

Tieftemperatur-Magnetisierung unter hydrostatischem Druck

Yoshifumi Tokiwa¹, Philipp Gegenwart, Michael Nicklas und Frank Steglich

Die Magnetisierung ist eine fundamentale physikalische Messgröße, welche Informationen über die Magnetfeldabhängigkeit der freien Energie liefert. Zur Untersuchung quantenkritischen Verhaltens in stark korrelierten Elektronensystemen ist es von besonderer Bedeutung, das Magnetisierungsverhalten bei mK-Temperaturen zu untersuchen, d.h. weit unterhalb des Temperaturbereichs von kommerziell erhältlichen SQUID-Magnetometern. Außerdem reagieren Systeme, welche in der Nähe von Quantenphasenübergängen lokalisiert sind, extrem empfindlich auf das Anlegen von Druck. Daher ist es sehr interessant, die Druckabhängigkeit der Tieftemperatur-Magnetisierung bestimmen zu können. Im Folgenden beschreiben wir die Konstruktion und Funktionsweise eines neuen Magnetometers, welches das Studium der Magnetisierung unter multiextremen Bedingungen erlaubt: bei Temperaturen bis herunter zu 20 mK und Magnetfeldern bis zu 14 T sowie unter hydrostatischem Druck bis zu 1,5 GPa.

Die Magnetisierungsmessungen werden mit einem Faradaymagnetometer durchgeführt, konstruiert nach dem Design von [1]. Fig. 1 zeigt eine schematische Skizze des Ausbaus. Die Probe ist auf den beweglichen Teil eines Plattenkondensators montiert und wird einem Feldgradienten ausgesetzt. Aufgrund ihrer Magnetisierung erfährt

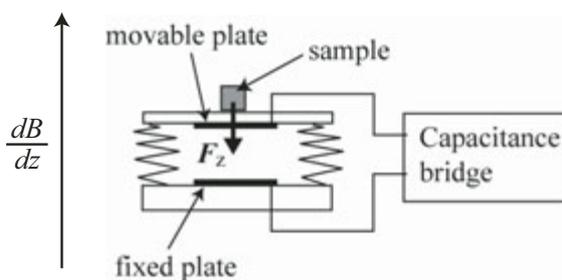


Abb. 1: Messprinzip des Faraday-Magnetometers [1]. Die Probe ist einem Feldgradienten dB/dz ausgesetzt, welcher eine Kraft F_z bewirkt. Diese wird über die Auslenkung eines Plattenkondensators kapazitiv gemessen. Fig. 1: Principle of the magnetization measurement (after [1]). The magnetic force F_z exerted on the sample situated in a spatially varying field is detected as a capacitance change of the parallel-plate variable capacitor whose movable plate is suspended by elastic springs.

sie eine Kraft entlang der z -Richtung, welche durch das Produkt aus Magnetisierung M und Gradientenfeld dB/dz gegeben ist: $F_z = M dB/dz$. Mit Hilfe eines Paares supraleitender Magneten können Gradientenfelder bis zu 10 T/m angelegt werden. Eine Änderung der Probenmagnetisierung bewirkt eine Änderung des Abstands zwischen den Kondensatorplatten, welche durch kapazitive Messtechnik höchstauflösend detektiert wird. Während SQUID-Magnetometer eine supraleitende Abschirmung des Flusstransformators erfordern und daher nicht in sehr großen Magnetfeldern betrieben werden können, Vibrationsmagnetometer nicht für den Einsatz bei sehr tiefen Temperaturen geeignet sind, da die Vibrationen zu deutlichen Aufheizeffekten führen, eignen sich Faraday-Magnetometer ideal für Messungen sowohl bei sehr tiefen T als auch bei sehr hohen B . Das am Institut entwickelte Magnetometer hat eine absolute Empfindlichkeit von 10^{-5} emu, welche an die von SQUID-Magnetometern, kommerziell erhältlich für Temperaturen oberhalb 1,8 K und Felder bis zu 7 T, heranreicht. Die Magnetisierung kleiner Einkristalle mit Massen kleiner als 20 mg kann auf diese Weise ermittelt werden.

Für Magnetisierungsmessungen unter hydrostatischem Druck wird eine miniaturisierte Stempeldruckzelle aus CuBe verwandt. Ihre äußeren und inneren Durchmesser betragen 6 bzw. 2 mm, und sie wiegt lediglich 2,4 g. Die Druckzelle ist klein genug, um sie innerhalb eines kommerziellen SQUID-Magnetometers zu platzieren. Das linke Teilbild von Fig. 2 zeigt eine Photographie ihrer Komponenten. Der Stempel ist aus NiCrAl gefertigt, ein Material welches einen guten Kompromiss zwischen der erforderlichen Härte und einer kleinen Magnetisierung bietet. Daphne-Öl dient als Druckübertragungsmedium. Bei tiefen Temperaturen kann der Druck mit hoher Genauigkeit aus der Differenz der supraleitenden Phasenübergänge zweier Sn-Proben detektiert werden: Eine Sn-Probe ist innerhalb der Druckzelle zusammen mit der zu untersuchenden Probe montiert, die andere ist außerhalb der Druckzelle befestigt. Das rechte Teilbild von Fig. 2 zeigt die Temperaturabhängig-

Low-Temperature Magnetization under Hydrostatic Pressure

Yoshifumi Tokiwa¹, Philipp Gegenwart, Michael Nicklas, and Frank Steglich

The magnetization is a fundamental thermodynamic property that provides information on the magnetic field dependence of the free energy. For the investigation of quantum critical phenomena in strongly correlated electron systems, it is of particular importance to study the magnetization behavior at mK temperatures, i.e. well below the temperature range of commercial SQUID magnetometers. Furthermore, systems close to quantum phase transitions are extremely sensitive to pressure. Thus, it is important to investigate the pressure dependence of the low- T magnetization. In the following, we describe the construction and performance of a new magnetometer which allows the study of the magnetization under multi-extreme conditions, i.e. at temperatures down to 20 mK, in magnetic fields up to 14 T, and under hydrostatic pressure up to 1.5 GPa.

For the magnetization measurements, we use a Faraday magnetometer, which was developed following the design published in [1], and Fig. 1 shows a schematic sketch of the device. The sample is mounted on the movable part of a plate

capacitor and placed inside a field gradient. Due to its magnetization, the sample experiences a force along the z -direction, which is given by the product of the magnetization M and the gradient field dB/dz : $F_z = M dB/dz$. The gradient field is produced by a pair of superconducting magnets, and its maximum value amounts to 10 T/m. A change of the sample magnetization leads to a change of the distance between the two capacitor plates that can be detected with very high resolution by measurement of the capacity.

Whereas SQUID magnetometers cannot be operated in large magnetic fields because a superconducting shield for the flux transformer is required, and vibrating sample magnetometers do not work at very low temperatures as the vibrations lead to substantial heating, such Faraday magnetometers are ideally suited for the operation at both low T and high B . The Faraday magnetometer has a high absolute sensitivity of 10^{-5} emu which is close to that of commercial SQUID magnetometers available for temperatures above 1.8 K and fields below 7 T. With this new set up, it is possible to detect the magnetization of small single crystals with masses less than 20 mg.

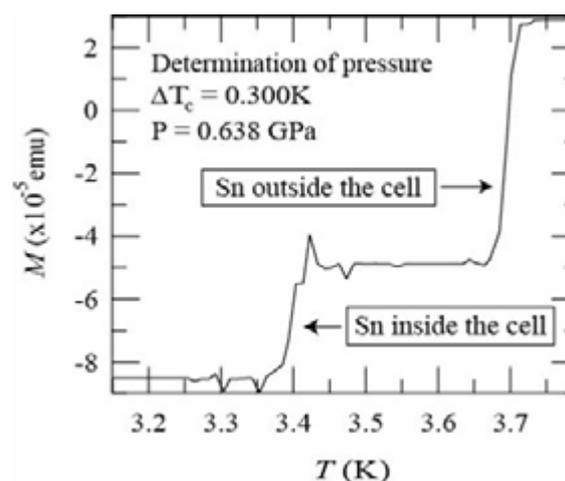


Fig. 2. Left: Photograph of the miniaturized CuBe piston pressure. Right: Temperature dependence of the magnetization of the pressure cell. Arrows indicate superconducting transition temperatures of two pieces of Sn placed outside and inside the cell (at a pressure of 0.638 GPa).

Abb. 2: Links: Photographie der miniaturisierten CuBe-Stempeldruckzelle. Rechts: Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung der Druckzelle. Pfeile zeigen die supraleitenden Übergangstemperaturen zweier Sn-Proben, welche außerhalb bzw. innerhalb der Druckzelle (unter einem Druck von 0,638 GPa) platziert sind.

keit der Magnetisierung, aus welcher der Druck innerhalb der Zelle bestimmt wird. Die kleine Übergangsbreite des supraleitenden Übergangs unter Druck bestätigt die guten hydrostatischen Bedingungen innerhalb der Druckzelle.

Wir diskutieren nun Magnetisierungsmessungen an YbRh_2Si_2 , welche bei sehr tiefen Temperaturen, hohen Magnetfeldern und unter Druck bis zu 1,3 GPa durchgeführt wurden [2]. Ein 6,0 mg schwerer YbRh_2Si_2 -Einkristall wurde innerhalb der Druckzelle montiert und die Magnetisierung von Druckzelle mit Probe mit Hilfe des Faraday-Magnetometers gemessen. Zur Bestimmung der Probenmagnetisierung wurde das Hintergrundsignal der Druckzelle abgezogen. Im gesamten Feld- und Temperaturbereich ist der Beitrag der Probe zur gesamten Magnetisierung größer als 63%.

YbRh_2Si_2 ist eine tetragonale Schwere-Fermionen Verbindung mit einer Kondo-Temperatur von etwa 25 K. Diese befindet sich in unmittelbarer Nähe zu einem quantenkritischen Punkt, welcher durch die Unterdrückung antiferromagnetischer Ordnung bei $T_N = 70$ mK zu Stande kommt. Für weitere Details sei auf die Forschungsberichte zu diesem System verwiesen. Fig. 3 zeigt die Magnetfeldabhängigkeit der Magnetisierung bei Nulldruck sowie unter verschiedenen hydrostatischen Drücken. Die Messungen wurden bei sehr tiefen Temperaturen und für Magnetfelder entlang der leichten magnetischen Richtung, senkrecht zur kristallographischen c -Achse durchgeführt. Bei Nulldruck ändert sich die Steigung von $M(B)$ zweimal: beim kritischen Magnetfeld $B_c = 0,06$ T sowie bei einem charakteristischen Feld $B^* = 10$ T. Das kritische Feld B_c wächst unter Druck (siehe Inset von Fig. 3), im Einklang mit dem bereits beobachteten Anstieg von T_N mit Druck [4]. Das charakteristische Magnetfeld B^* nimmt unter Druck ab, auf 6,2 T und 3,7 T bei 0,64 GPa, bzw. 1,28 GPa. Diese Anomalie zeigt daher eine enorm starke Druckabhängigkeit, welche mit der der Einzelionen-Kondotemperatur $T_K(p)$ skaliert [2]. Hieraus

schließen wir, dass B^* das Magnetfeld ist, bei dem der Kondoeffekt in YbRh_2Si_2 unterdrückt wird, weshalb man für $B > B^*$ auch kein Schwere-Fermionen Verhalten mehr beobachtet [5].

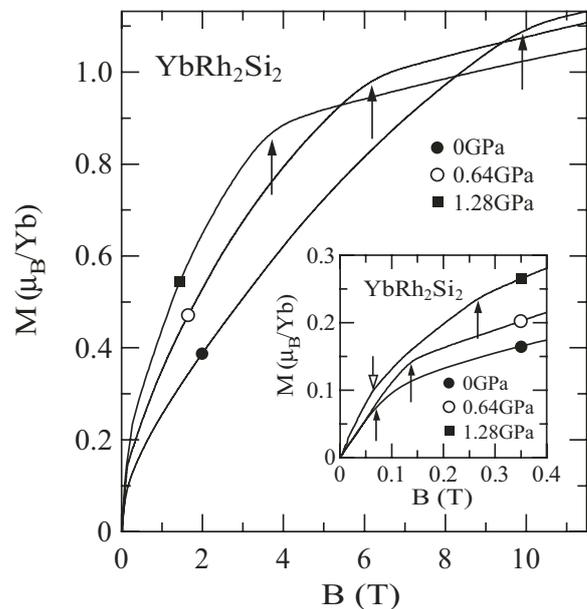


Abb. 3: Magnetfeldabhängigkeit der Magnetisierung von YbRh_2Si_2 bei verschiedenen Drücken von 0, 0,64 und 1,28 GPa, gemessen bei 40, 40 bzw. 60 mK [2]. Die Pfeile zeigen die jeweiligen Werte von B^* (siehe Text) an. Im Inset ist der Niederfeldbereich vergrößert dargestellt. Geschlossene Pfeile bezeichnen das kritische Magnetfeld B_c . Der offene Pfeil zeigt Unterdrückung der zweiten antiferromagnetischen Phase, welche unter hohem Druck bei tiefen Temperaturen auftritt, an.

Fig. 3. Field dependence of the magnetization of YbRh_2Si_2 at differing pressures of 0, 0.64 and 1.28 GPa, measured at 40, 40 and 60 mK, respectively [2]. Arrows indicate respective values of characteristic field B^* (see text). Inset enlarges low-field regime. Filled arrows indicate critical field for the AF order. Open arrow indicates second AF phase transition at low T induced at high pressure.

¹ Derzeitige Adresse: Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, USA

For magnetization measurements under hydrostatic pressure, a miniaturized CuBe-piston pressure cell is used. It has an outer diameter of 6 mm, inner diameter of 2 mm, and its total weight amounts to 2.4 g only. The pressure cell is small enough to be placed inside a commercial SQUID magnetometer. The left part of Fig. 2 shows a photograph of its components. The piston is made from NiCrAl being a good compromise between the required hardness and a small magnetization. Daphne oil serves as pressure transmitting medium. At low temperatures, the pressure can be determined with high accuracy from the difference between the superconducting phase transition temperatures of two Sn samples: one being placed inside the pressure cell together with the sample, the other one outside the pressure cell. The right part of Fig. 2 shows the temperature dependence of the magnetization used to determine the pressure inside the cell. The narrow width of the superconducting transition under pressure confirms good hydrostatic pressure conditions.

We now discuss the low-temperature and high-magnetic-field magnetization data on YbRh_2Si_2 under hydrostatic pressure up to 1.3 GPa [2]. A 6.0 mg YbRh_2Si_2 single crystal has been mounted inside the pressure cell, and the magnetization of the pressure cell with the sample has been measured using the Faraday magnetometer. In order to determine the sample magnetization, the background signal of the pressure cell has been subtracted. In the entire field and temperature range, the contribution of the sample to the total magnetization is larger than 63%.

YbRh_2Si_2 is a tetragonal heavy fermion compound with a Kondo temperature of about 25 K that is located very close to a quantum critical point related to very weak antiferromagnetic (AF) order below $T_N = 70$ mK [3]. For details we refer to the research reports on this system. Fig. 3 shows the

field dependence of the magnetization at ambient and different hydrostatic pressures, detected at very low temperatures for fields applied within the easy magnetic plane, perpendicular to the crystallographic c -direction. At ambient pressure the slope of $M(B)$ changes twice: at 0.06 T, which is the critical field B_c for the suppression of the AF order, as well as at $B^* = 10$ T. The critical field B_c increases under hydrostatic pressure, as expected from the increase of T_N that has been detected in electrical resistivity measurements [4], cf. inset of Fig. 3. The characteristic field B^* decreases under hydrostatic pressure to 6.2 and 3.7 T at 0.64 and 1.28 GPa, respectively. Thus, this anomaly is very sensitive to pressure. Indeed the pressure dependence $B^*(p)$ scales with that of the single-ion Kondo temperature $T_K(p)$ [2]. This indicates that B^* is the field which suppresses the Kondo effect in YbRh_2Si_2 . Consequently, no heavy fermion behavior could be observed anymore for $B > B^*$ [5].

References

- [1] T. Sakakibara, H. Mitamura, T. Tayama, H. Amitsuka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** (1994) 5067.
- [2] Y. Tokiwa, P. Gegenwart, T. Radu, J. Ferstl, G. Sparrn, C. Geibel, F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005) 226402.
- [3] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F.M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparrn, F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 626 (2000).
- [4] S. Mederle, R. Borth, C. Geibel, F.M. Grosche, G. Sparrn, O. Trovarelli, F. Steglich, *J. Phys. Condens. Matter* **14**, 10731 (2002).
- [5] Y. Tokiwa, P. Gegenwart, F. Weickert, R. K uchler, J. Custers, J. Ferstl, C. Geibel, F. Steglich, *J. Magn. Magn. Mater. Suppl.* **272-276**, 87 (2004).

¹ Present address: Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, USA