

Thermotransport-Messungen bei tiefen Temperaturen und im Magnetfeld

Niels Oeschler, Anders Bentien, Sven Friedemann, Stefanie Hartmann, Ulrike Köhler, Silke Paschen¹, Adriana Sanchez, Mikhail Tchernikov² und Frank Steglich

Messungen der thermischen Leitfähigkeit und der Thermokraft liefern wichtige Informationen über Anregungen in Festkörpern. Die thermische Leitfähigkeit wird aus dem Quotienten des Temperaturgradienten, der durch die Wärmezufuhr an einer Seite der Probe entsteht, und der Wärmemenge berechnet. Unterschiedliche Anregungen, die elektronischer, magnetischer oder phononischer Natur sein können, tragen zum Wärmetransport in der Probe bei. Die Thermokraft ergibt sich aus der Spannung, welche durch den Temperaturgradienten induziert wird, und dem Temperaturunterschied an der warmen und der kalten Seite der Probe. Hierbei gehen nur die Anregungen mit elektrischer Ladung ein. In einem magnetischen Feld, das senkrecht zum Wärmestrom angelegt wird, wird eine Spannung senkrecht zum Feld und zum Wärmestrom hervorgerufen. Diesen Effekt bezeichnet man als Nernst-Effekt. Der thermische Hall-Effekt wird als transversale thermische Leitfähigkeit definiert, wobei das Magnetfeld senkrecht zum Wärmestrom steht. Untersuchungen des thermischen Hall-Effekts erlauben geladene von ungeladenen Beiträgen zur thermischen Leitfähigkeit zu trennen.

Die Anschaffung von drei neuen Apparaturen für unterschiedliche Temperatur- und Feldbereiche sowie verschiedene Messmethoden trägt dem gewachsenen Interesse an Messungen der thermischen Leitfähigkeit und Thermokraft Rechnung. In sehr vielen unterschiedlichen Materialklassen werden vermehrt Thermotransport-Messungen durchgeführt. Das Spektrum reicht von korrelierten Halbleitern (siehe „*Sn-NMR Study on the Correlated Semimetals U_2Ru_2Sn and $CeRu_4Sn_6$* “) bis hin zu neuen Käfigverbindungen wie den Clathraten (siehe „*Advances in Clathrate Research*“) und den Skutteruditen (siehe „*Filled Skutterudites — Physics and Chemistry of Iron Antimonides of Alkali, Alkaline-Earth, and Rare-Earth Metals*“) und nicht zuletzt den hochkorrelierten intermetallischen Verbindungen, die Nicht-Fermiflüssigkeitsverhalten oder Schwere-Fermionen-Supraleitung zeigen.

Neben diesen komplexen Apparaturen besteht die Möglichkeit, einfache Messungen an großen Kristallen an den drei PPMS-Systemen der Firma Quantum Design (TTO-Option) durchzuführen. Für Untersuchungen der Wärmeleitfähigkeit im Hochtemperaturbereich bis 700 K ist ein Stickstoff-Kryostat mit der 3ω -Methode ausgestattet [1].

Der Probenhalter für den Temperaturbereich von 30 mK bis 4 K wurde im Vergleich zum vorherigen auf Messungen an sehr kleinen Proben optimiert. Die thermische Leitfähigkeit wird mit einem Heizer und zwei Thermometern bestimmt, wobei die Probe am kalten Silbersteg angebracht und mit 50-100 μ m dicken Goldkabeln mit dem Heizer und den Thermometern verbunden wird. Der Probenhalter ist aus vergoldetem Silber hergestellt. Innerhalb eines Kunststoffrahmens wurde ein Netz aus Nylonfäden gespannt, auf dem der Heizer und die Thermometer zur thermischen Entkopplung geklebt werden. Die durch den Temperaturunterschied induzierte Thermospannung wird von einem SQUID-Sensor ausgelesen. Die thermischen Transportgrößen können in einem Magnetfeld bis 8 T gemessen werden. Außerdem kann der Nernst-Effekt bestimmt werden, wenn die Probe nach einfacher Modifikation des Probenhalters senkrecht zum Magnetfeld eingebaut wird.

Der Einsatz für den Temperaturbereich von 1,5 K bis 300 K ist mit Chromel-Fe-Au-Thermoelementen zur Bestimmung des Temperaturgradienten ausgestattet. Die Thermokraft wird von einem Pikovoltmeter ausgelesen. Auch hier stand die Entwicklung eines Probenhalters für sehr kleine Proben im Vordergrund. Das besondere dieser Apparatur ist der 8 T Split-Coil-Magnet in Kombination mit einer Drehvorrichtung, mit der der Probenhalter im horizontalen Feld gedreht werden kann. Somit lassen sich Hintergrundbeiträge zum Nernst-Effekt und zum thermischen Hall-Effekt durch Messungen bei 0° und 180° bestimmen und in der Auswertung berücksichtigen.

Eine Apparatur zur Messung der thermischen Leitfähigkeit im rotierenden Magnetfeld bei tiefen Temperaturen (40 mK bis 4 K) wird derzeit aufge-

Low-Temperature Thermal Transport Measurements in Magnetic Field

Niels Oeschler, Anders Bentien, Sven Friedemann, Stefanie Hartmann, Ulrike Köhler, Silke Paschen¹, Adriana Sanchez, Mikhail Tchernikov², and Frank Steglich

Thermal conductivity and thermopower measurements provide important information about solid state excitations. The thermal conductivity can be determined by measuring the temperature gradient observed when heat is applied to one side of a sample. Electronic/charge, magnetic or phononic excitations can contribute to the heat flow within the sample. The thermopower can be observed as a voltage difference between two points with a temperature gradient and is an example of a measurement that probes the charge excitations only. Upon applying a magnetic field perpendicular to the direction of the heat flow, a voltage perpendicular to the field and the heat flow is induced. This effect is called the Nernst effect. The thermal Hall effect is defined as transversal thermal conductivity with heat flow perpendicular to the magnetic field. This latter effect allows the separation of charged and non-charged contributions to the thermal conductivity.

The acquisition of three new cryostats for measurements of thermopower and thermal conductivity in different temperature ranges and magnetic fields emphasizes the interest in these quantities. Thermal transport measurements have been applied in different areas ranging from correlated semiconductors (see “*Sn-NMR Study on the Correlated Semimetals U_2Ru_2Sn and $CeRu_4Sn_6$* ”) to cage-compounds like the clathrates (see “*Advances in Clathrate Research*”) and skutterudites (see “*Filled Skutterudites — Physics and Chemistry of Iron Antimonides of Alkali, Alkaline-Earth, and Rare-Earth Metals*”) and finally also to strongly correlated intermetallic compounds such as non-Fermi liquids and heavy-fermion superconductors. Besides the three cryostats it is also possible to perform simple measurements of the thermal conductivity and thermopower on large samples in one of the three Physical Properties Measurement Systems (PPMS) made by Quantum Design utilizing the TTO puck. For high temperature (77 K - 700 K) measurements of the thermal conductivity by means of the 3ω -method a liquid nitrogen cryostat is available [1].

The sample holder for measurements of thermal conductivity in the temperature range from 30 mK to 4 K is optimized for the measurements of very small samples utilizing the one-heater-and-two-thermometers technique. The sample is attached to the cold-finger on one side and thermally coupled to the heater and thermometers with 50 μm - 100 μm gold wires. The sample holder is constructed out of gold-plated silver. For thermal isolation the heater and the thermometers are glued onto a net of nylon threads inside a vespel frame. For thermopower measurements, the small thermally induced voltages will be amplified by a SQUID sensor and then measured. The temperature gradient at the sample is determined by the same thermometers as for the thermal conductivity measurements. Measurements can be performed in magnetic fields up to 8 T. With small modifications of the measurement setup it is also possible to measure the Nernst effect and the thermal Hall effect.

The setup to measure the thermal transport from 1.5 K to 300 K is equipped with chromel-Fe-Au thermocouples to determine the temperature gradient. The thermopower is measured by a picovoltmeter at room temperature. Also, with this setup it is possible to measure very small samples. Special features of this cryostat are the split-coil magnet with horizontal magnetic fields up to 8 T and the rotary stage that allows rotation of the sample holder in the horizontal plane. This is needed for an accurate determination of the Nernst effect and thermal Hall effect, where measurements are performed at 0° and 180° enabling a background subtraction.

A cryostat for thermal conductivity measurements in a rotating magnetic field at low temperatures (40 mK to 4 K) is currently under construction. The magnet is composed of a split-coil and a solenoid magnet with maximum magnetic fields of 4 T horizontally and 0.4 T in vertical direction, respectively. The dewar as well as the magnet is placed on a ball bearing driven by a worm gear that allows rotation of the magnet by up to 180° with very high precision while the sample holder is left

baut. Der Magnet besteht aus einem horizontalen Magneten mit 4 T Maximalfeld und einer weiteren Magnetspule mit senkrechter Orientierung für 0,4 T. Der Magnet und das Dewar werden auf einem Kugellager platziert, das von einem Schneckenrad angetrieben wird. Der Magnet kann in sehr hoher Genauigkeit um 180° um den Probenhalter gedreht werden, wobei sich der Probenhalter nicht bewegt. Somit werden Störungen an der Probe und an der Mischkammer vermieden. Der Probenhalter ist ähnlich wie der oben beschriebene für tiefe Temperaturen aufgebaut. An Hand der Messungen an dieser Apparatur wird die thermische Leitfähigkeit in Abhängigkeit des Winkels zwischen Wärmestrom und Magnetfeld bestimmt. Die thermische Leitfähigkeit im rotierenden Feld ist eine von wenigen Methoden, die erlauben, die Symmetrie der supraleitenden Energielücke von unkonventionellen Supraleitern zu bestimmen. Bisher wurden in anderen Gruppen mit dieser Technik nur Supraleiter mit $T_c > 1,5$ K gemessen [2]. Unser Ziel ist es, die anisotrope Natur der Energielücke von Schwere-Fermionen-Supraleitern mit niedrigerer Sprungtemperatur wie CeCu_2Si_2 zu enthüllen.

Der Schwerpunkt der Thermotransport-Messungen bei tiefen Temperaturen ist die Untersuchung von Schwere-Fermionen-Systemen, die sich entweder in der Nähe einer magnetischen Instabilität befinden oder supraleitende Eigenschaften zeigen. Nur an wenigen Schwere-Fermionen-Systemen

wurden bislang thermische Transport-Messungen durchgeführt, meistens an dotierten Verbindungen mit hohem Restwiderstand. Messungen der thermischen Leitfähigkeit und der Thermokraft an YbRh_2Si_2 , das sich in der Nähe eines quantenkritischen Punkts befindet (Weitere Details in „*Magnetic Properties of the Quantum Critical Point in YbRh_2Si_2* “ und „*Hall-Effect Evolution across a Heavy-Fermion Quantum Critical Point*“), versprechen neue Erkenntnisse über den elektronischen Zustand am quantenkritischen Punkt zu geben. Es wird vermutet, dass die Temperaturabhängigkeit des Nernst-Effekts eine entscheidende Größe zur Unterscheidung der Natur des quantenkritischen Punktes ist. Diese Vorhersage gilt es experimentell zu überprüfen. Es ist darüber hinaus geplant, supraleitende Proben in beiden Tieftemperaturapparaturen zu untersuchen.

Messungen des thermischen Transports und des Nernst-Effekts an thermoelektrischen Substanzen sollen im mittleren Temperaturbereich durchgeführt werden. Stark korrelierte Systeme mit niedriger Ladungsträgerkonzentration wie Kondo-Isolatoren mit Käfig-artiger Kristallstruktur sind gute Kandidaten für solch eine Anwendung.

¹ Derzeitige Adresse: Technische Universität Wien, Wien, Österreich

² Russian Research Centre Kurchatov Institute, Moscow, Russian Federation

undisturbed. The sample holder is basically the same as described for the standard low-temperature setup. These measurements allow the determination of the field-angle dependence of the thermal conductivity at low temperatures. Thermal conductivity as function of magnetic field angle is one of the few methods from which the symmetry of the superconducting energy gap in unconventional superconductors can be determined. Thus far, this method has only been applied to superconductors with $T_c > 1.5$ K [2]. It is our aim to investigate the anisotropy of the energy gap of heavy fermion superconductors at low temperatures, e.g. in CeCu_2Si_2 .

The focus of the low-temperature measurements is to study the thermal transport properties of heavy fermion systems which are located in the vicinity of a magnetic instability or show superconducting properties. So far, such measurements have only been done on a few heavy-fermion systems that are doped to reach the magnetic instability and thus, have large residual resistances. Thermal conductivity and thermopower of YbRh_2Si_2 , which is a stoichiometric system located very close to a quantum critical point, promise to reveal an insight into the electronic state at a quantum critical point (see “*Magnetic Properties of the Quantum Critical Point in YbRh_2Si_2* ” and “*Hall-Effect Evolution*

across a Heavy-Fermion Quantum Critical Point”). For YbRh_2Si_2 , it is speculated that the temperature dependence of the Nernst effect has a decisive ability to distinguish the nature of the quantum critical point. Nernst effect measurements of YbRh_2Si_2 are scheduled in the near future. Superconducting samples are planned to be studied in both low-temperature cryostats.

The main focus for measuring thermal transport properties in the intermediate temperature range is the study of strongly correlated systems with low charge carrier density, e.g. cage structured Kondo insulators which have the potential to become efficient materials for thermoelectric cooling (see “*Advances in Clathrate Research*”).

References

- [1] A. Bentien, PhD thesis, TU Dresden, Shaker-Verlag Aachen (2005).
- [2] K. Izawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 2653.

¹ Present address: Vienna University of Technology, Vienna, Austria

² Russian Research Centre Kurchatov Institute, Moscow, Russian Federation