

4. 2. Untersuchung einer Pd-Schicht auf der Ni(111)-Oberfläche

Bis zum Jahre 2001 wurde das Hyperfeinfeld am ^{111}Cd für verschiedene Positionen und in verschiedenen Monolagen an der Grenzfläche von ferromagnetischen und unmagnetischen Metallen (Pd/Ni und Fe/Ag) mit Hilfe radioaktiver Isotope gemessen [Rao 85], [Runge 97], [Bertschat 97]. Potzger führte weitere Messungen durch und systematisierte die experimentellen Ergebnisse [Potzger 01] mit Hilfe theoretischer Berechnungen [Blügel 88]. Die bis dahin erhaltenen $[B_{\text{hf}}]$ - Werte sind in die Abb. 4.2._1 dargestellt.

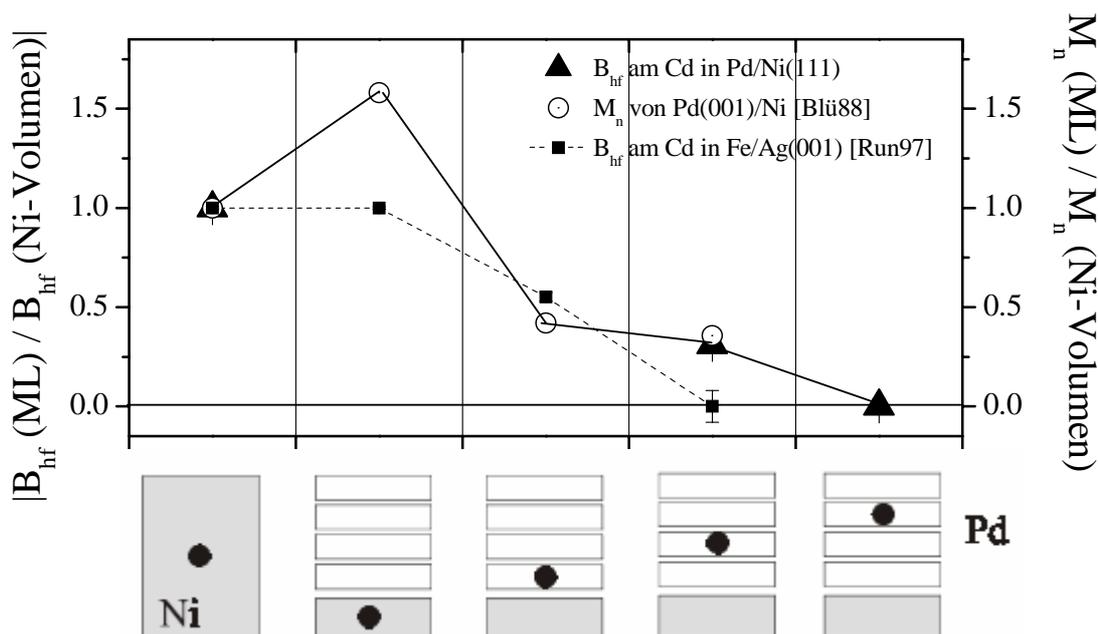


Abb. 4.2_1: Vergleich induzierter magnetischer Momente mit dem B_{hf} am Cd in Pd-Monolagen nahe Ni/Pd-Grenzflächen. Erläuterungen finden sich im Text. Die Punkte in den unteren Diagrammen geben die Position der Sonden an.

Die Ergebnisse sind vergleichbar mit den experimentellen Ergebnissen anderer Paare ferromagnetischer / unmagnetischer Metalle: Ni/Cu [Voigt 90c], [Voigt 91]; Cr/Fe [Decoster 90], In/Fe [Neubauer 96], Fe/Ag(100) [Runge 97] und Fe/Cr(100) [Swinnen 97]. Für das System Pd/Ni gibt es Untersuchungen mit verschiedenen Methoden, die zu unterschiedlichen Aussagen kommen. Laut Gradmann [Gradmann 84] (FMR) entwickeln die ersten 5 - 6 ML der Pd-Schicht auf dem Ni-Einkristall ein magnetisches Moment. In einer anderen Arbeit [Bertschat 97] (PAC) wurde aber gezeigt, dass $^{111\text{m}}\text{Cd}/^{111}\text{Cd}$ in der dritten Monolage des Pd-Einkristalls mit einer Bedeckung von 12 ML Ni kein B_{hf} „spürt“. Es bleibt offen, ob dieses Ergebnis die Grenzen der Empfindlichkeit der PAC-Methode aufzeigt.

Es blieben jedoch andere noch ungeklärte Fragen:

Erstens ist zweifelhaft, ob die angegebenen B_{hf} -Werte für die Positionen der mit Pd-Schicht bedeckten Cd-Sondenatome in der zweiten Monolage Pd auf dem Ni-Einkristall für das System Pd-Schicht/Ni-Einkristall als magnetische Felder identifiziert worden sind. Laut [Pötzger 01] war „die Interpretation der Herkunft der Frequenz im $R(t)$ -Spektrum nicht eindeutig. Sie könnte auch durch eine elektrische Quadrupolwechselwirkung hervorgerufen worden sein“.

Zweitens wurden die B_{hf} -Werte für die Position der mit Pd-Schichten bedeckten Sondenatome in Ni-Einkristallen und die Position mit Pd-Schichten bedeckter Sondenatome in der ersten Pd-Schicht auf Ni-Einkristall nicht eindeutig bestimmt. In [Pötzger 01] wurde die Tatsache festgestellt, dass die $^{111}\text{In}/^{111}\text{Cd}$ -Sonden bei 300 K in der 2. Monolage Pd auf Ni(111) sich durch weitere Pd-Schichten bedecken ließen. In der ersten Monolage Pd auf Ni(111) war dies bei Temperaturen, die größer als 270 K waren, nicht möglich. Die Sonde verhielt sich somit in der zweiten Lage Pd auf Ni so wie in der obersten Lage eines Pd-Einkristalls. Auf Einkristallen gelingt die Bedeckung der Sonde mit weiteren Pd-Schichten bei ebenfalls 300 K [Bertschat 97]. Um die experimentelle Situationen zu klären, wurde deshalb in diesem Experiment ein Versuch unternommen, die oben genannten Fraktionen der Sondenatome bei $T = 116$ K zu erhalten.

Es ist auch anzumerken, dass für Cd das $B_{\text{hf}} = 0$ ist, wenn es sich in der dritten Pd-Schicht eines Pd(111)-Einkristalls befindet, der mit einem 12 ML dicken Ni-Film bedeckt wurde [Bertschat 97]. Zum Ausschließen des Einflusses der Änderung von Gitterdimensionen, also von 3-D-Eigenschaften zu 2-D-Eigenschaften, und um einen korrekten Vergleich zwischen den Experimenten zu ermöglichen, war eine neue Messung mit einer dicken Pd-Schicht (> 10 ML) auf Ni(111)-Einkristall nötig. Um die aufgeworfenen Fragen zu beantworten wurde eine neue Reihe von Messungen durchgeführt.

4.2.1. Die Auswertung des $R(t)$ -Spektrums

Im Rahmen dieser Arbeit wurden folgende Messungen durchgeführt:

A) Um die Messung an der Terrassenposition ($NN = 9$) zu wiederholen wurde ein Ni(111)-Einkristall verwendet. Die PAC-Sonden ^{111}In wurden bei der Temperatur von 300 K auf die Ni(111)-Oberfläche aufgebracht. Aus den vorhergehenden Forschungen (vgl. Kap.3) ist bekannt, dass erst bei Temperatur von mehr als 500 K die $NN = 9$ – Konfiguration erhalten wird. Deswegen wurde bei $T = 640$ K für 20 Minuten lang getempert. Die Messung wurde bei $T = 300$ K vorgenommen. Die ersten fünf PAC-Spektren (Abb. 4.2.1_1) wurden in der

180°/90° - Standardgeometrie (vgl. Kap. 2 und Kap. 4.1.2.1) aufgenommen. Mittels des Auswertungsprogramms DEPACK99 wurden entsprechende R(t)-Spektren und Anpassungskurven erhalten, die in Abb. 4.2.1_1 dargestellt sind. In der Tabelle 4.2.1_1 sind die aus den Anpassungskurven gewonnenen Parameter zusammengefasst. Die Anpassung an die Messdaten (Tab. 4.2.1_1_A) ergab, dass etwa 50 % der Sonden einen identischen Platz einnahmen. Da der Asymmetrieparameter Null war ($\eta = 0$), und auch $\beta = 0$, ist der EFG zylinderförmig und steht senkrecht zur Kristalloberfläche. Unter Berücksichtigung des Fehlerbereichs sind $V_{zz} = 1,1(1) \cdot 10^{17} \text{ Vcm}^{-2}$ und $B_{\text{hf}} = 5,7(2) \text{ T}$ gleich wie in der vorausgehenden Arbeit [Potzger 01] mit den Werten $V_{zz} = 11,3(3) \cdot 10^{17} \text{ Vcm}^{-2}$, $B_{\text{hf}} = 6,2(3) \text{ T}$. Daraus schließen wir, dass die substitutionelle Terrassenposition NN = 9 tatsächlich eingenommen wurde.

B) Auf einen Ni(111)-Einkristall wurde eine Monolage Pd bei einer Temperatur von 116 K aufgebracht und ein R(t)-Spektrum (Abb. 4.2.1_1_B) aufgenommen. Aus der Arbeit [Bellini 04] ist bekannt, dass die V_{zz} - und B_{hf} - Parameter sich mit der Gitterrelaxation ändern können, was auch experimentell bestätigt wurde [Potzger 01]. Um die Parameter der neuen Fraktion genau zu kontrollieren, wurde eine Präparationsmaske verwendet, die beim Aufbringen von Pd-Schichten einen Teil der Kristalloberfläche abschirmte. Somit wurde nicht der ganze Ni-Einkristall mit Pd bedeckt (nur etwa 60%). Die Anpassung an die Messdaten (Tab. 4.2.1_1_B) ergab, dass etwa 20 % der Sonden in der Position (NN = 9) in Ni(111) geblieben sind (wie bei der Messung **A**) und etwa 23 % in die Pd-Schicht (NN = 9) diffundierten. Dieses Experiment ergibt, dass bei $T = 116 \text{ K}$ ^{111}In -Sonden aus dem Ni - Einkristall in die erste Pd - Monoatomschicht diffundieren.

C) Es ist bekannt, dass die Kristalloberfläche bei niedrigen Temperaturen (weniger als 273 K) Restgase aus der Kammer absorbiert und eine lang - dauernde Messung ($t > 12 \text{ h}$) mit guter Statistik unmöglich ist. Um die Parameter der neuen Fraktion in der ersten Pd - Schicht auf Ni genau zu vermessen und die Parameter der Fraktion (NN = 9 in Ni) mit dem Ergebnis der Messung **A** korrekt zu vergleichen, wurde das System bis $T = 333 \text{ K}$ erwärmt. Die Messung lief bei einer Temperatur von 300 K. Die Anpassung an die Messdaten (Tab. 4.1.2_2_C) ergab, dass die Sonden bei der Messtemperatur = 300 K in Pd-Monoatomschicht wie erwartet blieben, und unter Berücksichtigung des Fehlerbereichs sind die Werte für V_{zz} und B_{hf} für beide Fraktionen die gleichen wie in der vorherigen Arbeit [Potzger 01].

D) Als nächstes wurde die Position bedeckter Cd-Sondenatome in der zweiten Monolage Pd auf Ni wie folgt erhalten: Auf das System aus Messung **C** (Cd-Sondenatome in der ersten Pd-Schicht auf Ni-Einkristall) wurden noch zwei ML Pd bei $T = 300 \text{ K}$ aufgedampft. Ebenso wie

bei der früheren Messung (**B**) wurde die Präparationsmaske verwendet. Das $R(t)$ -Spektrum ist auf Abb. 4.2.1_1_D dargestellt. Die Anpassung an die Messdaten (Tab. 4.2.1_1_D) ergab, dass zwei Fraktionen vorhanden sind. Die erste Fraktion entspricht der aus Messung **A** (Die Sonden befinden sich in der substitutionellen Terrassenposition von Ni). Beim Vergleich der Formen der FFT-transformierten Spektren **A**, **B**, **C** und **D** (Abb. 4.2.1_1_A, 4.2.1_1_B, 4.2.1_1_C, Abb. 4.2.1_1_D) erkennt man, dass eine neue *Langsamfraktion* entstanden ist, die so aussieht, wie die in [Potzger 01] beobachtete Fraktion (bedeckte Cd-Sondenatome in der zweiten Monolage Pd auf Ni). Die Langsamfraktion mit einer Frequenz von etwa $0,05 \cdot 10^9$ rad/s kann hinsichtlich EFG und B_{hf} nicht eindeutig interpretiert werden.

In dieser Phase der Messung wurde festgestellt, dass In-Sondenatome durch die dritte Pd-Schicht nicht hindurchdiffundieren. Bemerkenswert ist die Tatsache, wie bei den weiteren Messungen gezeigt wird (Abb. 4.3.1_3 - Abb. 4.2.1_2_H), dass In-Sondenatome bei $T = 300$ K durch die erste und die zweite Pd-Schicht diffundieren. Wie bei [Potzger 01] festgestellt wurde, ist es unmöglich, das Vorhandensein (bzw. die Abwesenheit) von B_{hf} direkt durch die Anpassung des $R(t)$ -Spektrums zu erkennen.

E) Zwecks der Ausschließung etwaiger „3-D“- „2-D“- Eigenschaftsänderungen und des korrekten Ergebnisvergleichs wurden 20 zusätzliche Pd - Monoatomschichten aufgebracht. Das erhaltene $R(t)$ -Spektrum ist in Abb. 4.2.1_1_E gezeigt. Die Anpassung an die Messdaten (Tab. 4.2.1_1_E) ergab, dass die beiden Fraktionen die von ihnen eingenommene Position wie in Messung **D** (Abb. 4.2.1_1_D) beibehalten.

I) Wie erwähnt, ist es nicht möglich, das genaue B_{hf} - und V_{zz} - Verhältnis für die neue Langsamfraktion direkt durch die Auswertung des $R(t)$ -Spektrums zu gewinnen. Um die im Rahmen dieses Experiments gestellte Aufgabe der Messung eines B_{hf} -Wertes für die Position des Cd-Atoms bedeckt mit einer Pd-Schicht in der zweiten Monolage Pd auf Ni-Einkristall zu lösen, wurde das magnetische System (mit $135^\circ/45^\circ$ -Detektorgeometrie), wie bei der vorhergehenden Messungen (Kap. 4.1.2), verwendet (Abb. 4.2.1_2_I). Der Fit an die Messdaten (Tabelle 4.1.2._1_I) ergab, dass das bloße Experiment noch nicht genügt, um präzise Werte der B_{hf} - und V_{zz} - Parameter für die Langsamfraktion zu erhalten. In dieser Detektorgeometrie könnte ein solches Spektrum auch allein durch eine starke elektrische Quadrupolwechselwirkung (mit einem sehr kleinen B_{hf} und großer Dämpfung) hervorgerufen worden sein. Wenn man das Ergebnis der Messung **E** und die Temperaturkonstanz in Betracht zieht, lässt sich vermuten, dass die Werte der B_{hf} - und V_{zz} - Parameter hier gleich denen aus Messung **E** sein sollten. Zur Bestimmung des B_{hf} - Wertes wurde die Richtung des äußeren magnetischen Feldes geändert (wie bei den Messungen im Kap. 4.1.2).

J) Nach der Änderung der Richtung des äußeren magnetischen Feldes begann diese Messung (Abb. 4.2.1_2_J). Das Experiment ergab, dass die $R(t)$ -Funktion ihre Richtung ändert, wie bei den vorhergehenden Messungen in Kap. 4.1.2 (Abb. 4.1.2_4_C und Abb. 4.1.2_4_D). Bei der Richtung des magnetischen Feldes ist es unmöglich, das $R(t)$ -Spektrum mit Hilfe eines sehr großen V_{zz} -Wertes und einem kleinen B_{hf} zu fitten. In diesem Fall wäre das Spektrum gleich wie auf Abb. 4.1.2_4_I. Also wurde die Auswertung mit Rücksicht auf die drei Messungen (Abb. 4.2.1_2_E, Abb. 4.2.1_2_I und Abb. 4.2.1_2_J) gemacht. Die erhaltenen Daten sind in Tabelle 4.2.1_1 aufgelistet.

Um die Diffusion der Cd-Sondenatome durch die erste und die zweite Pd-Monoschicht bei $T=300$ K unter Kontrolle zu bringen wurde eine zusätzliche Messung gemacht. Hier geht es um die Frage, ob Cd-Atome an der Grenzfläche, in der ersten Pd-Schicht auf Ni, bleiben, wenn eine zweite Pd-Schicht aufgedampft wird. Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass die Cd-Atome auch durch die zweite Pd-Schicht an die Oberfläche diffundieren. Die Abb. 4.2.1_3 beschreibt die verschiedenen Situationen schematisch.

H) Nach dem Beenden der im Kap. 4.1.2 beschriebenen Messung **J** (Abb. 4.3.1_3, Tab. 4.1.2_2 J), wurden deshalb zwei ML Pd bei $T = 300$ K ohne Präparationsmaske aufgedampft. Anmerkung: In der Messung - dargestellt in Abb. 4.3.1_3 - wurden ebenfalls ^{111}In -Sondenatome benutzt, aber auf einem gestuften Ni(111) - Kristall (Messung mit $T = 300$ K bei der Standarddetektorgeometrie).

Die Messung (Abb. 4.2.1_2_H) ergab, dass ^{111}In -Sonden nicht in der Langsamfraktion blieben (Abb. 4.2.1_2_H), wie sie in Abb. 4.2.1_1_D zu erkennen ist. Die Anpassung an die Messdatei (Tab. 4.2.1_1_H) ergab, dass etwa 46 % der Sonden in die zweite Pd - ML ($NN = 9$) diffundierten. Unter Berücksichtigung des Fehlerbereichs ist $V_{zz} = 11,2(2) \cdot 10^{17} \text{ Vcm}^{-2}$ und $B_{hf} = 0,7(4) \text{ T}$, also identisch mit den Werten in der vorigen Arbeit [Pötzger 01]: $V_{zz} = 11,2(3) \cdot 10^{17} \text{ Vcm}^{-2}$, $B_{hf} = 1,0(4) \text{ T}$.

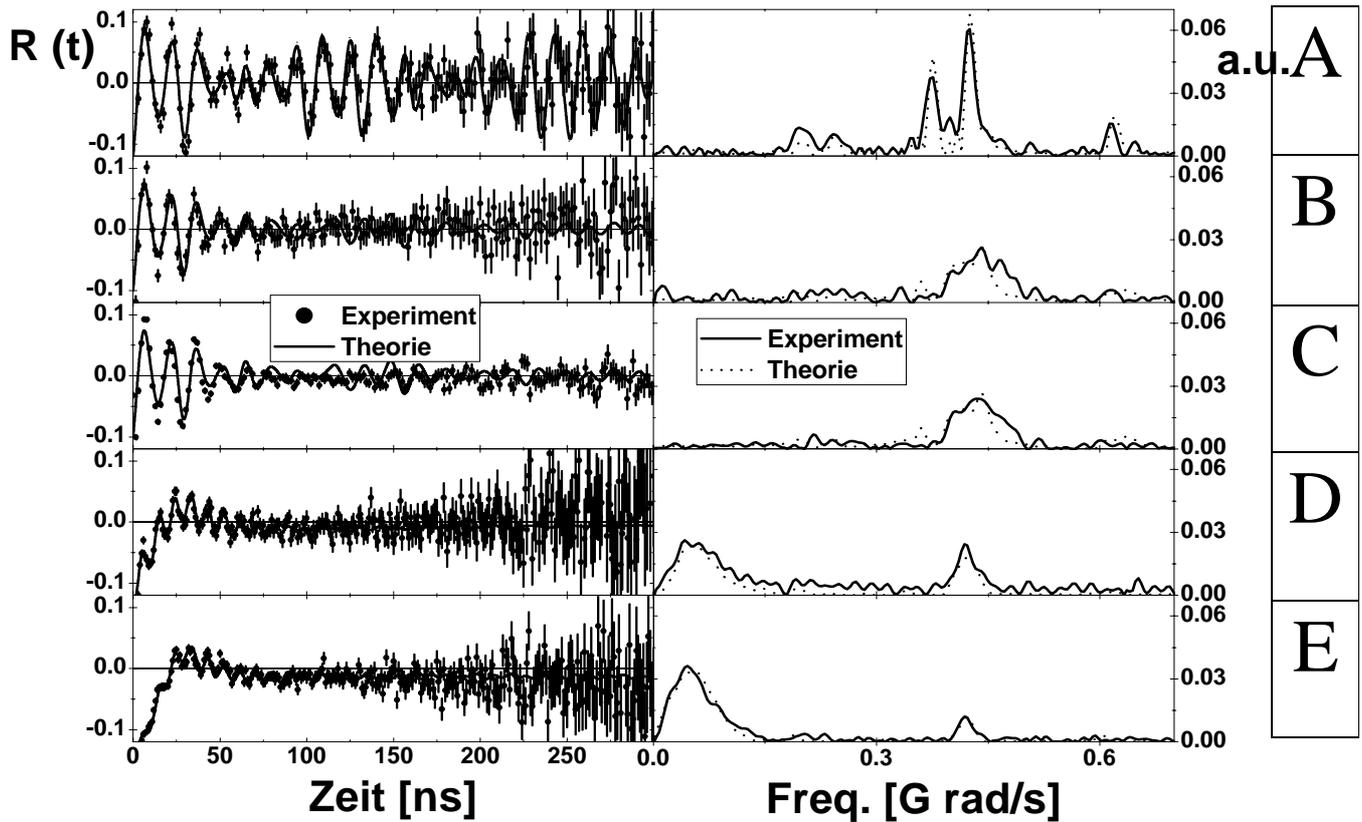


Abb. 4.2.1_1: $R(t)$ -Spektren für die PAC-Messungen an der Sonde ^{111}In . Erläuterungen befinden sich im Text. Rechts: das entsprechende fouriertransformierte Spektrum (Exp.: gestrichelte Linie, Theorie: durchgezogene Linie).

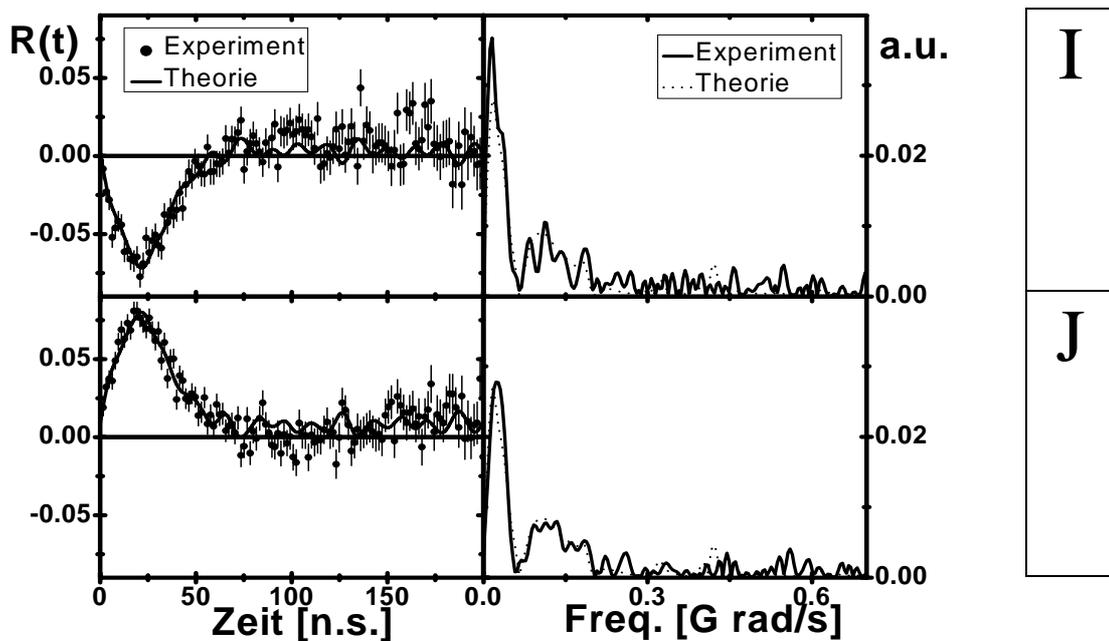


Abb. 4.2.1_2: $R(t)$ -Spektren für die PAC-Messungen an der Sonde ^{111}In . Erläuterungen befinden sich im Text. (Exp.: gestrichelte Linie, Theorie: durchgezogene Linie).

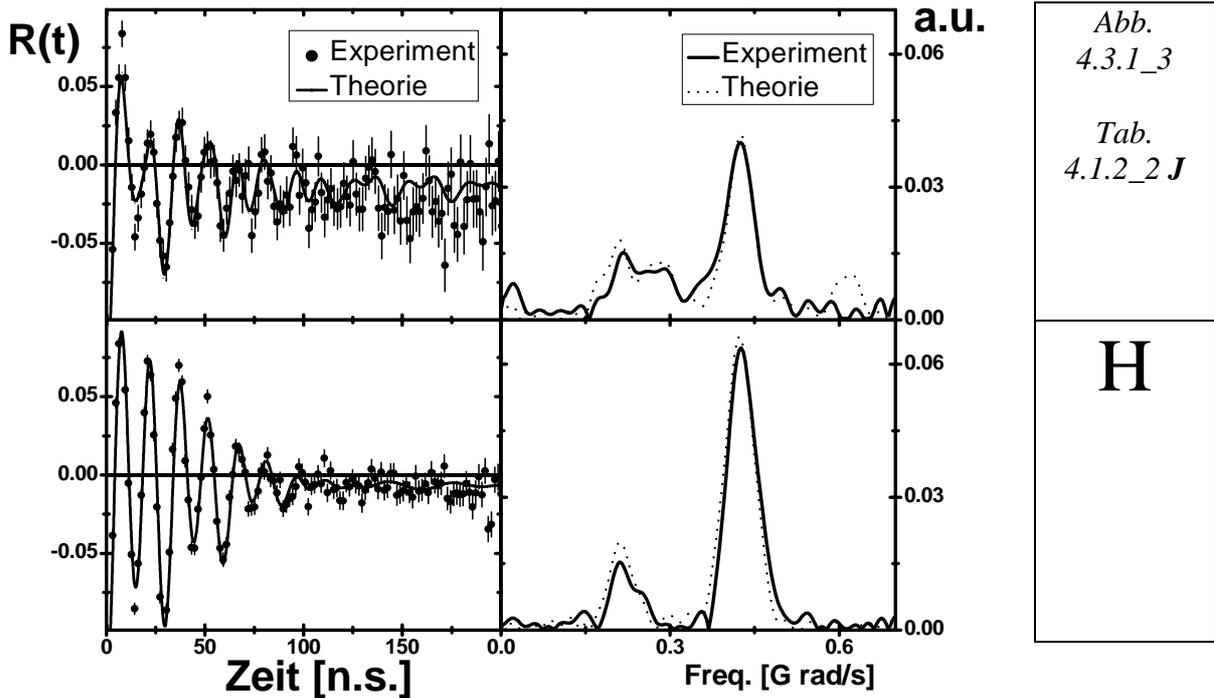


Abb. 4.2.1_2: $R(t)$ -Spektren für die PAC-Messungen an der Sonde ^{111}In . Erläuterungen finden sich im Text. (Exp.: gesichelte Linie, Theorie: durchgezogene Linie).

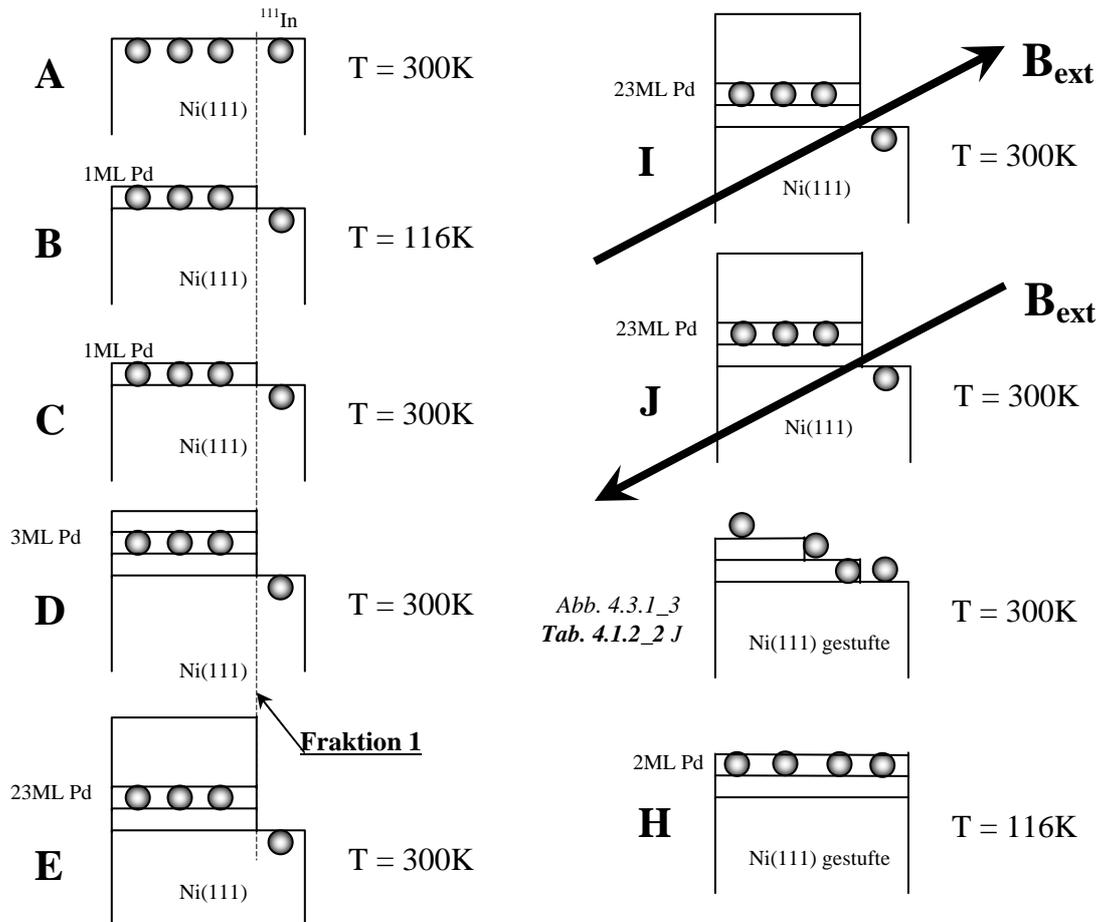


Abb. 4.2.1_3: Schematische Darstellung die ^{111}In -Sondeatoms Positionen. Erläuterungen finden sich im Text und in Tab. 4.2.1_1_1.

	Fraktion 1			Fraktion 2		
	Amp %	V_{zz}^1 η β°	B_{hf} [T]	Amp %	V_{zz}^1 η β°	B_{hf} [T]
A Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K, 20 min Messung mit T = 300 K, 3h. Standard Detektorkonfiguration (DK)	50	11,1 (1) 0 0	5,7(2)			
B Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 1 ML Pd Messung mit T = 116 K, 2,5h. (Sondeatome diffundieren in Pd-Schicht) Standard Detektorkonfiguration	20	10,9(3) 0 0	6,1(4)	23	11,6(3) 0 0	5,4(4)
C Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 1 ML Pd Messung mit T = 300 K, 13,0h. (Sondeatome bleiben in Pd-Schicht) Standard Detektorkonfiguration	20	11,0(2) 0 0	5,9(2)	23	11,4(2) 0 0	4,9(3)
D Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 3 ML Pd Messung mit T = 300 K, 14,5h. (Sondeatome in zweite Pd-Schicht) Standard Detektorkonfiguration	15	11,0(2) 0 0	5,9(2)	29	1,3(6) 0 0	1,4(8)
E Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 23 ML Pd Messung mit T = 300 K, 14,5h. (Sondeatome in zweite Pd-Schicht) Standard Detektorkonfiguration	6	11,0(2) 0 0	5,9(2)	46	1,2(2) 0 0	1,3(3)
I Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 23 ML Pd Messung mit T = 300 K, 14,5h. (Sondeatome in zweite Pd-Schicht) 45 ⁰ DK, mit Magnet (Richtung bleibt)	6	11,0(2) 0 0	5,9(2)	46	1,2(2) 0 0	-1,3(3)
J Ni(111) + ^{111}In Annealing 640 K + 23 ML Pd Messung mit T = 300 K, 14,5h. (Sondeatome in zweite Pd-Schicht) 45 ⁰ DK, mit Magnet (in anderer Richtung)	6	11,0(2) 0 0	5,9(2)	46	1,2(2) 0 0	-1,3(3)
H Ni(111) gestufte + ^{111}In + 2 ML Pd Messung mit T = 116 K, 2,5h. (Sondeatome diffundieren in die zweite Pd-Schicht) Standard Detektorkonfiguration	45,6	11,2(2) 0 0	0,7(4)			

Tab. 4.2.1_1_1: Die Parameter aus den Messungen A bis H nach der Anpassung
1) V_{zz} in 10^{17}Vcm^{-2}

4.2.2. Zusammenfassung des Experimentes von Kap. 4.2

In diesen Experimenten wurde erfolgreich die neue Methode (Einsatz eines äußeren Magnetfeldes unter Verwendung der 135°/45°-Detektorgeometrie) für die Untersuchung der Hyperfeinwechselwirkung der „Langsamfraktion“ angewandt, die bei der Standarddetektorgeometrie erschwert ist. Dabei wurde nachgewiesen, dass die 135°/45°-Detektorgeometrie zur Bestimmung des B_{hf} -Wertes sehr empfindlich ist. Die Position der radioaktiven Sonden mit Pd-Schichten bedeckter Cd-Sondenatome in der zweiten

Monolage Pd auf einem Ni-Einkristall wurde wiederholt, alle entsprechenden Parameter für diese Position wurden sehr präzise ermittelt. Das negative Vorzeichen von B_{hf} für diese Positionen wurde festgestellt. Das magnetische Hyperfeinfeld für diese Position beträgt $B_{\text{hf}} = -1,3(3) \text{ T}$ (im Gegensatz zu $2,9(2) \text{ T}$ bei [Potzger 01]).

