



## UvA-DARE (Digital Academic Repository)

### Evolution of Magnetism and its Interplay with Superconductivity in Heavy-Fermion $U(\text{Pt},\text{Pd})_3$

Keizer, R.J.

**Publication date**  
1999

[Link to publication](#)

#### **Citation for published version (APA):**

Keizer, R. J. (1999). *Evolution of Magnetism and its Interplay with Superconductivity in Heavy-Fermion  $U(\text{Pt},\text{Pd})_3$* . Universiteit van Amsterdam.

#### **General rights**

It is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), other than for strictly personal, individual use, unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

#### **Disclaimer/Complaints regulations**

If you believe that digital publication of certain material infringes any of your rights or (privacy) interests, please let the Library know, stating your reasons. In case of a legitimate complaint, the Library will make the material inaccessible and/or remove it from the website. Please Ask the Library: <https://uba.uva.nl/en/contact>, or a letter to: Library of the University of Amsterdam, Secretariat, Singel 425, 1012 WP Amsterdam, The Netherlands. You will be contacted as soon as possible.

# Samenvatting

De intermetallische verbinding  $UPt_3$  wordt beschouwd als een modelsysteem voor het bestuderen van onconventionele magnetische en supergeleidende eigenschappen. De onconventionele supergeleidende eigenschappen ( $T_c \approx 0.5$  K) van  $UPt_3$  komen het best tot uiting in het meervoudige supergeleidende fase-diagram in het  $B$ - $T$  vlak. Met name bijzonder is dat voor  $B=0$  twee supergeleidende faseovergangen worden waargenomen, met een splitsing  $\Delta T_c = T_c^+ - T_c^- = 0.055$  K. De magnetische eigenschappen zijn onconventioneel in de zin dat sterke spinfluctuaties verschijnselen coëxisteren met antiferromagnetische ordening ( $T_N \approx 6$  K) met een extreem klein geordend moment ( $m \approx 0.02 \mu_B/U$ -atoom). Door kleine hoeveelheden Pt te vervangen door isoelectronisch Pd kunnen de supergeleidende en magnetische eigenschappen sterk beïnvloed worden. Dit proefschrift behandelt de magnetische eigenschappen van  $U(Pt,Pd)_3$ , zoals die bestudeerd zijn d.m.v. neutronendiffractie en  $\mu$ SR experimenten. Daarnaast zijn de supergeleidende eigenschappen onderzocht d.m.v. (magneto)weerstand, soortelijke warmte, thermische uitzetting en magnetostrictie technieken. Op deze manier is het mogelijk om de samenwerking tussen magnetisme en supergeleiding in het  $U(Pt,Pd)_3$  systeem te bestuderen.

Hoofdstuk 1 geeft een korte algemene inleiding gevolgd door de motivatie van het onderzoek. De experimentele technieken die gebruikt zijn voor het bestuderen van de supergeleidende en magnetische eigenschappen van  $U(Pt,Pd)_3$  worden beschreven in hoofdstuk 2. De technieken die op het Van der Waals-Zeeman Instituut tot het standaard instrumentarium behoren zijn beknopt besproken, terwijl de  $\mu$ SR en neutronendiffractie-techniek in meer detail worden beschreven.

In hoofdstuk 3 presenteren we de theoretische aspecten van ons onderzoek. Dit hoofdstuk bestaat uit twee afzonderlijke delen. In het eerste deel komt de theorie van onconventionele supergeleiding in  $UPt_3$  aan bod, terwijl in het resterende deel de interpretatie van de muon depolarisatiefunctie, zoals gemeten in een  $\mu$ SR experiment beschreven wordt. De bespreking van de theorie van onconventionele supergeleiding in  $UPt_3$  richt zich voornamelijk op Ginzburg-Landau modellen. In deze modellen speelt de symmetrie van de supergeleidende gap een belangrijke rol. De Ginzburg-Landau modellen die in hoofdstuk 3 aan de orde komen zijn: (i) triplet supergeleiding met verwaarloosbare spin-orbit koppeling, beschreven met een 1D representatie, (ii) koppeling van de componenten van een 2D supergeleidende vector ordeparameter met een symmetrie-brekend veld (iii) koppeling van twee bijna ontaarde 1D supergeleidende ordeparameters. In scenario's (i) en (ii) is een symmetrie-brekend veld noodzakelijk om de ontaarding van de spin of de 2D ordeparameter op te heffen. In het geval dat de zwakke antiferromagnetische ordening het symmetrie-brekend veld is voorspelt de theorie:  $\Delta T_c \propto m^2$ .

In hoofdstuk 4 worden de resultaten van neutronendiffractie experimenten aan een reeks  $U(Pt_{1-x}Pd_x)_3$  éénkristallen ( $x \leq 0.05$ ) gepresenteerd. Het "kleine moment" antiferromagnetisme (KMAF) gevonden in zuiver  $UPt_3$  is ook aanwezig voor Pd doping tot ten

minste  $x=0.005$ . Het geordende moment groeit van  $0.018\pm 0.002 \mu_B/\text{U-atom}$  voor zuiver  $\text{UPt}_3$  tot een waarde van  $0.048\pm 0.008 \mu_B/\text{U-atom}$  voor  $x=0.005$ . De Néeltemperatuur,  $T_N$ , is voor het KMAF ongeveer 6 K en varieert niet met de Pd concentratie. De ordeparameter in het kwadraat varieert quasi-lineair met de temperatuur. Een tweede antiferromagnetische fase met veel grotere momenten is gevonden voor  $x\geq 0.01$ . Bij optimale doping ( $x=0.05$ ) bereikt  $T_N$  voor deze fase een maximale waarde van 5.8 K, terwijl het geordend moment  $0.63\pm 0.05 \mu_B/\text{U-atom}$  bedraagt.  $T_N(x)$  voor het “grote moment” antiferromagnetisme (GMAF) volgt een Doniach-type fasediagram. Uit dit fasediagram leiden we af dat de antiferromagnetische instabiliteit voor het GMAF in  $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$  zich bevindt tussen 0.5 en 1 at.%Pd.

In hoofdstuk 5 rapporteren we  $\mu\text{SR}$  experimenten uitgevoerd aan een reeks  $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$  preparaten met  $x\leq 0.05$ . De nulveld muon depolarisatie kan beschreven worden door de Kubo-Toyabe functie voor  $x\leq 0.005$ . De temperatuurafhankelijkheid van de Kubo-Toyabe lijnbreedte  $\Delta_{\text{KT}}(T)$  vertoont geen teken van het “kleine moment” antiferromagnetisme, zoals gevonden in vroegere metingen door anderen. De afwezigheid van het KMAF in het nulveld  $\mu\text{SR}$  signaal vormt een bewijs dat de antiferromagnetische momenten fluctueren met een frequentie  $>10$  MHz. Dus de fluctuaties zijn te snel om te worden waargenomen met  $\mu\text{SR}$ , maar langzamer dan de tijdschaal voor neutronendiffractieexperimenten  $\approx 0.1$  THz. Voor  $0.01\leq x\leq 0.05$  kan de muon depolarisatie in de geordende toestand beschreven worden door twee termen met gelijke amplitude: een exponentieel gedempte oscillatie en een Lorentzische Kubo-Toyabe functie. Deze termen kunnen geassocieerd worden met antiferromagnetische ordening met beduidende momenten. De Knight-shift gemeten aan een  $\text{U}(\text{Pt}_{0.95}\text{Pd}_{0.05})_3$  éénkristal in een magnetisch veld van 0.6 T bestaat in de paramagnetische toestand uit twee signalen voor  $\mathbf{B}\perp\mathbf{c}$ , terwijl slechts een signaal is gevonden voor  $\mathbf{B}\parallel\mathbf{c}$ . De analyse van de Knight shift duidt op de aanwezigheid van één positie waar de muon tot rust komt (0,0,z).

In hoofdstuk 6 bespreken we het effect van Pd doping op het supergeleidende fasediagram van  $\text{UPt}_3$ , zoals gemeten d.m.v. (magneto)weerstand, soortelijk warmte, thermische uitzetting en magnetostrictie. Experimenten aan één- en polykristallijn  $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$  preparaten met  $x\leq 0.006$  laten zien dat de supergeleidende overgangstemperaturen  $T_c^+$  en  $T_c^-$  beide afnemen, terwijl de opsplitsing  $\Delta T_c$  toeneemt met een snelheid van  $0.30\pm 0.02$  K/at.%Pd. De B fase wordt als eerste onderdrukt rond  $x=0.004$ , terwijl de A fase stabiel is tot  $x\approx 0.007$ .  $\Delta T_c(x)$  correleert met de toename van het zwakke moment  $m(x)$  voor Pd doping. Dit vormt aanvullend bewijs voor Ginzburg-Landau modellen met het symmetrie-brekend veld (scenarios (i) en (ii)). Slechts voor kleine waarden van  $\Delta T_c$  ( $\Delta T_c\leq 0.05$  K) vinden we dat  $\Delta T_c\propto m^2(T_c^+)$ , zoals voorspeld. De resultaten voor grotere splitsing duiden op de noodzaak voor een Ginzburg-Landau ontwikkeling met termen hoger dan vierde order. Het tetrakritische punt in het  $B$ - $T$  vlak blijft bestaan tot ten minste  $x=0.002$  voor  $\mathbf{B}\perp\mathbf{c}$ , terwijl het snel onderdrukt wordt voor  $\mathbf{B}\parallel\mathbf{c}$ . Door substitutie van Pt door Pd neemt de stabiliteit van de A en B fasen toe ten koste van de C fase.