



UvA-DARE (Digital Academic Repository)

Ferromagnetism, superconductivity and quantum criticality in uranium intermetallics

Nguyen Thanh, H.

Publication date
2008

[Link to publication](#)

Citation for published version (APA):

Nguyen Thanh, H. (2008). *Ferromagnetism, superconductivity and quantum criticality in uranium intermetallics*. [Thesis, fully internal, 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

Sinds enkele jaren staan kwantum faseovergangen, d.w.z. tweede-orde faseovergangen bij het absolute nulpunt $T = 0$ K, sterk in de belangstelling. In tegenstelling tot klassieke faseovergangen, die gedreven worden door thermische fluctuaties bij eindige temperatuur, worden kwantum faseovergangen gedreven door kwantumfluctuaties en komen tot stand door het veranderen van een niet-thermische *control* parameter, zoals druk, magneetveld of chemische substitutie. Sterk gecorreleerde elektronensystemen, in het bijzonder zware-fermion systemen met de *f*-elektron elementen Ce, Yb of U, zijn zeer geschikt om magnetische kwantum faseovergangen te bestuderen omdat de magnetische ordeningstemperaturen relatief laag zijn en de *exchange* interactie gemakkelijk gevarieerd kan worden onder invloed van een uitwendige niet-thermische *control* parameter. Bij het kwantum-kritisch punt waar de kwantum faseovergang plaats vindt, vertonen deze systemen een nieuwe grondtoestand, de zogeheten niet-Fermi-vloeistof toestand, die sterk afwijkt van Landau's standaard Fermi-vloeistof toestand die gewoonlijk waargenomen wordt in sterk gecorreleerde elektronensystemen. Bovendien heeft het onderzoek aan sterk gecorreleerde elektronensystemen geleid tot de ontdekking van nieuwe supergeleidende toestanden op de rand van antiferro- of ferromagnetische ordening. Deze supergeleidende toestanden kunnen niet verklaard worden met behulp van het standaard Bardeen-Cooper-Schrieffer model voor supergeleiding. Er is thans bewijs voorhanden dat deze ongebruikelijke supergeleiding bewerkstelligd worden door antiferro- of ferromagnetische spinfluctuaties. Van uitzonderlijk belang is dat supergeleiding en ferromagnetisme coëxisteren in de itinerante ferromagneten UGe_2 , $URhGe$, $UCoGe$ (dit proefschrift) en misschien UIr wanneer deze tot vlakbij een kwantum-kritisch punt gebracht worden. Deze ontdekking kwam als een grote verrassing, aangezien supergeleiding en magnetisme elkaar normaliter uitsluiten. Het verklaren van deze nieuwe fenomenen is een grote uitdaging voor natuurkundigen, zowel experimentatoren als theoretici, werkzaam op het gebied van de gecondenseerde materie.

In dit proefschrift worden de resultaten gepresenteerd van een speurtocht naar ferromagnetische kwantum-kritische punten in uranium intermetallische verbindingen met de samenstelling UTX , waarbij T het overgangsmetaal Rh, Ru of Co is en X het p -elektron element Ge of Si. Een van de opvallendste resultaten is dat een nieuwe ferromagnetische supergeleider ontdekt is bij normale druk: UCoGe. Na een korte inleiding (Hoofdstuk 1), een beschrijving van de gebruikte experimentele opstellingen (Hoofdstuk 2) en een introductie tot de relevante theorieën (Hoofdstuk 3), worden in een vijftal hoofdstukken de resultaten van het onderzoek gepresenteerd.

In Hoofdstuk 4 wordt experimenteel bewijs geleverd voor een ferromagnetisch quantum-kritisch punt in de reeks van $URh_{1-x}Ru_xGe$ verbindingen. Door URhGe te legeren met Ru wordt de ferromagnetische ordening (voor $x = 0$ is de Curie temperatuur, T_C , gelijk aan 9.5 K) na een initiële versterking onderdrukt en verdwijnt bij een kritische Ru concentratie $x_{cr} = 0.38$. Bij x_{cr} vertonen de thermische en transporteigenschappen niet-Fermi vloeistof gedrag: (i) de soortelijke warmte $c/T \sim \ln(T/T_0)$ over anderhalve decade in temperatuur, waarbij de γ waarde ($c/T_{0.5K}(x)$) een maximale waarde bereikt; en (ii) de exponent n van de temperatuursafhankelijkheid van de weerstand $\rho \sim T^n$ bereikt een minimale waarde met $n(x) = 1.2$. Het geordende moment m_0 wordt geleidelijk onderdrukt met toenemende x . Deze waarnemingen leveren overtuigend bewijs dat $URh_{1-x}Ru_xGe$ het eerste $5f$ -elektron systeem is dat *getuned* kan worden tot een tweede-orde ferromagnetische kwantum faseovergang bij atmosferische druk door legeren. Onder invloed van een sterk magneetveld ($B < 10$ T) wordt de verbinding met $x_{cr} = 0.38$ weggedreven van het quantum-kritisch punt en wordt de Fermi-vloeistof toestand hersteld ($\rho \sim T^2$).

In Hoofdstuk 5 wordt de magnetische instabiliteit in de $URh_{1-x}Ru_xGe$ reeks verder onderzocht door metingen aan een éénkristal, met samenstelling $x \approx x_{cr} = 0.38$, in sterke magneetvelden. In nul veld, vinden we $\rho \sim T^n$ met $n \approx 1.2$ voor een meetstroom langs de hoofdkristalassen. De soortelijke warmte gedeeld door de temperatuur, c/T , vertoont een (quasi)logaritmische temperatuursafhankelijkheid. De veldafhankelijkheid van de magnetisatie gemeten in magneetvelden tot 50 T bij $T = 4.2$ K toont een sterke anisotropie met de makkelijke richting voor magnetisatie in het bc -vlak en de a -as als harde richting. De soortelijke warmte gemeten in een magneetveld ($B < 12$ T) gericht langs de c -as laat zien dat de $x \approx x_{cr} = 0.38$ verbinding weggedreven kan worden van het kwantum-kritisch punt en dat de Fermi vloeistof toestand hersteld wordt.

In Hoofdstuk 6 wordt de ontwikkeling van ferromagnetisme in polykristallijne preparaten van de $\text{URhGe}_{1-x}\text{Si}$ en $\text{URh}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}$ reeksen onderzocht, door middel van magnetisatie en weerstandsmetingen. Voor alle preparaten werd gevonden dat de weerstand bij lage temperatuur een Fermi-vloeistof gedrag vertoont, $\rho(T) \sim T^2$. Si substitutie op het Ge rooster heeft een geringe invloed op het ferromagnetisme: $T_C = 9.5$ K is constant voor $x \leq 0.2$ en neemt slechts in geringe mate toe tot 10.4 K voor $x = 1$. Echter, in het geval van Co substitutie op het Rh rooster, neemt T_C sterk toe tot 20 K voor $x = 0.6$, maar wordt onderdrukt voor hogere Co concentraties, en bereikt tenslotte een waarde van $T_C = 3$ K voor $x = 1$. Verrassend is dat in de zuivere UCoGe verbinding tevens supergeleiding optreedt met een overgangstemperatuur $T_S = 0.8$ K. Supergeleiding coëxisteert met ferromagnetisme bij atmosferische druk.

Hoofdstuk 7 is gewijd aan een gedegen karakterisatie van de nieuwe ferromagnetische supergeleider UCoGe . De magnetische, thermische en transportdata gemeten aan polykristallijne preparaten leveren bewijs voor de coëxistentie van *bulk* ferromagnetisme en supergeleiding. Magnetisatiemetingen laten zien dat polykristallijn UCoGe een zwakke itinerante ferromagneet is met een Curie temperatuur $T_C = 3$ K en een klein geordend moment van $0.03 \mu_B$. Ferromagnetisme is een *bulk* verschijnsel, hetgeen wordt aangetoond door de grote stap in de thermische uitzettingscoëfficiënt bij T_C en de spontane muonprecessie frekwentie ($\nu = 2$ MHz voor $T \rightarrow 0$) waargenomen beneden T_C in het hele preparaatvolume. Bewijs voor *bulk* supergeleiding wordt geleverd door brede pieken in de soortelijke warmte en de thermische uitzettingscoëfficiënt bij $T_S^{\text{bulk}} = 0.66$ K. Bovendien leveren de thermische uitzettingsmetingen en de μSR data onomstotelijk bewijs dat ferromagnetisme en supergeleiding coëxisteren. De nabijheid van een magnetische instabiliteit, de afwezigheid van de Pauli limiet in het bovenste kritische veld en de defect gevoeligheid van T_S , duiden er alle op dat UCoGe een triplet supergeleider is waarbij de formatie van Cooper paren bewerkstelligd worden door kritische magnetische spinfluctuaties. Verder bewijs hiervoor wordt geleverd door experimenten aan een éénkristal.

Experimenten aan éénkristallijn UCoGe laten zien dat de magnetische en supergeleidende eigenschappen sterk anisotroop zijn. Magnetisatiemetingen tonen aan dat UCoGe een uniaxiale ferromagneet is met het geordende moment $m_0 = 0.06 \mu_B$ gericht langs de orthorhombische c -as. Het bovenste kritische veld $B_{c2}(0)$ bepaald door transportmetingen heeft een waarde $B_{c2}(0) \approx 5$ T voor $B \parallel a, b$ die veel groter is dan de waarde $B_{c2}(0) \approx 0.5$ T

voor $B \parallel c$. De sterke anisotropie in B_{c2} levert steun voor een ongebruikelijke supergeleidende toestand met een axiale supergeleidende *gap*functie met nulpunten langs de richting van het magnetisch moment m_0 . De B_{c2} curve heeft een sterke opwaartse kromming of knik voor $B \parallel b$ of $B \parallel a$, respectievelijk. Dit wijst er op dat UCoGe mogelijk de eerste twee-*band* ferromagnetische supergeleider is.

In Hoofdstuk 8 wordt de onderdrukking gerapporteerd van ferromagnetisme en supergeleiding in een reeks van polykristallijne $\text{UCoGe}_{1-x}\text{Si}_x$ preparaten zoals bepaald door middel van metingen van de magnetisatie, *ac*-susceptibiliteit en elektrische weerstand. Wanneer Si gesubstitueerd wordt voor Ge, worden ferromagnetisme en supergeleiding beide onderdrukt en verdwijnen bij één en dezelfde kritische concentratie $x_{\text{cr}} \approx 0.12$. Bij x_{cr} vertoont de elektrische weerstand een niet-Fermi vloeistof temperatuurgedrag en de exponent $n(x)$ bereikt een minimale waarde $n \approx 1$. De magnetisatie laat zien dat het geordend moment geleidelijk onderdrukt wordt, hetgeen op een tweede-orde ferromagnetische kwantum faseovergang duidt. Supergeleiding is beperkt tot de ferromagnetische fase, hetgeen additioneel bewijs levert dat supergeleiding bewerkstelligd wordt door magnetische interacties. Deze resultaten beelden een unieke mogelijkheid om het ontstaan van supergeleiding bij een ferromagnetisch kwantum-kritisch punt te onderzoeken.