

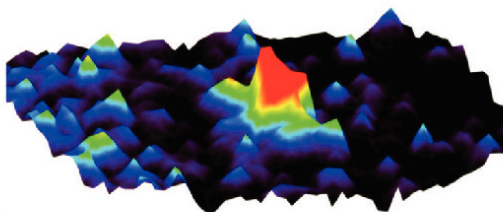


Enrico Faulhaber (Autor)

Untersuchung der magnetischen Eigenschaften von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ mittels Neutronenstreuung

Enrico Faulhaber

**Untersuchung der magnetischen
Eigenschaften von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$
mittels Neutronenstreuung**



 Cuvillier Verlag Göttingen

<https://cuvillier.de/de/shop/publications/1462>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,
Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>

1 Einführung

Supraleitung und magnetische Ordnung sind zwei kollektive Phänomene, denen in der Festkörperphysik mit großem Interesse begegnet wird. Gewöhnlich schließen sich beide Phänomene aus, da im Allgemeinen Magnetfelder paarbrechende Wirkung haben und somit die Cooperpaare zerstören, sodass sich keine Supraleitung ausbilden kann bzw. stark unterdrückt wird (BCS-Theorie). Aufgrund der Antagonie dieser Effekte ([Ginzburg57](#)) sind insbesondere Materialien hoch interessant, die beide Erscheinungen zeigen. In letzter Zeit wurden vermehrt intermetallische Verbindungen entdeckt, in denen Supraleitung dann auftritt, wenn eine magnetische Ordnung mittels eines äußeren Parameters, wie z. B. hydrostatischem Druck, vollständig unterdrückt ist. Diese magnetische Instabilität, an der die magnetische Ordnungstemperatur gerade Null ist und in deren Umgebung teilweise Supraleitung beobachtet wird, nennt man einen Quantenkritischen Punkt.

Diese Situation findet sich beispielsweise im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$. Hier kann man kontinuierlich von dem magnetisch ordnenden CeCu_2Ge_2 ausgehend ($T_N \approx 4.1 \text{ K}$) durch hydrostatischen Druck (bei $p \approx 9 \text{ GPa}$) oder isoelektronische Substitution von Germanium durch Silizium (bei CeCu_2Si_2) die magnetische Ordnung ($T_N \rightarrow 0$) unterdrücken. In der Nähe von $T_N \approx 0$ findet man hier Supraleitung. Kapitel [2.5](#) gibt eine kurze theoretische Einführung der genannten Phänomene.

Die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Supraleitung und Magnetismus erfordert detaillierte Kenntnis der mikroskopischen magnetischen Eigenschaften sowie (der Symmetrie) der beteiligten Ordnungsparameter. Zur Aufklärung magnetischer Strukturen und Anregungen sind Neutronenstreuungsmethoden prädestiniert. Diese sind jedoch nur bedingt geeignet, Supraleitung direkt zu untersuchen. Wechselfeldsuszeptibilität stellt hierfür eine geeignete, etablierte Methode dar. Al-

le benutzten Messmethoden werden in Kapitel 3 soweit vorgestellt, wie es für das Verständnis der späteren Ausführungen in dieser Arbeit nötig ist. Auf einen selbst entwickelten Aufbau zur Optimierung der Suszeptibilitätsmessung wird in Unterkapitel 3.3 eingegangen.

Eigene Neutronenstreuexperimente zur mikroskopischen magnetischen Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ werden in Kapitel 4 ausführlich dargelegt. Dabei werden sowohl der magnetische Propagationsvektor als auch die Intensität magnetischer Überstrukturreflexe illustriert und quantitativ analysiert. Insbesondere erforderte die Aufklärung der komplexen magnetischen Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ die Kombination verschiedener Streumethoden, nämlich Neutronen- und Röntgenbeugung. Auf die Lösung des magnetischen Strukturmodells wird ausführlich eingegangen. Ausgehend davon werden die Messungen an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ mit niedrigem Germaniumgehalt vorgestellt und diskutiert. Diese Messungen sind Grundlagen der Untersuchungen am reinen CeCu_2Si_2 .

Kapitel 5 stellt die Ergebnisse zur Wechselwirkung zwischen Supraleitung und Magnetismus in CeCu_2Si_2 näher vor. Da Neutronen den supraleitenden Zustand nicht direkt detektieren, halfen in-situ Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität während des Neutronenstreuexperiments, eine direkte Korrelation zwischen den supraleitenden und magnetischen Eigenschaften herzustellen. Insbesondere wird die Abhängigkeit der beobachteten Phänomene von einem externen Magnetfeld untersucht. Aufgrund der experimentellen Herausforderungen bei der Untersuchung der magnetischen Struktur in CeCu_2Si_2 wird eine Extrapolation der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ diskutiert.

Die gewonnenen Erkenntnisse und Ergebnisse zu Magnetismus und Supraleitung in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ werden zusammenfassend in Kapitel 6 dargestellt und überblicksartig diskutiert.

2 Theoretische Einführung in die Phänomene

Im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ treten nicht nur klassisches Schwere-Fermionen-Verhalten, sondern auch antiferromagnetische Ordnung und Supraleitung auf. Weiterhin befindet sich CeCu_2Si_2 in der Nähe eines quantenkritischen Punktes ([Gegenwart97](#); [Steglich96a](#); [Gegenwart98](#)), sodass sich eine Vielzahl ungewöhnlicher Phänomene durch Wechselwirkungen dieser Effekte ergibt. In den folgenden Unterkapiteln werden die Eigenschaften der schweren Fermionen sowie des Kondo-Effekts auszugsweise rekapituliert. Auch wird auf einige Auswirkungen eines quantenkritischen Punktes eingegangen. Detailliertere Einführungen sind beispielsweise in den Referenzen ([Jensen91](#); [Kittel99](#); [Mathur98](#); [Nolting86](#); [Rosch99](#); [Stanley99](#); [Vojta01](#); [Zwicknagl02](#); [Kotliar04](#)) zu finden. Für die Theorie der Supraleitung in Schwere-Fermionen-Systemen wird auf die Darlegungen in ([Thalmeier04](#)) verwiesen.

2.1 Elektronen im Festkörper

Die Dispersionsrelation für freie Elektronen ($E = \hbar^2 k^2 / 2m$) wird durch Berücksichtigung der Translationsinvarianz im kristallinen Festkörper modifiziert ([Kittel99](#)). Zum einen ist der Impuls nur noch *modulo* \vec{G} definiert. Das bedeutet, dass Elektronenimpulse lediglich bis auf ganzzahlige Vielfache der Basisvektoren des reziproken Raumes eindeutig sind. Diese Eigenschaft führt beispielsweise zu den so genannten ‘Umklapp-Prozessen’ und damit in Metallen zu einer Abnahme der elektrischen Leitfähigkeit mit steigender Temperatur. Andererseits bilden sich Energiebereiche aus, in denen sich Elektronen aufhalten können

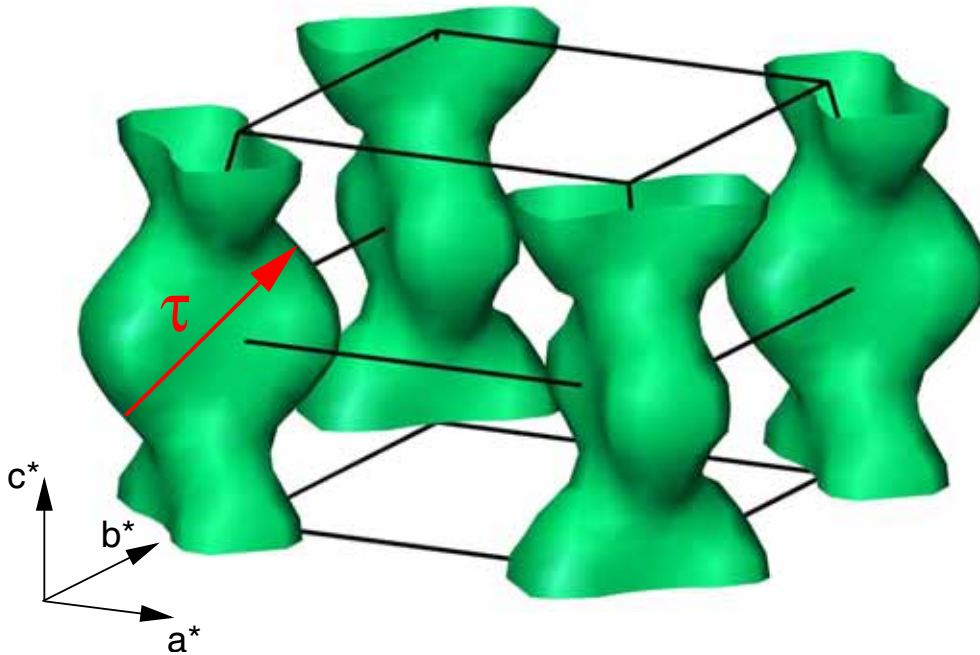


Abbildung 2.1: Teil der Fermi-Fläche der schweren Quasiteilchen in CeCu_2Si_2 mit eingezeichneten Achsen und Nestingvektor $\vec{\tau}$ (Stockert04).

(‘Bänder’) und Energiebereiche, die nicht von Elektronen erreicht werden können (‘Lücken’)¹. Aufgrund des Pauliprinzips können sich nicht alle Elektronen im Grundzustand niedrigster Energie befinden, sondern die Bänder werden (beginnend mit niedrigster Energie) gefüllt. Nach Enrico Fermi wird dieser Zustand des Elektronensystems auch Fermi-Flüssigkeit² genannt. Die höchste Elektronen-Energie im Grundzustand (also bei vernachlässigbarem Einfluss der Temperatur, $T = 0$) wird hierbei auch als Fermi-Energie³ E_F bezeichnet. Betrachtet man im reziproken Raum die Flächen konstanter Elektronen-Energie (d. h. diejenigen Punkte \vec{k} , für die $E(\vec{k})$ konstant ist), so ergeben sich (aufgrund mehrfacher Faltung durch $\vec{k} = \vec{k} \bmod \vec{G}$) üblicherweise sehr bizarr anmutend geformte Flächen. Die Fläche, die durch $E(\vec{k}) = E_F$ definiert wird, nennt man Fermi-Fläche. Existieren nun in einer Fermi-Fläche große parallele Bereiche, die durch denselben reziproken

¹Zum sogenannten Bändermodell, siehe auch (Kittel99).

²Im englischen Sprachraum ist ‘fermi liquid’ verbreitet.

³Die Fermie-Energie kann einige eV betragen, dies entspricht einer Temperatur von ca. 10000 K.

Gittervektor $\vec{\tau}$ getrennt sind, so spricht man von Fermi-Flächen-Nesting oder kurz Fermi-Nesting. Hierbei kann sich eine starke Wechselwirkung zwischen Elektronen mit Impuls $\vec{k} \bmod \vec{G}$ und Elektronen mit Impuls $(\vec{k} + \vec{\tau}) \bmod \vec{G}$ ausbilden, da viele mögliche Wechselwirkungspartner zur Verfügung stehen. Dies führt meist (unterhalb einer charakteristischen Ordnungstemperatur T_N) zur Ausbildung einer magnetischen Ordnung (Spindichtewelle)⁴ mit dem Propagationsvektor $\vec{\tau}$. Da die Bandelektronen (und nicht die Rumpfelektronen) an diesem Prozess beteiligt sind, spricht man auch von delokalisiertem bzw. itinerantem Magnetismus. Bild 2.1 zeigt zur Veranschaulichung einen Teil der Fermifläche von CeCu_2Si_2 mit eingezeichnetem Propagationsvektor $\vec{\tau}$ und Brillouinzone⁵.

2.2 Kondo-Effekt, Kondo-Gitter

Bringt man in ein unmagnetisches Metall wenige magnetische Atome (beispielsweise Eisenatome in eine Goldmatrix) und untersucht den elektrischen Widerstand, so beobachtet man mit sinkender Temperatur einen Anstieg des elektrischen Widerstandes bezogen auf das Verhalten des reinen Metalls. Dieser Effekt tritt schon bei kleinen Konzentrationen des magnetischen Atoms auf und wurde erstmals 1964 von Jun Kondo erklärt und später nach ihm benannt (Kondo64).

Bei hohen Temperaturen wird der elektrische Widerstand des Materials durch Streuung der Elektronen an den Phononen, den Gitterschwingungen der Atomkerne, dominiert. Senkt man nun die Temperatur, so nimmt dieser Effekt ab. Unterhalb einer charakteristischen Temperatur ist die Streuung der Elektronen an den magnetischen Atomen aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung jedoch stärker. Die Leitungselektronen bilden dabei eine Art Wolke um das magnetische Atom und schirmen das magnetische Moment ab. Die Abschirmung hat zur Folge, dass bei tiefen Temperaturen das ganze makroskopische System unmagnetisch wird. Diese Abschirm-Elektronen stehen aber nicht mehr für den Ladungstransport zur Verfügung und verstärken durch ihre Polarisation die Streurate der Elektronen und

⁴In einigen Systemen bildet sich stattdessen eine unmagnetische Ladungsdichtewelle.

⁵Die Brillouinzone ist die erste Wigner-Seitz-Zelle des reziproken Gitters und bildet eine Elementarzelle des reziproken Gitters.

erhöhen hierdurch den elektrischen Widerstand. Somit steigt der elektrische Widerstand, nach Durchlaufen eines Minimums⁶, wieder an. Es ergibt sich eine logarithmische Temperaturabhängigkeit, welche oft als Kriterium für die Festlegung der ‘Kondo-Temperatur’ verwendet wird⁷.

Die Energie, die benötigt wird, um den durch die Abschirmung gebildeten Singlet-Grundzustand aufzubrechen, wird auch als Kondo-Energie bezeichnet:

$$E_K \sim \frac{1}{N(E_F)} e^{-\frac{1}{JN(E_F)}} \quad , \quad (2.1)$$

mit der Spin-Spin-Kopplungsstärke J zwischen einem magnetischen Moment und einem Leitungselektronen-Spin sowie der Zustandsdichte an der Fermienergie $N(E_F)$.

Betrachtet man jetzt Kondo-Systeme mit immer kleinerem Abstand zwischen den magnetischen Atomen (beispielsweise durch Erhöhen der Konzentration der magnetischen Streuzentren), so kommt es zur Überlappung der ‘Abschirmwolken’ der einzelnen magnetischen Atome. In einem solchen Kondo-Gitter werden unterhalb einer bestimmten Temperatur, oftmals als Kohärenz-Temperatur bezeichnet, die magnetischen Streuzentren in die Wellenfunktion der Leitungselektronen integriert. Hierdurch sinkt die Streurate ab, sodass unterhalb der Kohärenz-Temperatur der elektrische Widerstand sinkt und somit ein ausgeprägtes Maximum auftritt. Das Material verhält sich dann wieder wie eine Fermi-Flüssigkeit (mit renormierten Parametern). Eine Einführung in die (komplexe) Theorie ist beispielsweise in Referenz (Coleman06) zu finden.

2.3 RKKY-Wechselwirkung, Leitungsbandpolarisation

Die nach ihren Entdeckern Rudermann, Kittel, Kasuya und Yosida benannte RKKY-Wechselwirkung (Ruderman54; Kasuya56) beschreibt die Wechselwirkung

⁶oftmals Kondo-Minimum genannt

⁷Leider konnte man sich bisher nicht auf *eine* Definition einigen. Manchmal werden auch die Temperatur des Minimums oder (bei Kondo-Gittern) des Maximums des elektrischen Widerstandes als Kondo-Temperatur bezeichnet.

zweier lokalisierter magnetischer Atome über die Polarisation der Leitungselektronen.

Aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung J werden die Leitungselektronen in der Nähe eines magnetischen Momentes (Spins) I_i polarisiert. Dies führt zu einer Überabschirmung des lokalen Momentes und zu einer gedämpften, oszillierenden Leitungsbandpolarisation (siehe auch Abbildung 2.2). Ein zweites magnetisches Moment I_j in einem bestimmten Abstand \vec{r}_{ij} wird sich bevorzugt entgegen der dort vorherrschenden Polarisation orientieren (Nolting86, Kapitel 5.3). Als Kopplungskonstante ergibt sich für den isotropen Fall:

$$J_{RKKY}(r_{ij}) = \frac{J^2 k_F^6}{E_F} \frac{\hbar^2 V^2}{N^2 E_F^2 (2\pi)^3} F(2k_F r_{ij}) \quad , \quad (2.2)$$

$$\text{mit} \quad F(x) = \frac{\sin(x) - x \cos(x)}{x^4} \quad , \quad (2.3)$$

mit dem Fermi-Impuls $k_F = \sqrt{2mE_F/\hbar^2}$, der Anzahldichte der magnetischen Momente N/V sowie der Zustandsdichte an der Fermi-Energie $N(E_F)$. Somit kommt es, abhängig vom Abstand der magnetischen Atome, entweder zu einer ferroma-

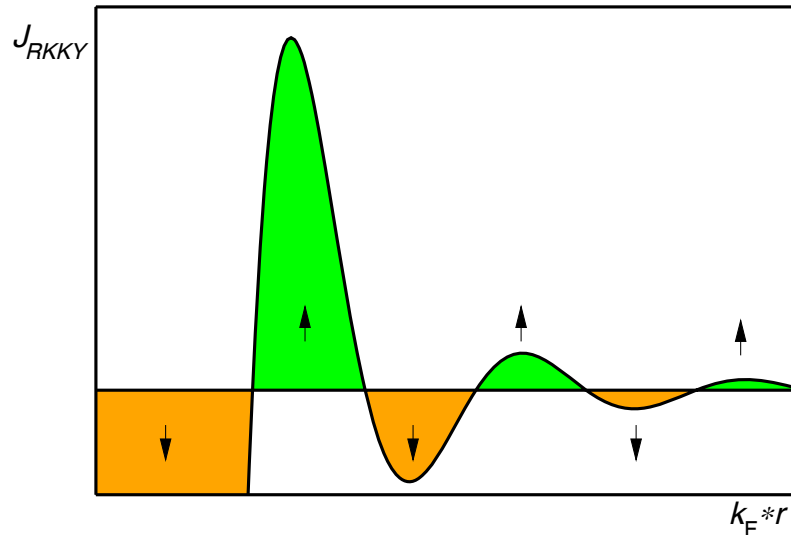


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der RKKY-Kopplungskonstante über dem Abstand der magnetischen Atome. Die resultierende Spinpolarisation ist durch Pfeile angedeutet.