

**MAGNETO-OPTICAL KERR-EFFECT OF URANIUM-COMPOUNDS:
A STUDY OF THE ELECTRONIC AND MAGNETIC STRUCTURE**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZUERICH

for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by

WOLFGANG REIM

Dipl. Phys. ETH

born Nov. 12th, 1956

citizen of West-Germany

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. P. Wachter, examiner
PD Dr. J. Schoenes, co-examiner

1984

ABSTRACT

A comprehensive study of the magneto-optical properties of metallic uranium compounds is presented in the 0.5 - 6 eV photon energy range. New results about the electronic and the magnetic structure of these materials are derived.

The f states are best described in an itinerant model with an occupation of nearly 3 for all investigated materials except the Th_3P_4 -structure compounds, although correlation effects are shown to play a dominant role in UTe. A spin-polarized band structure of f and d states in the system UTe-USb-YsB is derived and the competition of f - d and f - p hybridization in this system is discussed. The maintenance of a f^3 - f^2 valence transition in the USb-YsB pseudo-binary system is challenged.

The magnetic f - d exchange energy is established to be negative for all investigated materials i.e. the f and d moments align antiparallel upon magnetic ordering. This property manifests itself in two magneto-optical effects: First, the conduction electron spin-polarization displays a negative sign and its size is observed to range up to -100% for certain compounds, which is an extraordinary value for magnetic metals. Second, the $f \rightarrow d$ transition energy displays a magnetic red-shift in the order of 200meV due to the formation of spin-polarized subbands of the d states which are energetically split by the exchange energy. The size of the magnetic shift is found to depend on the sublattice magnetization rather than on the net moment which results in similar magnitudes for some ferro- and antiferromagnets. This behavior completely differs from the one known up to now for antiferromagnetic semiconductors, but is well understood in terms of the magnetic structure of the uranium pnictides.

For most of the materials, the value of the f polarization is calculated. The f moment itself is evidenced to consist of antiparallel spin and orbital contributions with a predominant orbital part in most of the investigated NaCl-structure compounds.

Some of the investigated uranium systems seem to be very promising candidates for technical applications due to the by far largest Kerr-rotation ever observed for metals, reaching up to $\approx 9.2^\circ$ at 65% reflectivity.

KURZFASSUNG

In dieser Arbeit wird über eine umfassende Untersuchung der magneto-optischen Eigenschaften metallischer Uran-Verbindungen im Energiebereich zwischen 0.5 und 6 eV berichtet. Neue Erkenntnisse sowohl über die elektronische als auch die magnetische Struktur dieser Substanzen, die sich aus der Analyse der magneto-optischen Daten ergeben, werden diskutiert.

Wir finden, dass die 5f-Elektronen in allen untersuchten Materialien ausser denen mit Th_3P_4 -Struktur am geeignetsten in einem Bandmodell beschrieben werden. Für UTe hat sich allerdings gezeigt, dass Korrelationseffekte eine wichtige Rolle spielen. Für das Mischsystem UTe-USb-YSb war es möglich, ein spin-polarisiertes Bandstrukturmodell aufzustellen und es konnte zudem das Wechselspiel von f-d und f-p Hybridisierung studiert werden. Das Auftreten einer f^3 - f^2 Valenzänderung im Teilsystem USb-YSb wird allerdings in Frage gestellt.

Wir zeigen in dieser Arbeit, dass die f-d Austauschenergie für alle untersuchten Materialien ein negatives Vorzeichen aufweist, d.h. die Momente der f- und d-Elektronen koppeln antiparallel. Diese Tatsache manifestiert sich in zwei verschiedenen Ergebnissen der Magneto-Optik: Zum einen finden wir eine negative Spin-Polarisation der Leitungselektronen in allen Substanzen, die bei einigen sogar eine Grössenordnung von bis zu -100% erreicht. Zum anderen äussert sich die antiparallele f-d Kopplung in einer magnetischen Rotverschiebung der f+d Uebergangsenergie von 200meV, verursacht durch die Austausch-induzierte Aufspaltung des d-Bandes in spin-polarisierte Teilbänder. Ueberraschenderweise finden wir Verschiebungen ähnlicher Grösse in gewissen Antiferro- und Ferromagneten und eine Proportionalität zur Untergittermagnetisierung. Dies ist zwar ein völlig anderes Verhalten als bisher von magnetischen Halbleitern her bekannt ist, kann aber im Rahmen der magnetischen Struktur der Uran-Praktide gut verstanden werden.

Für die meisten Materialien geben wir eine Abschätzung der Polarisation der f-Elektronen an. Zudem wird gezeigt, dass für bestimmte Verbindungen das totale f-Moment vorwiegend durch den Bahndrehimpuls gegeben ist und das f-Spinmoment antiparallel dazu steht, obwohl die f-Elektronen itineranten Charakter zeigen.

Einige der untersuchten Materialien bieten vielversprechende Voraussetzungen für technische Anwendungen, ist doch die maximale beobachtete Kerr-Drehung von $\approx 9.2^\circ$ bei 65% Reflexion um mindestens eine Grössenordnung grösser als in allen bekannten nicht-5f Metallen.