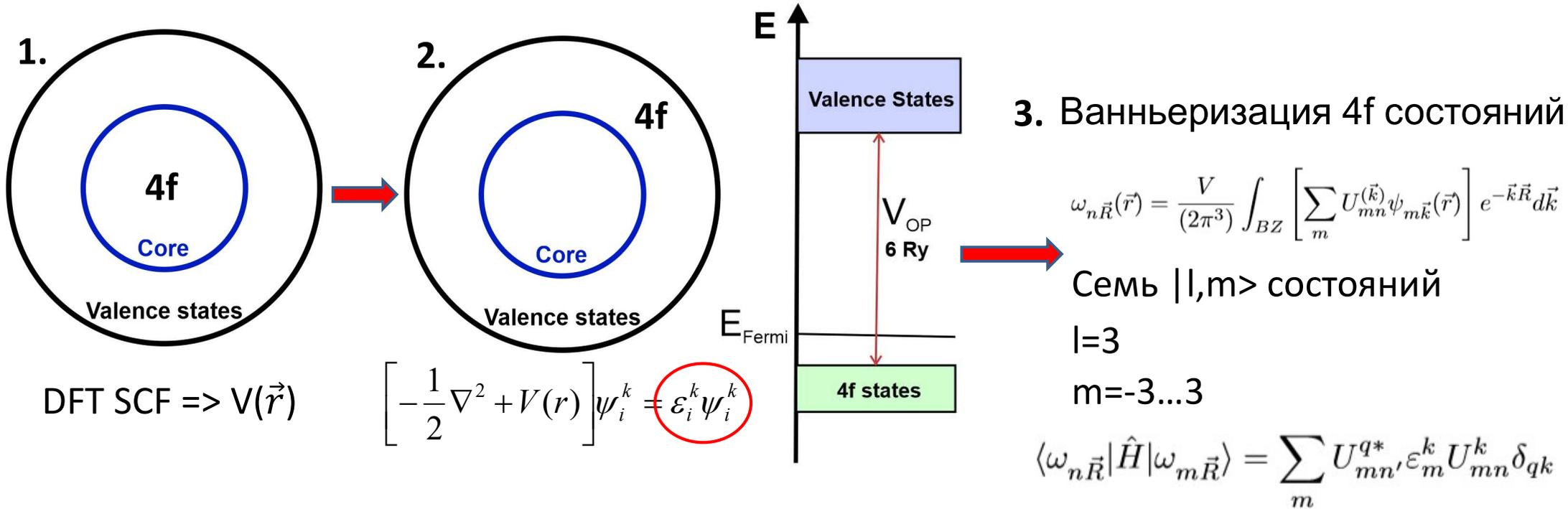
$$H_{CEF} = \sum_{k,q,i} B_q^k (C_q^{(k)})_i$$

Кристаллическое поле

$$H_{CEF} = B_0^2 C_0^{(2)} + B_0^4 C_0^{(4)} + B_4^4 \left(C_4^{(4)} + C_{-4}^{(4)} \right) + B_0^6 C_0^{(6)} + B_4^6 \left(C_4^{(6)} + C_{-4}^{(6)} \right)$$



Параметры кристаллического поля



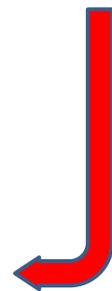
4.

	$ 3, -3\rangle \dots 3, 3\rangle$
$ 3, -3\rangle$	7X7 Matrix
\vdots	
\vdots	
\vdots	
\vdots	
$ 3, 3\rangle$	

$$\hat{H}_{4f} = E_{\text{avg}} \hat{I} + \hat{H}_{\text{CF}} = E_{\text{avg}} \hat{I} + \sum_{k,q} B_q^{(k)} \hat{C}_q^{(k)},$$

where

$$E_{\text{avg}} = \text{Tr}(\hat{H}_{4f}/7).$$



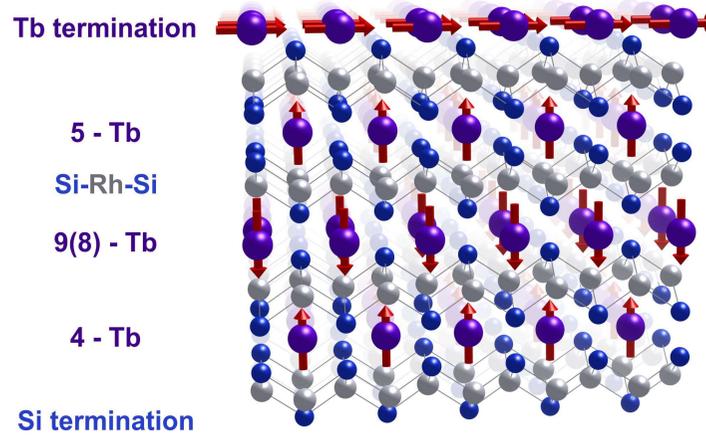


Параметры кристаллического поля

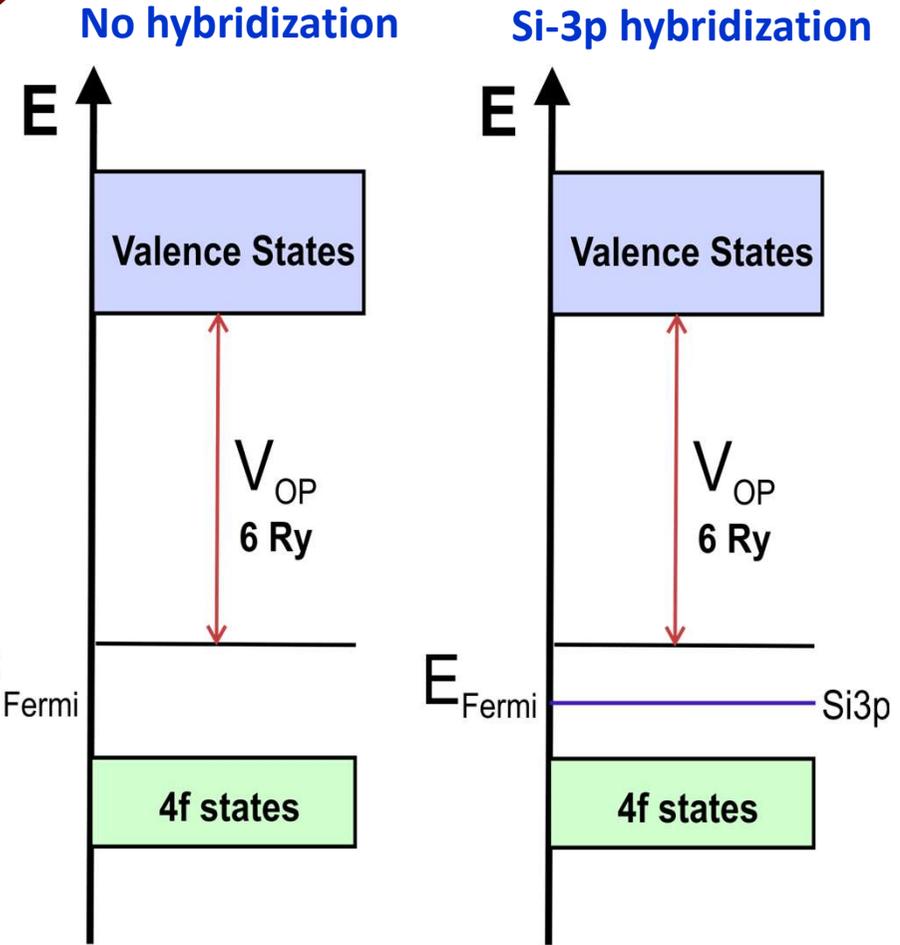
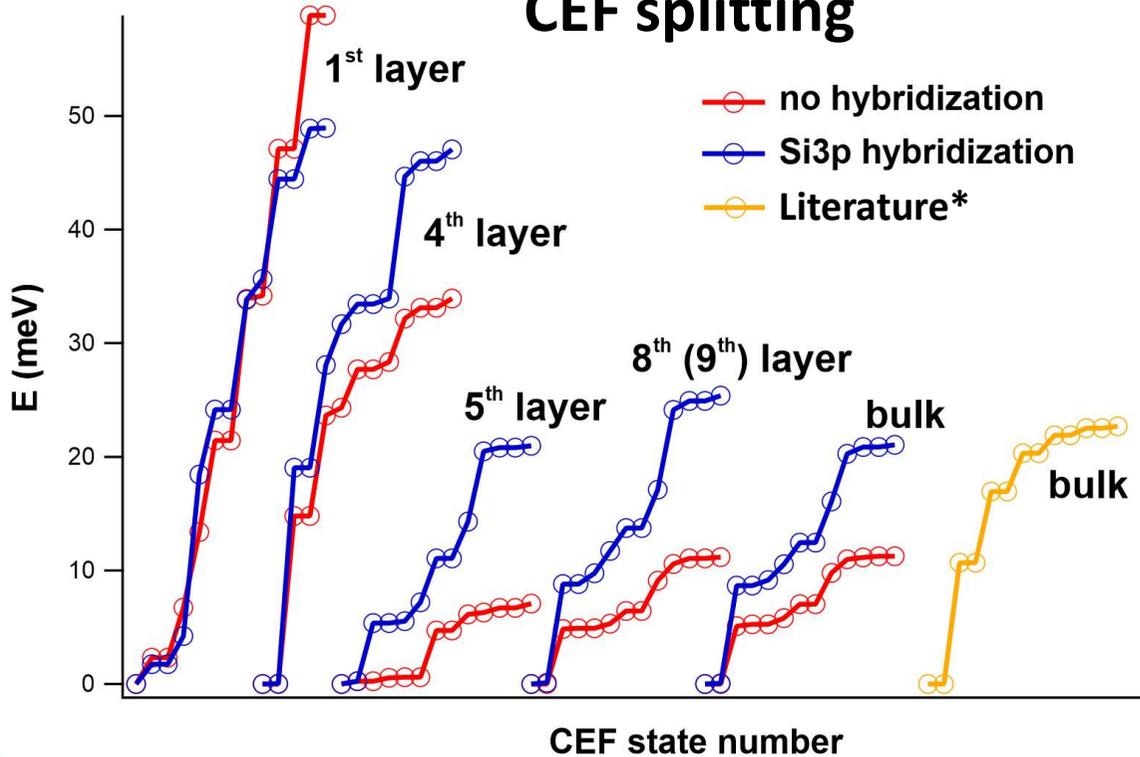
Find the eigenvalues of H_{CEF}

Tb³⁺: [Xe]4f⁸

2J+1 sublevels



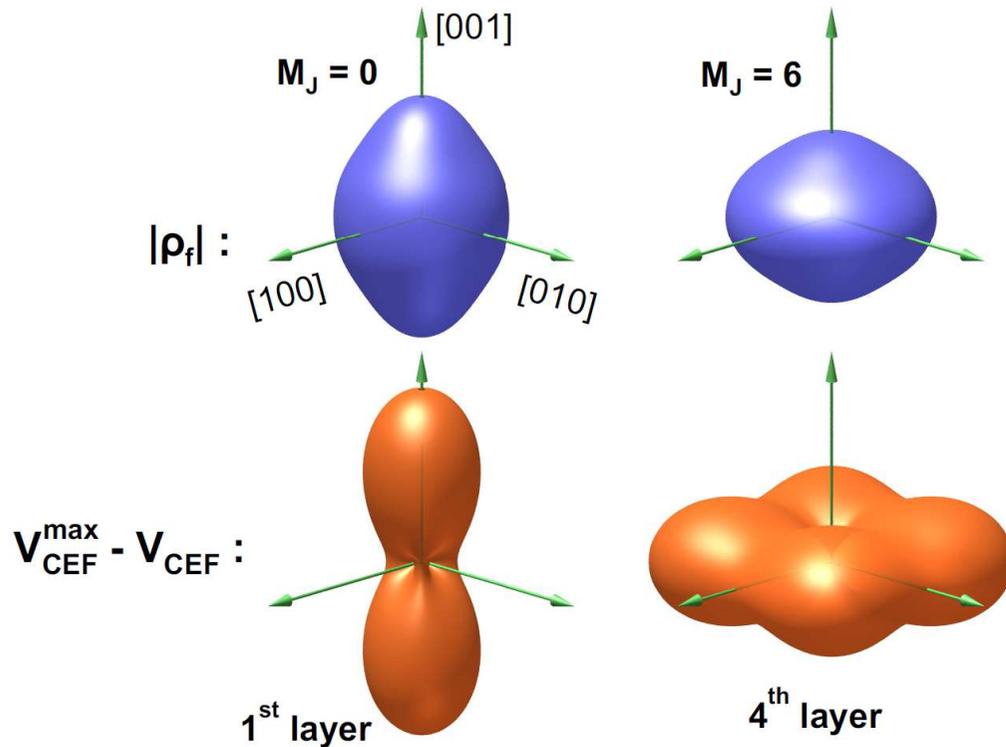
CEF splitting



[*] H. Abe et al., J. Phys. Soc. Jpn. 71, 1565 (2002),

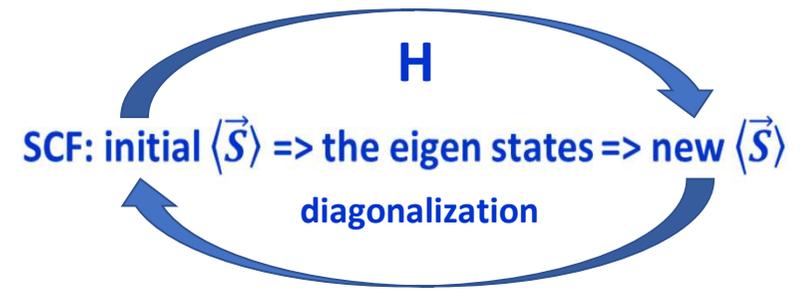


Анализ кристаллического поля



Гамильтониан с членом
молекулярного поля

$$H = H_{CEF} - \frac{3kT_C^0 (g_e - 1)^2}{J(J+1)(g_J - 1)^2} \vec{S} \cdot \langle \vec{S} \rangle$$



ТФП расчеты B_q^k

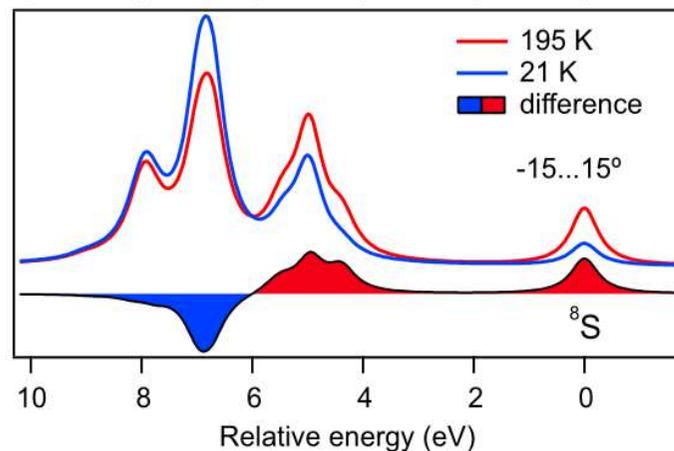
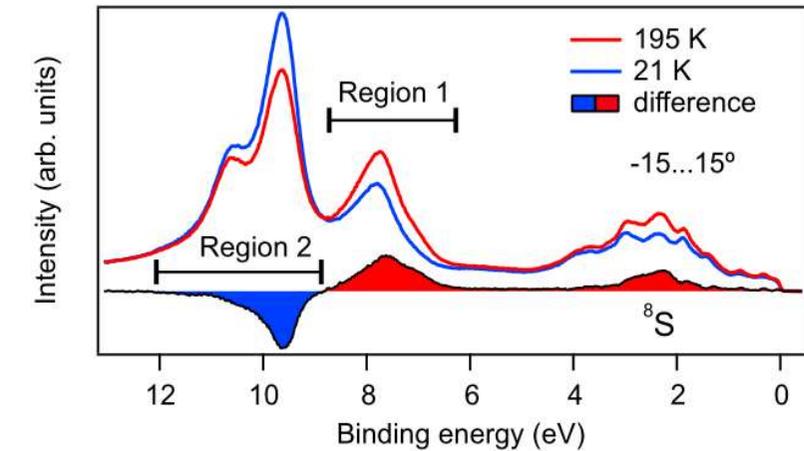
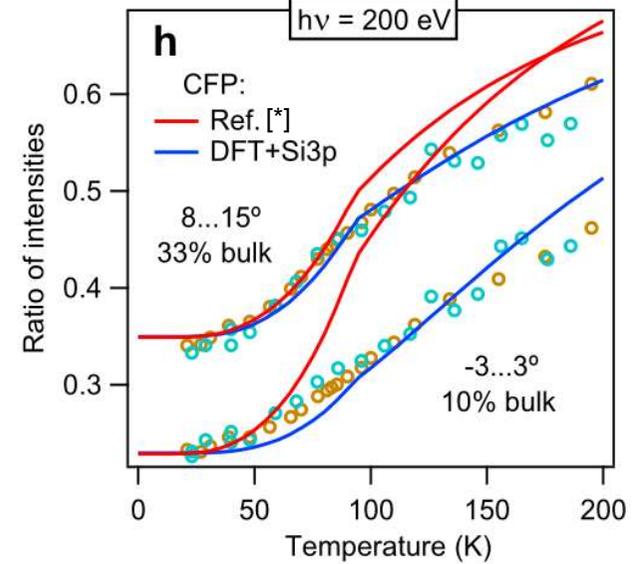
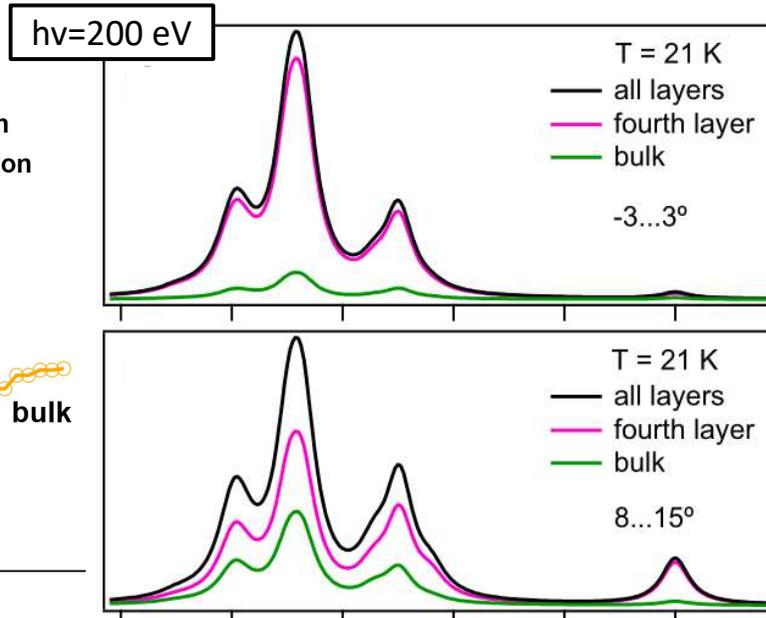
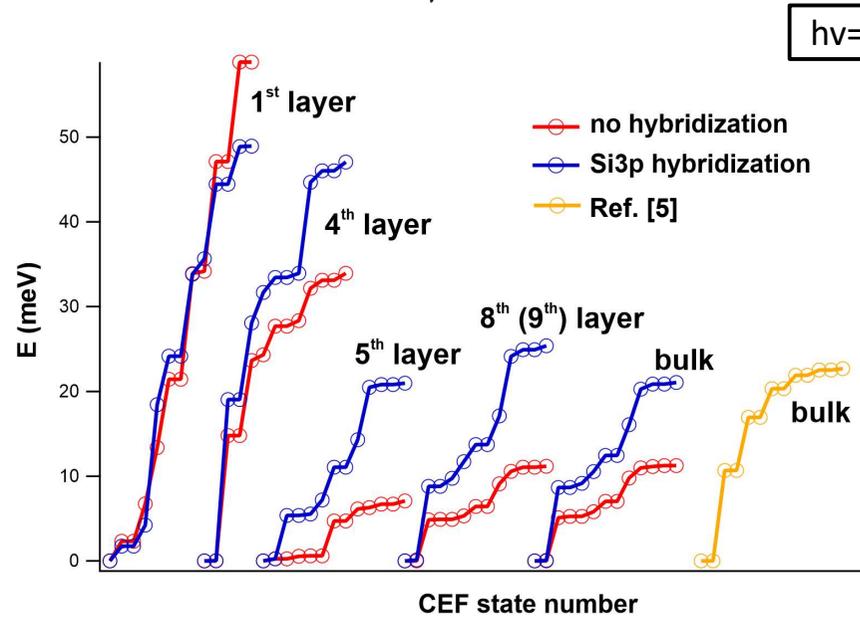
	B_0^2	B_0^4	B_4^4	B_0^6	B_4^6
The 1 st layer	-107.9	-43.7	25.8	-9.7	23.0
The 4 th layer	57.8	-38.7	20.0	-17.0	26.3
Bulk	11.5	-35.7	20.4	-14.8	20.1

4th layer: $\langle \vec{J} \rangle // [001]$ – **out-of-plane**
1st layer: $\langle \vec{J} \rangle // [110]$ – **in-plane**



Анализ кристаллического поля

$$\sigma_{J'}(\vec{k}, T) = \sum_{\nu} u_{\nu}(T) \sigma_{J'\nu}(\vec{k}) \quad u_{\nu} \propto e^{\frac{-E_{\nu}}{k_B T}}, \quad E_{\nu} \text{ получены путем диагонализации } 4f\text{-гамильтониана}$$



**Кристаллическое поле
на поверхности
сильнее, чем в объеме**

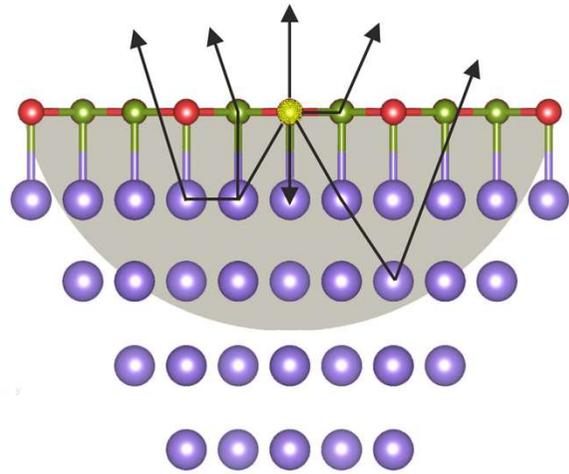
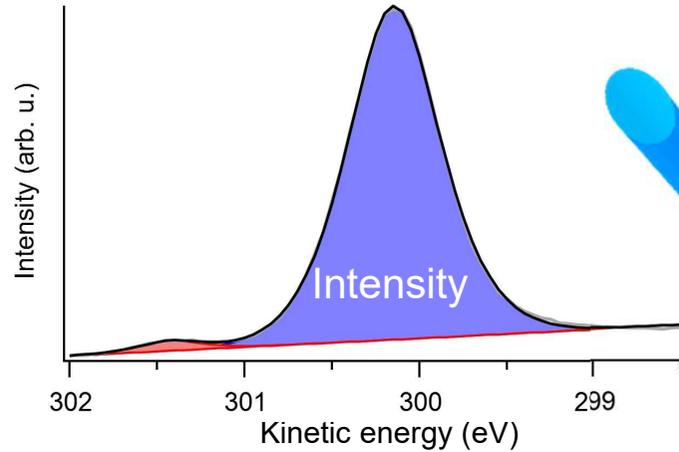


Структурный анализ

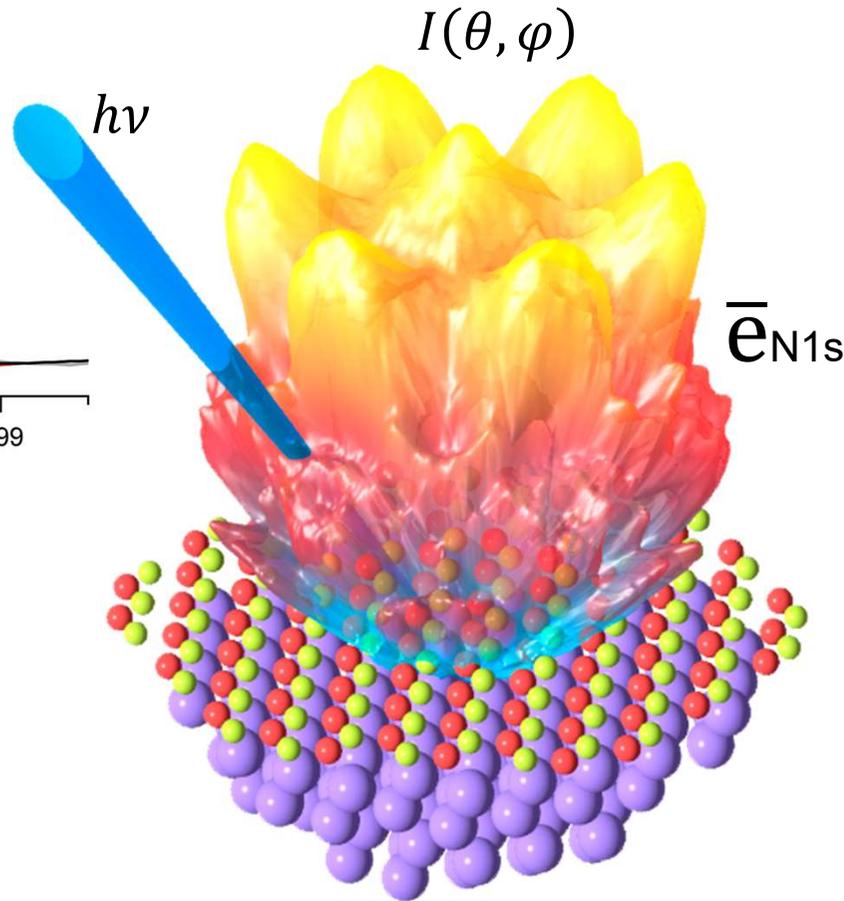


Фотоэлектронная дифракция (ФД)

XPS spectra



Multiple Scattering



$I(\theta, \varphi)$ ↔ Структура



Равновеликая проекция

Преимущества:

- Химическая селективность
- Высокая структурная чувствительность

Недостатки:

- Метод применим только к монокристаллам



Структурный ФД анализ

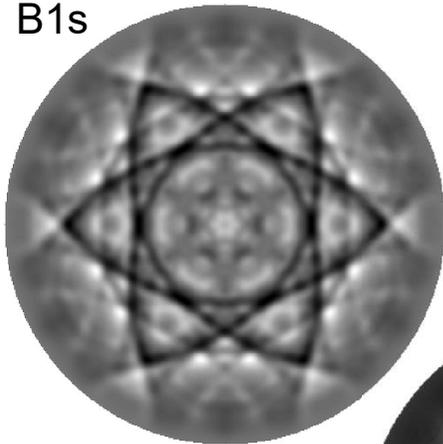
$$R_p(\vec{\alpha}) = \frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} (\chi_{pi}^t(\vec{\alpha}) - \chi_{pi}^e)^2$$

χ – картины ФД после вычета
гладкого фона и нормировки
значений интенсивности.

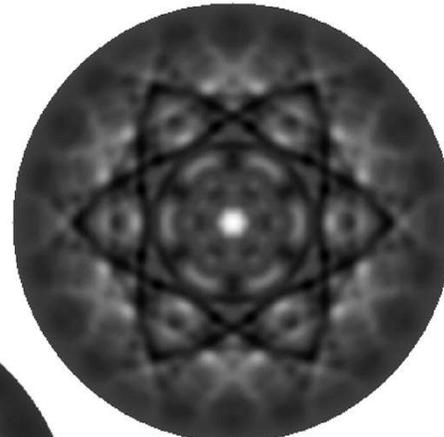
$$R(\vec{\alpha}) = \sum_{p=1}^n \omega_p R_p(\vec{\alpha}) \quad \omega_p - \text{весовой фактор}$$

$$\vec{\alpha} = \begin{pmatrix} \text{Структурные параметры} \\ \text{Внутренний потенциал} \\ \text{Температура Дебая} \\ \text{Высота поверхности} \end{pmatrix}$$

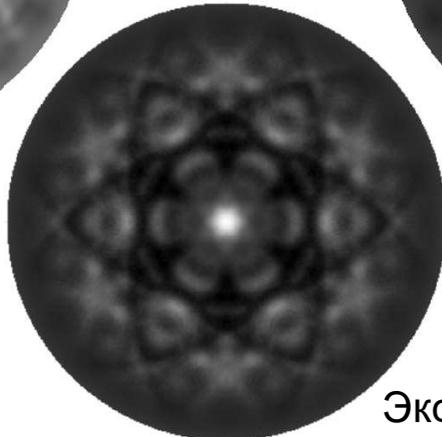
B1s



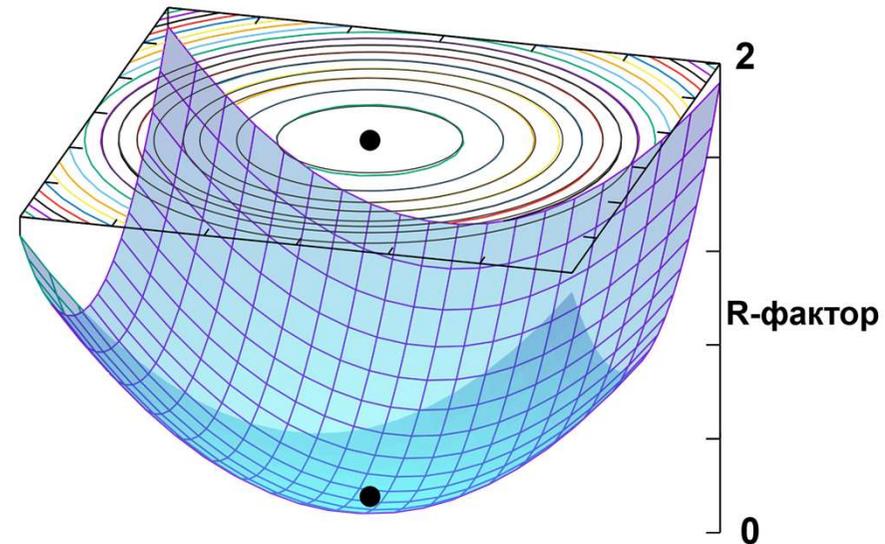
Подбор $\vec{\alpha}_0$



Первоначальная догадка



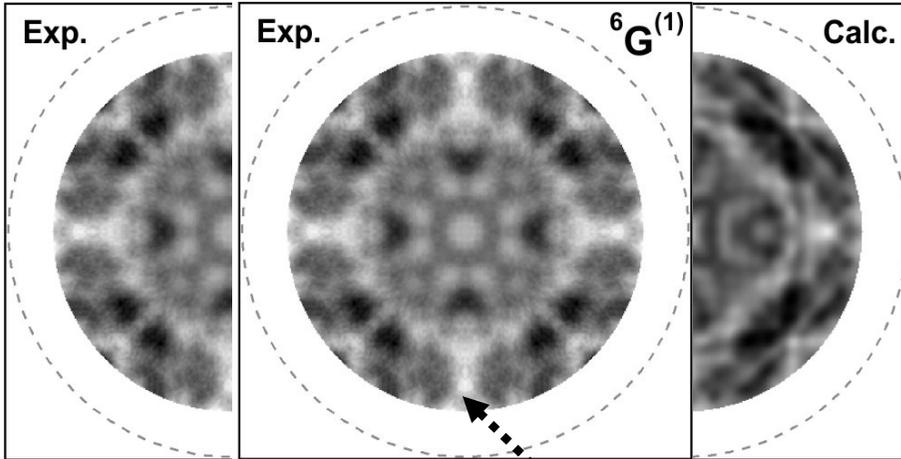
Алгоритм Левенберга — Марквардта





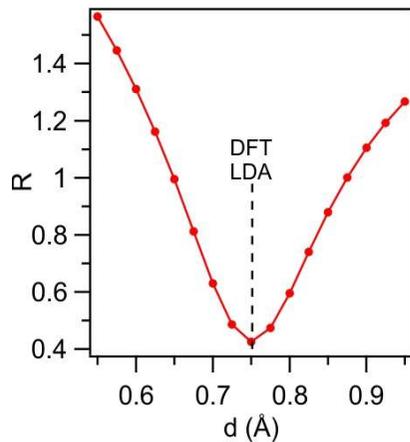
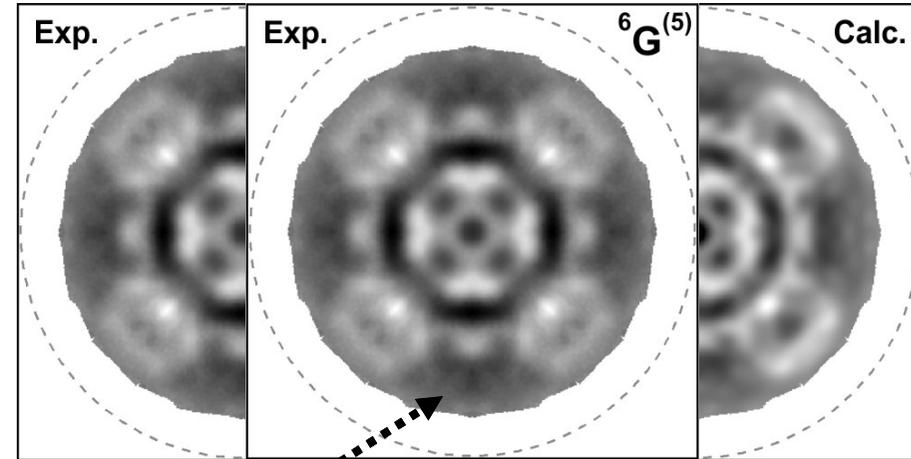
The Tb 1st layer

$$|M_J\rangle = |0\rangle$$

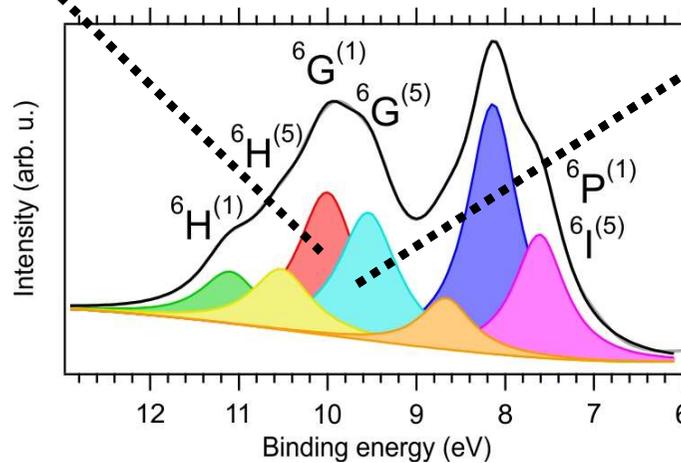


The Tb 5th layer

$$|M_J\rangle = |6\rangle$$



Расстояние между
1-м и 2-м слоями



Тб-терминация

ФД анализ:

Величина поверхностной релаксации 37%

**Результаты ФД анализа
идеально согласуются с
расчетами в рамках ТФП**



**Продемонстрированы возможности 4f-фотоэмиссии
для поверхностного анализа:**

1. Ориентации магнитных моментов

2. Кристаллического поля

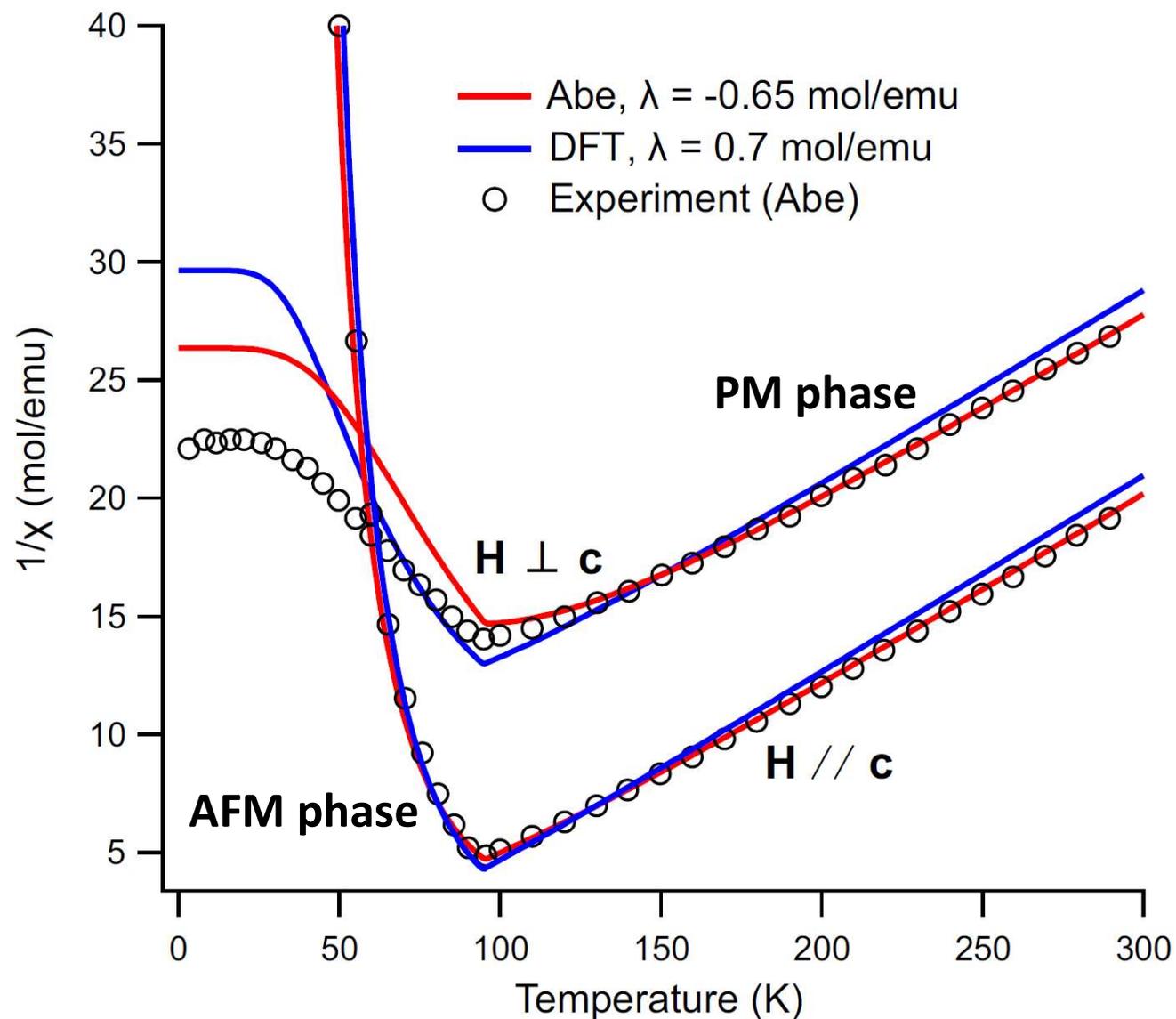
3. Атомной структуры

**редкоземельных
слоев**

Работа выполнена при поддержке
Санкт-Петербургского государственного университета
(грант №103483725)

Verifying CFP

Magnetic Susceptibility



$$\vec{M} = \chi \vec{B}$$

$$\vec{\mu} = f(\vec{B} + \vec{B}^{mf})$$

$$H_J = H_{CEF} - \frac{3k_B T_C^0}{J(J+1)} \vec{J} \cdot \langle \vec{J} \rangle$$

$$\chi = \frac{\chi_c}{1 - \lambda \chi_c}$$

where χ_c is a susceptibility without molecular field

$$\chi_c = n \frac{\partial \langle \vec{\mu} \rangle}{\partial B} \vec{m}$$

$$\langle \mu \rangle = -g_J \mu_B \langle \vec{J} \rangle$$



Санкт-Петербургский
государственный университет
spbu.ru