

Kritische Ladungsträgerdynamik am Mott-Übergang

Bachelorarbeit



am Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

vorgelegt von

Jana-Isabelle Polzin

Frankfurt am Main, 19. Februar 2014

Erstgutacher: Prof. Dr. J. Müller

Zweitgutachter: Prof. Dr. M. Lang

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Elektronische Fluktuationen im Festkörper	3
1.1 Fluktuationen im Zeitraum	3
1.2 Autokorrelationsfunktion	4
1.3 Spektrale Leistungsdichte	4
1.4 Die häufigsten Rauscharten	5
1.4.1 Schrotrauschen	5
1.4.2 Thermisches Rauschen	6
1.4.3 $1/f$ -Rauschen	7
1.4.4 Generations-Rekombinationsrauschen	7
1.5 Dutta-Dimon-Horn-Modell	8
2 Organische Ladungstransfersalze	11
2.1 Quasi-zweidimensionale organische Ladungstransfersalze	11
2.2 Physikalische Eigenschaften	13
2.2.1 Phasendiagramm und Phasenübergänge	13
2.2.2 Mott-Metall-Isolator-Übergang	15
2.2.3 Kritischer Punkt	16
2.2.4 Glasartiger Übergang	16
3 Experiment	19
3.1 Messmethoden und Messtechnik	19
3.1.1 Spannungsteiler-Methode	19
3.1.2 Brückenschaltung	20
3.2 Kryostatentechnik	20
3.3 Messung	21
3.3.1 Abkühlvorgang	22
3.3.2 Automatisierung	22
3.3.3 Ablauf der Messung	22
3.3.4 Externe Rauschquellen	25

4 Ergebnisse	27
4.1 Widerstand	27
4.2 Spektrale Leistungsdichte	29
4.3 Frequenzexponent	32
Zusammenfassung und Ausblick	37
Literaturverzeichnis	41

Einleitung

Ein aktuelles Forschungsgebiet der Festkörperphysik, insbesondere der Grundlagenforschung, ist die Untersuchung von Ladungsträgerdynamik in stark korrelierten Systemen, bei denen die Elektron-Elektron-Wechselwirkung eine zentrale Rolle spielt.

Dabei eignen sich organische Ladungsträfersalze sehr gut als Modell-Systeme. In der Familie der κ -(ET)₂X-Salze sind die Systeme aus einem Donator- und Akzeptormolekül aufgebaut, die in Schichten angeordnet sind, in denen es wegen des Überlappens der Molekülorbitale zu einer Delokalisierung der Elektronen kommen. Dies führt zu einem begünstigten Ladungstransport in zwei Raumrichtungen, also einer quasi-zweidimensionalen Struktur. Die Ladungsträfersalze zeichnen sich außerdem durch die hohe Übergangstemperatur zur Supraleitung bei $T_c \approx 12$ K, einen glasartigen Übergang bei Temperaturen oberhalb von $T \approx 70$ K sowie einen Bandbreiten-kontrollierten Mott-Metall-Isolator-Übergang aus. Er trennt die anti-ferromagnetisch isolierende und die metallische Phase voneinander und endet im kritischen Punkt. Sowohl durch Variation des Anions X als auch durch teilweise Deuterierung kann das System an eine andere Stelle im Temperatur-Druck-Phasendiagramm verschoben werden, und zeigt andere physikalische Eigenschaften.

Zur Analyse der Dynamik der Ladungsträger können quasi-zweidimensionale Ladungsträfersalze besonders gut mithilfe der Fluktuationsspektroskopie untersucht werden, da sie ein hohes Rauschniveau aufweisen. Auf diese Weise können wesentliche Beiträge zum elektronischen Transport erkennbar gemacht werden.

Im Rahmen dieses Projektes wird nicht nur das Verhalten von Ladungsträgern in Abhängigkeit von der Temperatur untersucht, sondern vor allem bei verschiedenen Abkühlraten der Probe. Besondere Aufmerksamkeit wird dabei auf die Untersuchung der Ladungsträgerdynamik in der Nähe des kritischen Punktes gerichtet, der durch Variation der Abkühlrate angenähert werden kann. Dazu werden der Ohm'sche Widerstand und die spektrale Leistungsdichte an dem quasi-zweidimensionalen Ladungsträfersalz κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br gemessen.

In dieser Arbeit wird zunächst das Prinzip der Fluktuationsspektroskopie erklärt, da es eine nicht sehr häufig verwendete, aber wie sich zeigen wird, eine sehr aufschlussreiche Methode zur Untersuchung von Festkörpereigenschaften ist. Der Methode liegt die spektroskopische Analyse der elektronischen Fluktuationen (auch häufig als Rauschen bezeichnet) zugrunde. Dafür wird der theoretische Hintergrund dieser Methode erläutert und in diesem Zusammenhang auf die wichtigsten Arten des elektronischen Rauschens eingegangen. Anschließend werden die physikalischen Eigenschaften der quasi-zweidimensionalen organischen Ladungstransfersalze sowie die Messmethoden und der Messaufbau vorgestellt. Schließlich werden die experimentelle Ergebnisse der Messungen diskutiert.

Zusammenfassung und Ausblick

Um die elektronischen Transporteigenschaften an organischen Ladungstransfersalzen untersuchen zu können, wurde der Ohm'sche Widerstand und die spektrale Leistungsdichte der Spannungsfluktuationen mittels Fluktuationsspektroskopie an einer κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br -Probe gemessen. Im Mittelpunkt steht bei dieser Arbeit das Verhalten der Ladungsträger in der Nähe des kritischen Punktes am Ende des Mott-Metall-Isolator-Übergangs, der durch Variation der Abkühlrate angenähert wurde.

Die komplexe Struktur der quasi-zweidimensionalen organischen Ladungstransfersalze ist aus einem elektronenreichen Donatormolekül BEDT-TTF (ET) und einem Anion X aufgebaut. Die leitfähigen ET-Schichten sind durch isolierende Anionenschichten voneinander getrennt, was zu einem begünstigten Ladungstransport in zwei Raumrichtungen führt. In dieser Arbeit erfolgte die Messung des Ohm'schen Widerstandes stets senkrecht zur leitfähigen Schicht. Dabei ließ sich eine starke Abhängigkeit des Widerstandes nicht nur von der Temperatur, sondern auch von der Abkühlrate unterhalb von $T = 70$ K beobachten.

Die organischen Ladungstransfersalze sind außerdem wegen ihres Bandbreiten kontrollierten Mott-Metall-Isolator-Überganges von besonderem Interesse. Ursache für den Phasenübergang sind die starken Elektron-Elektron-Wechselwirkungen. Um den Einfluss der starken Coulomb-Abstoßung zu minimieren, sind die Elektronen an Gitterplätzen lokalisiert, wodurch das System isolierend wird. Solche physikalischen Eigenschaften können sehr gut in einem Temperatur-Druck-Phasendiagramm veranschaulicht werden.

Da diese Systeme ein sehr hohes Rauschniveau aufweisen, ist die Fluktuationsspektroskopie eine sehr aufschlussreiche Methode, um korrelationsgetriebene Eigenschaften zu untersuchen und kann Änderungen in der Ladungsträgerdynamik wesentlich besser darstellen als einfache Widerstandsmessungen. Auf diese Weise konnte die spektrale Leistungsdichte der Widerstandsfluktuationen in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Abkühlraten aufgenommen werden. Über den gesamten Temperaturbereich von 15 bis 300K konnten $1/f$ -artige Spektren beobachtet werden. Die auf den Ohm'schen Widerstand normierte spektrale Leistungsdichte S_R/R^2 hat in der Nähe des kritischen Punktes ein Maximum. Dieses steigt mit Erhöhung der Abkühlrate bis zu einem bestimmten Wert an und fällt dann wieder ab. Die höchste Rauschamplitude liegt bei der Rate

5 K/Min vor. Möglicherweise wurde das System bei der Feinjustierung durch das schnelle Abkühlen im Phasendiagramm über den kritischen Punkt hinaus weiter zu tiefen Drücken verschoben. Außerdem ist ein breites, lokales Maximum bei 100 K zu sehen, das mit dem glasartigen Übergang in Verbindung gebracht werden kann. Aufgrund der hohen Punktdichte ist es möglich den Verlauf von S_R/R^2 sehr detailliert darzustellen und auch kleine Merkmale aufzuzeigen. Besonders hervorzuheben ist dabei die Dopple-Peak Struktur in der Nähe des kritischen Punktes, wo die Rauschamplitude ihren höchsten Wert annimmt.

Aus der Frequenzabhängigkeit der spektralen Leistungsdichte der Widerstandsfluktuationen konnte der Frequenzexponent α bestimmt werden. Bei $T \approx 30 - 40$ K ist bei allen Abkühlraten ein starker Anstieg des Frequenzexponenten von 0,8 auf 1,6 zu erkennen. Die Dynamik der Ladungsträger wird stark verlangsamt, was mit dem kritischen Punkt in Zusammenhang steht. Ein ähnlicher Effekt ist bei dem glasartigen Übergang zu beobachten, der durch die Verlangsamung der Ausrichtung der Ethylen-Endgruppen verursacht wird, an die das Anion koppelt.

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass das *Dutta-Dimon-Horn-Modell* (DDH-Modell) in einem weiten Temperaturbereich anwendbar war, da die gemessenen Daten und Vorhersagen aus dem erweiterten DDH-Modell gut übereinstimmen. Die Temperaturabhängigkeit des Frequenzexponenten $\alpha(T)$ lässt sich demnach aus der spektralen Leistungsdichte korrekt voraussagen und die Verteilung der Anregungsenergien $D(E)$ kann daraus bestimmt werden. Lediglich bei den Temperaturen, bei denen der kritische Punkt vermutet wird, kommt es zu starken Abweichungen, da hier grundlegende Annahmen des DDH-Modells nicht mehr zutreffen.

Letztendlich ist diese Vorgehensweise eine gute Möglichkeit, um an κ -(ET)₂X-Salze durch Variation der Abkühlrate Auswirkungen auf die Dynamik nahe des Mott-Metall-Isolator-Übergang, der schließlich im kritischen Punkt endet, zu studieren.

Um die Systematik hinter der Höhe der Rauschamplitude und des Maximalwertes von S_R/R^2 bei den Abkühlraten, die sich nach vier Messreihen andeutet, weiter zu untersuchen sollte die Probe mit noch schnelleren Raten abgekühlt werden. Wenn die Kurve der spektrale Leistungsdichte der Widerstandsfluktuationen bei schnelleren Abkühlraten als 10 K/Min weiter unterhalb der hier gemessenen 5 K/Min und 10 K/Min Werte liegt, würde sich die Aussage bestätigen lassen, dass das Rauschniveau bei dem Abkühlen mit 5 K/Min am höchsten liegt. Eventuell bietet sich auch eine Messung im Bereich um 5 K/Min herum an, um den maximalen Wert genauer lokalisieren zu können. Nach zusätzlichen Messungen ist eventuell auch eine geeignete Parametrisierung der Abkühlrate möglich.

Des Weiteren sollten die aufgenommenen Daten, besonders in der Nähe des kri-

tischen Punktes, in Hinblick auf das sogenannte „Zweite Spektrum“ analysiert werden um mehr Informationen über die Korrelationen der Fluktuatoren zu erhalten. Das „Zweite Spektrum“ beschreibt das zweite Moment der Autokorrelationsfunktion und gibt die Fluktuationen in der spektralen Leistungsdichte an. Außerdem könnte sich so die Ursache für das starke Abweichen der im Rahmen des DDH-Modells vorhergesagten von den gemessenen Werten für den Frequenzexponenten α finden.

Eine weitere Fragestellung ist die Untersuchung des Einflusses eines äußeren angelegten Magnetfeldes, welches die Spin-Ausrichtung der Ladungsträger beeinflusst und somit die kritischen Eigenschaften verändert könnte.