

Untersuchung magnetischer Korrelationen in Kupraten mit Hilfe von Neutronenstreuexperimenten

Doctoral Thesis

Author(s):

Henggeler, Wolfgang

Publication date:

1996

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-001687250>

Rights / license:

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

DISS. ETH Nr. 11750

**Untersuchung magnetischer Korrelationen in
Kupraten mit Hilfe von Neutronenstreuexperimenten**

ABHANDLUNG
zur Erlangung des Titels
DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH

vorgelegt von
Wolfgang Henggeler
Dipl. Phys. ETH
geboren am 13. April 1967
von Oberägeri (ZG)

Angenommen auf Antrag von
Prof. Dr. A. Furrer, Referent
Prof. Dr. H.-R. Ott, Korreferent

1996

Zusammenfassung

In dieser Arbeit sind die Resultate der im Rahmen einer Doktorarbeit gemachten Untersuchungen an Kuprat-Materialien, welche Seltene-Erd-Ionen enthalten, dargestellt. Als wichtigstes experimentelles Hilfsmittel diente die Neutronenstreuung. Zusätzlich wurden einzelne Aspekte mit Hilfe von μ SR-Experimenten, Suszeptibilitäts- und spezifischen Wärme-Messungen untersucht. Ziel war es einerseits, indirekt via die Kristallfeldwechselwirkung mehr über die elektronische Umgebung der Seltenen-Erd-Ionen zu erfahren. Andererseits wurde versucht, direkte Informationen über die Korrelationen der magnetischen Momente dieser Ionen zu erhalten.

Nach der Einleitung sind im zweiten Kapitel die für diese Arbeit wesentlichen theoretischen Grundlagen dargestellt. Das dritte Kapitel dient der Vorstellung der verwendeten Instrumente.

Im vierten Kapitel werden Kristallfeld (CEF: crystalline electric field)-Anregungen in den $Y_{0.99}Ho_{0.01}Ba_2Cu_3O_{6+x}$ -Substanzen ($0 \leq x \leq 1$) behandelt. Das Ho^{3+} dient als lokale Sonde, um Informationen über die durch die Dotierung von Sauerstoff veränderte Ladungsverteilung in den Kupferoxydebenen zu erhalten. Um einen Einfluss der Ho-Ho-Wechselwirkung auf die CEF-Anregungen zu verhindern, verwendeten wir Proben, welche nur ein Prozent Ho enthielten. Die Experimente zeigen, dass die Umgebung der Ho-Ionen in den Substanzen mittlerer Dotierungsgrade sehr inhomogen ist. Im weiteren beobachtet man eine ungewöhnliche Asymmetrie der Kristallfeldlinien in den hochdotierten Verbindungen, deren möglicher Ursprung diskutiert wird.

Das fünfte Kapitel befasst sich mit den Kristallfeldanregungen in den $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ ($0 \leq x \leq 0.2$)-Verbindungen. Es zeigt sich, dass in den dotierten Substanzen verschiedene Kristallfeldumgebungen von Pr-Ionen koexistieren. Wir versuchen anhand eines Modells, diese verschiedenen Umgebungen zu beschreiben. Im weiteren haben wir auch μ SR-Messungen an einigen der Proben durchgeführt, um mehr über den Einfluss der Sauerstoffreduktion zu erfahren. Schliesslich untersuchen wir in einer dieser Verbindungen ($Pr_{1.86}Ce_{0.14}CuO_4$) die Spin-Austauschkopplungen der Pr-Ionen, welche direkt mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung bestimmt werden können.

Diese Austauschwechselwirkungen zwischen den Momenten der Seltenen-Erd-Ionen werden im sechsten Kapitel auch an den $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ ($x=0,0.13$)-Substanzen untersucht. In der undotierten Probe gelang es, die vollständige Dispersion einer Kristallfeldanregung wie auch der energetisch tiefliegenden Spinwellen zu bestimmen. Die Resultate zeigen einerseits, dass die Kopplungskonstanten zwischen den Momenten

der Nd-Ionen abhängig sind von den Anfangs- und Endzuständen der Kristallfeldanregungen. Andererseits geben sie einen Hinweis darauf, was die mögliche Ursache des grossen linearen Terms in der spezifischen Wärme der dotierten Substanzen sein könnte.

Im siebten Kapitel schliesslich sind die Ergebnisse der Untersuchung der magnetischen Eigenschaften des Hochtemperatur-Supraleiters $\text{Nd}_{1.4}\text{Sr}_{0.4}\text{Ce}_{0.2}\text{CuO}_{4-\delta}$ dargestellt. Wir benutzten neben elastischer Neutronenstreuung auch spezifische Wärme- und μSR -Messungen als experimentelle Hilfsmittel. Als Resultat ergibt sich, dass die Nd-Ionen kurzreichweitig ordnen. Die Neutronenstreuung zeigt direkt, dass die Spins entlang der c-Achsen-Richtung nur schwach korreliert sind. Mit Hilfe der μSR -Experimente konnten wir die Korrelationszeit dieser Spinordnung bestimmen. Im weiteren geben die spezifischen Wärme-Daten einen Hinweis auf die Grössenordnung der Kopplungskonstanten.

Summary

This thesis shows the results of our investigation on cuprate materials containing rare earth ions. The main experimental tools were inelastic and elastic neutron scattering techniques. In some cases we also performed μ SR, susceptibility and specific heat measurements. One aim was to learn more about the crystalline environment of the rare earth ions in these substances via the crystalline electric field (CEF) interaction. Furthermore, we investigated the correlations of the magnetic moments of these ions by a determination of the dispersion of the CEF excitations.

After the introduction, the theory that is essential for the understanding of this work is outlined. The instruments on which the experiments have been performed are presented in the third chapter.

In the fourth chapter we show the measurements of the CEF excitations of Ho^{3+} in $\text{Y}_{0.99}\text{Ho}_{0.01}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. The Ho ions represent ideal local probes to examine changes of the charge distribution in the copper oxide planes upon doping with oxygen. To prevent any influence of the Ho-Ho exchange interaction on the CEF excitations we performed the experiments on substances containing only one percent of Ho. Our results show that for all the intermediately doped compounds the charge distribution is very inhomogeneous. For all the highly doped samples we observe a line asymmetry for which several possible origins are discussed.

In the fifth chapter we examine the Pr^{3+} CEF excitations in the $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4(-\delta)}$ ($0 \leq x \leq 0.2$)-substances. Our results show a coexistence of different environments of the Pr ions in all the doped compounds. We try to describe these inhomogeneities with the help of a model. We used the μ SR-technique on some of these samples in order to learn more about the oxygen reduction process. Finally, we performed inelastic neutron scattering experiments on a $\text{Pr}_{1.86}\text{Ce}_{0.14}\text{CuO}_4$ single crystal, which allowed a direct determination of the coupling constants between the magnetic moments of the Pr ions.

In the sixth chapter we examine the exchange couplings between the moments of the Nd ions in the $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ($x=0,0.13$) compounds. In the undoped substance we were able to determine the complete dispersion of one of the crystal field excitations and of the low-lying spin wave excitations. Our results show that the spin-coupling constants of the Nd ions depend on the initial and final state of a CEF excitation. Moreover our results could give an explanation for the large linear term in the specific heat of the Ce-doped systems .

Finally, in chapter seven, we study the magnetic properties of the high-temperature superconductor $\text{Nd}_{1.4}\text{Sr}_{0.4}\text{Ce}_{0.2}\text{CuO}_{4-\delta}$. Besides neutron scattering we also performed specific heat measurements and μSR experiments. The results indicate that the Nd ions are only short range ordered. Neutron scattering shows that the spins are only weakly correlated along the c axis direction. With the help of μSR experiments it was possible to determine the correlation time of the spin-order. The specific heat measurements give direct information on the size of the coupling constants.