



Doctoral Thesis

Untersuchungen der Temperatur-, Feld- und orientierungsabhängigen Myon Knight-Shift und Depolarisationsrate am einkristallinen Halbmetall Wismut und seinen Legierungen mit Antimon

Author(s):

Lippelt, Erik

Publication Date:

1990

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000592543> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH Nr. 9249

und Bericht des Instituts für Mittelenergiephysik der ETH Zürich

UNTERSUCHUNGEN DER TEMPERATUR-, FELD- UND ORIENTIERUNGSABHÄNGIGEN MYON KNIGHT-SHIFT UND DEPOLARISATIONSRATE AM EINKRISTALLINEN HALBMETALL WISMUT UND SEINEN LEGIERUNGEN MIT ANTIMON

A B H A N D L U N G

zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH

vorgelegt von

Erik LIPPELT

dipl. Phys., TU Braunschweig

geboren am 4.12.1959

in Deutschland

Angenommen auf Antrag von:

Prof. Dr. H.R. Ott Referent

PD Dr. A. Schenck Korreferent

Prof. D. Brinkmann Korreferent

1990

Zusammenfassung

Diese Arbeit berichtet über μ SR-Untersuchungen an Wismut- und BiSb-Legierungseinkristallen, die hauptsächlich mit der stroboskopischen Meßmethode in Magnetfeldern zwischen 0.249T und 0.747T durchgeführt wurden. In kleineren Feldern und in größeren bis 1T wurde die zeitdifferentielle Technik angewendet.

Durch einen systematischen Vergleich der Myon Knight-Shift mit der magnetischen Suszeptibilität wurden Erkenntnisse über die elektronische Struktur des Systems angestrebt; das Auftreten neuer, unerwarteter Phänomene veranlaßte uns dann, diese Effekte genauer zu untersuchen.

Der im – ansonsten halbmetallischen – $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -System auftretende, halbleitende Bereich für $0.07 \leq x \leq 0.22$, der in der – negativen – magnetischen Gesamtsuszeptibilität, χ , deutlich erkennbar ist, spiegelt sich auch im konzentrationsabhängigen Verhalten der – negativen – Myon Knight-Shift, K_μ , wieder, das dem von χ sehr ähnelt. An den halbleitenden Legierungen beobachten wir ein Skalieren der temperaturabhängigen Myon Knight-Shift mit der – nach der Theorie aus vielen, verschiedenen Termen zusammengesetzten – Gesamtsuszeptibilität. Die Auswertungen deuten auf die Fermi-Kontaktwechselwirkung als den zugrundeliegenden Mechanismus hin. Unverstanden ist allerdings, wie der große negative Term in χ der gefüllten Bänder eine große negative Knight-Shift am Myonort erzeugen kann.

Die Interpretation der Messungen der Myon Depolarisationsrate an reinem Wismut ist eng mit der Frage der Lokalisierung und der Diffusion des Myons im rhomboedrischen Bi-Kristallgitter verknüpft. Clusterrechnungen machen eine *nicht* zentrale, bis zu 1Å entlang der c-Achse verschobene Lokalisierung des Myons in den zwei nur leicht (weniger als 3%) verzerrten, möglichen Zwischengitterplätzen (No.1 und No.2) im Wismutgitter wahrscheinlich. Die Auswertung der Meßergebnisse führt zu der Annahme, daß für $T \leq 13\text{K}$ das Myon an den erwähnten nicht zentralen Positionen in den annähernd unverzerrten Plätzen No.2 und/oder No.1 lokalisiert ist und zwischen 85K und 100K ausschließlich nahe dem Zentrum von Platz No.2. Mit dieser, die bisherige deutlich abändernden Interpretation ist es möglich, mit Rechnungen des zweiten Momentes, M_2 , der durch die Bi-Kernmomente am Myonort verursachten Dipolfeldverteilung die Null- und die Transversalfelddaten konsistent zu beschreiben. Im Zwischentemperaturbereich scheint das Myon einen über beide Zwischengitterplätze ausgedehnten Tunnelzustand einzunehmen, oberhalb von 100K

setzt offenbar eine langreichweitige Myondiffusion ein.

In Transversalfeldern zwischen 0.249T und 0.747T zeigt bei $T \leq 13\text{K}$ das orientierungsabhängige zweite Moment eine äußerst ungewöhnliche Feldabhängigkeit, die der theoretisch erwarteten völlig widerspricht: Während in kleinen Feldern die Winkelabhängigkeit von M_2 gut durch den Van Vleck-Grenzfall einer die Präzession der Kernmomente dominierenden Zeeman-Wechselwirkung (großes Feld) beschrieben wird, ähnelt sie in hohen Feldern (bis 1T) der für eine dominierende Quadrupolwechselwirkung berechneten. In dem phänomenologisch eingeführten Modell eines abhängig von der Richtung und der Stärke des äußeren Magnetfeldes gedrehten elektrischen Feldgradienten am Bi-Kern läßt sich dieses Verhalten annähernd reproduzieren. Das deutet auf eine feldabhängige Umverteilung der Ladungen um den Myonplatz hin und ist möglicherweise mit der Anwesenheit des Myons im halbmetallischen ($n_{e,Bi} \approx 10^{-6} \cdot n_{e,Cu}$) Wismutgitter verknüpft. Die dabei ablaufenden mikroskopischen Vorgänge sind allerdings unverstanden. Außerdem scheinen merkwürdigerweise kleinere Felder eine stärkere Auswirkung zu haben als größere, und weitere Messungen zeigen, daß selbst in 130G dieser Effekt noch auftritt.

Die Myon Knight-Shift in Wismut bei $T \leq 13\text{K}$ hängt in Feldern zwischen 0.249T und 0.9T von Termen vierter (!) Ordnung im Richtungskosinus ab und zeigt eine annähernd isotrope Feldabhängigkeit. Eine Beschreibung dieses Verhaltens auf der Basis des de Haas-van Alphen-Effektes gelingt nicht. Da die erwähnte feldabhängige Umverteilung der Ladungen um den Myonplatz wahrscheinlich einen großen Einfluß auf K_μ hat, dürfte erst nach einer mikroskopischen Interpretation dieses Phänomens ein Verständnis der Myon Knight-Shift in Bi möglich sein. Die etwa 10% betragende isotrope Differenz von K_μ in 0.249T und in 0.747T könnte auf einen feldabhängigen Term in der – experimentell feldunabhängigen – Suszeptibilität zurückzuführen sein, dessen Anteil an χ so klein ist, daß seine Änderung mit dem Feld außerhalb der Meßgenauigkeit liegt.

Abstract

In this work μ SR investigations in single crystalline Bismuth and BiSb alloys are reported. Most of the measurements were carried out by means of the stroboscopic method in magnetic fields ranging from 0.249T to 0.747T. In lower fields and in higher fields up to 1T the time differential technique was applied.

By systematically comparing the muon Knight shift with the magnetic susceptibility we intended to gather information about the electronic structure of the system; then the observation of new and unexpected phenomena caused us to investigate these particular effects in more detail.

The semiconducting region showing up in the otherwise semimetallic $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ system for $0.07 \leq x \leq 0.22$, which is clearly reflected in the – negative – total magnetic susceptibility, χ , is also mirrored by the – negative – muon Knight shift, K_μ , by showing a very similar concentration dependence. In the semiconducting alloys we observe a scaling of the temperature dependent muon Knight shift with the total magnetic susceptibility which, as theory suggests, consists of many different terms. The analysis points to the Fermi contact interaction leading to this behaviour. It is not understood, however, how the large contribution of the filled bands to χ can cause a large negative Knight shift at the muon site.

The interpretation of the measured muon depolarisation rates in pure Bismuth is strongly correlated to the problem of the localisation and the diffusion of the muon in the rhombohedral Bi lattice. Cluster calculations indicate a *non* central muon position, which is off center by up to 1\AA along the c-axis in the two possible, only slightly distorted (less than 3%) interstitial sites (No.1 and No.2) of the Bismuth lattice. The analysis of the experimental data leads to the new assumption that for $T \leq 13\text{K}$ the muon is localised at these non central positions in the almost undistorted sites No.2 and/or site No.1 and that between 85K and 100K it is exclusively localised close to the center of site No.2. On the basis of this interpretation it is possible to consistently reproduce the zero field and the transverse field data in calculations of the second moment, M_2 , of the dipolar field distribution at the muon site caused by the Bismuth nuclear moments. In the intermediate temperature range the muon seems to be in a tunneling state which is extended over both interstitial sites. Above 100K the onset of a long range muon diffusion is indicated.

In transverse fields between 0.249T and 0.747T at $T \leq 13\text{K}$ the orientation dependent second moment exhibits an extremely unusual dependence on the external field which is in complete contrast to the one expected theoretically. While in low fields the orientation dependence of M_2 is well described by the Van Vleck limit of a precession of the nuclear moments dominated by the Zeeman interaction; in high fields (up to 1T) it is similar to the angular dependence calculated for a dominating quadrupolar interaction. This behaviour is approximately reproduced in the phenomenological model of an electric field gradient at the Bi nuclei which is rotated, the amount of rotation depending on the direction and strength of the external magnetic field. This points to a field dependent redistribution of the charges around the muon site and is possibly connected with the presence of the muon in the semimetallic ($n_{e,\text{Bi}} \approx 10^{-6} \cdot n_{e,\text{Cu}}$) Bismuth lattice. The involved microscopic processes, however, are not understood and the analysis implies the strange consequence that lower fields cause larger effects than higher fields. Additional measurements show that this phenomenon shows up even in fields of only 130G.

For $T \leq 13\text{K}$ in magnetic fields between 0.249T and 0.9T the muon Knight shift in Bismuth is dependent on fourth (!) order terms in the direction cosine and an almost isotropic field dependence is observed. An attempt to explain this behaviour on the basis of the de Haas-van Alphen effect fails. Probably, the field dependent redistribution of the charges around the muon site mentioned above is strongly affecting K_μ . Therefore, a microscopic interpretation of this phenomenon seems to be necessary before an understanding of the muon Knight shift in Bi is possible. The isotropic difference of about 10% between the K_μ values in 0.249T and those in 0.747T might be caused by a field dependent term in the - experimentally field independent - susceptibility, whose relative contribution to χ is too small to render its field dependent variation detectable.