

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaft

Elektronische und magnetische Phasenseparation in EuB_6

–Fluktuationsspektroskopie und nichtlinearer Transport–

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

von
Adham Amyan
geboren in Deraa

Frankfurt am Main, 2013
(D30)

vom Fachbereich Physik der
Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Joachim Stroth
Gutachter: Prof. Dr. Jens Müller
Gutachter: Prof. Dr. Michael Lang

Diese Arbeit wurde am 15.05.2013 eingereicht.
Datum der Disputation: 09.07.2013.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Grundlagen	5
1.1 Stochastische Prozesse	5
1.2 Transport im Festkörper	7
1.2.1 DC-Leitfähigkeit	8
1.2.2 AC-Leitfähigkeit	9
1.2.3 Hohe-harmonische Signalgenerierung	10
1.3 Signalanalyse	12
1.3.1 Spektrale Leistungsdichte	13
1.3.2 Kreuzspektrum	15
1.4 Rauschen	16
1.4.1 Unkorrelierte Fluktuationen	16
1.4.2 Korrelierte Fluktuationen	17
1.4.2.1 $1/f$ -Rauschen	18
1.4.2.2 Das Hooge-Modell	18
1.4.2.3 Generations-Rekombinations-Rauschen	20
1.4.2.4 Das Dutta-Dimon-Horn-Modell	21
1.5 Dynamik der Fluktuatoren	23
1.5.1 Allgemeine Beschreibung des Rauschspektrums	23
1.5.2 Wechselwirkung zwischen verschiedenen Fluktuatoren	24
1.5.3 Korrelationskoeffizient	25
1.5.4 Das Zweite Spektrum des Rauschens	28
1.5.5 Interpretation des Zweiten Spektrums	30
1.5.5.1 Das Droplet-Modell	30
1.5.5.2 Das Hierarchie-Modell	31
2 Rauschen in perkolierenden Systemen	35
2.1 Mathematische Beschreibung der Perkolationstheorie	36
2.2 Fluktuationsspektroskopie in perkolierenden Systemen	39
3 Experimentelle Methoden	41
3.1 Widerstandsmessungen	41

Inhaltsverzeichnis

3.2	Dynamische Widerstandsmessungen	42
3.2.1	Schaltungskonzepte	42
3.3	Steuerungssoftware für die Messungen (EVE)	47
3.3.1	Die Softwarekomponenten	47
3.3.2	Der Aufbau des Skriptes EVE	48
3.3.3	Die Zukunft von EVE	49
4	Software zur Signal-Analyse	51
4.1	Nyquist-Shannon-Abtasttheorem	51
4.2	Alias-Effekt	53
4.2.1	Antialiasing-Filter	54
4.3	Downsampling	56
4.4	Leck-Effekt	58
4.5	Fourier-Transformation	62
4.5.1	DFT	62
4.5.2	FFT	64
4.6	Kalibrierung	65
4.7	Weitere Möglichkeiten	66
4.7.1	Ein Spektrum	66
4.7.2	Code-Erweiterung	67
4.7.3	Wavelet-Transformation	69
4.8	Anwendungssystem: Nickelate	70
5	Das System EuB₆	73
5.1	Grundlagen	74
5.1.1	Bandstruktur	77
5.1.2	Magnetische Polaronen (MPen)	78
5.1.3	Hall-Effekt und Phasenseparation	82
5.2	Linearer Widerstand	84
5.2.1	Widerstand	84
5.2.2	Magnetowiderstand (MR)	85
5.2.3	Frequenzabhängigkeit	88
5.3	Der dritte harmonische Widerstand	93
5.3.1	Temperaturabhängigkeit	93
5.3.2	Magnetfeldabhängigkeit in der PM-Phase	100
5.4	Fluktuationsspektroskopie	103
5.4.1	Temperaturabhängigkeit bei $H = 0$	105
5.4.2	Im PM Bereich und $H \geq 0$	110
5.5	Weiterführende Messungen	111
5.5.1	Thermische Ausdehnung	111
5.5.2	Mikro-Hall-Magnetometrie	112
5.6	Phasendiagramm	115

6 Zusammenfassung und Ausblick	119
Literaturverzeichnis	125

Einleitung

Der Magnetowiderstand (englisch: magnetoresistance, MR) ist einer der wichtigsten Effekte, der unsere digitale Welt verändert hat. Die Anwendung als magnetoresistive Sensoren bereichert den Markt seit 30 Jahren. Die bekanntesten Effekte sind der anisotrope Magnetowiderstand (englisch: anisotropic magnetoresistance, AMR), der von *William Thomson* 1857 entdeckt wurde und der Riesenmagnetowiderstand (englisch: giant magnetoresistance, GMR), der von *Peter Grünberg* (1988) entdeckt wurde (Nobelpreis für *P. Grünberg* und *A. Fert* 2007). Dank des GMR-Effekts konnten erstmals mit Hilfe von einfachen Schichtstrukturen zuverlässige Sensoren gebaut werden, die später für die hohen Speicherdichten von Computer-Festplatten von großer Bedeutung geworden sind. Man sucht immer noch nach neuen Materialien, die eine starke Kopplung zwischen dem elektrischen Transport und den magnetischen Eigenschaften aufweisen. Je kleiner der Speicherplatz pro Informations-Bit ist, umso kleiner ist das Messsignal und umso größer das elektronische Rauschen. Damit werden immer bessere und leistungsfähigere GMR-Sensoren benötigt.

Diese Sensoren haben nicht nur die Speicherkapazität revolutioniert, sondern haben auch gezeigt, dass sie robuste, zuverlässige und energieeffizient Bauelemente sind. Sie lassen sich zudem mit anderen physikalischen Effekten kombinieren und so für viele Anwendungen einsetzen. Somit stellen diese Sensoren eine wichtige Komponenten der modernen Informationstechnologie dar.

Der Magnetowiderstand zeigt immer wieder, wie vielfältig er sein kann und damit ist er ein wichtiger Forschungsbereich der modernen Festkörperphysik. Insbesondere versucht man die Mechanismen zu verstehen, die für Effekte wie AMR, GMR und CMR (englisch: colossal magnetoresistance) verantwortlich sein könnten. Im Allgemeinen kann man den MR durch die Wirkung der Lorentzkraft erklären, allerdings zeigen viele magnetische Systeme ein komplizierteres Verhalten. Die Änderung des Widerstands in CMR-Systemen kann extrem hohe negative Werte erreichen. *Xiong et al.* haben von einem dünnen $\text{Nd}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ -Film mit $-\Delta R/R_0 > 99.99\%$ berichtet [1]. Diesen Effekt findet man nicht nur in magnetischen Materialien. Andere Gruppen haben Magnetwiderstände in nicht-magnetischen Systemen wie Silber-Chalkogenide [2] und Indiumantimonid [3] entdeckt. Schließlich hat man einen großen Magnetowiderstand in dotiertem Silizium [4, 5] gefunden. Zur Erklärung dieser Effekte müssen Spinfluktuationen und/oder Lokalisierung der Elektronen berücksichtigt werden.

Einleitung

Die bekanntesten Materialien, die den CMR-Effekt aufweisen, sind die Seltene-Erde-Manganate. Sie nehmen eine Schlüsselrolle für das Verständnis des CMR-Effekts ein. Die erste Messung eines negativen CMR stammt von *Helmolt et al.* (1993) [6]. Dort wurde in einem dünnen magnetischen $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$ -Film eine Widerstandsänderung von $-\Delta R/R \approx 60\%$ beobachtet.

1961 wurde der erste ferromagnetische Isolator EuO von *Matthias et al.* entdeckt [7]. Eine neue Klasse von Eu-Chalkogeniden (O, S, Se, Te) zeigte ähnliche Eigenschaften und stellte damals eine Herausforderung für die Theorie dar. Alle diese Materialien besitzen eine einfache NaCl-Struktur. Verantwortlich für den Magnetismus ist die teilweise gefüllte $4f$ -Schale von Eu^{2+} im Grundzustand $^8S_{7/2}$. 1970 konnte *Kasuya* eine Erklärung für den Ferromagnetismus liefern [8]. Die Idee war, dass eine virtuelle Anregung von $4f$ -Elektronen der Europium-Ionen durch den erweiterten d -Zustand erlaubt wird, sodass sie mit der Wellenfunktion der Nächste-Nachbar- $4f$ -Elektronen überlappen können. Dieser Vorgang führt zur Entstehung von ferromagnetischen Clustern (sogenannte magnetischen Polaronen). Die Arbeit von *Holtzberg et al.* 1964 hat diese Behauptung experimentell bestätigt [9].

In dieser Arbeit interessieren wir uns für den kolossalen Magnetowiderstand (CMR) in EuB_6 . Der letzte Forschungsstand zeigt, dass EuB_6 ein Semimetall ist [10] und einen Metall-Isolator-Übergang bei $T_{\text{MI}} = 15.6$ K zeigt, der mit einer magnetischen Anomalie verknüpft ist. Zusätzlich existiert ein magnetischer Übergang bei $T_{\text{C}} = 12.6$ K. Es wird vermutet, dass man durch ein Modell magnetischer Polaronen in der Lage ist, die Existenz der beiden Übergänge zu erklären. *Süllow et al.* haben T_{MI} einem Metall-Isolator-Übergang zugeschrieben, der durch Überlappung der magnetischen Polaronen zu Stande kommt. Die Separation der Ladungsdelokalisierung und der magnetischen Ordnung im Volumen bei T_{C} entspricht einer elektronischen und magnetischen Phasenseparation [11]. Aufgrund der isotropen magnetischen und der einfachen Gitterstruktur kommt EuB_6 die Rolle eines Modellsystems zu, an dem der Einfluss des Magnetismus auf die elektronischen Eigenschaften grundlegend untersucht werden kann.

Einen wichtigen Hinweis für Phasenseparation in EuB_6 liefern neuere Hall-Effekt-Messungen von *Zhang et al.*, die eine deutliche Änderung der Steigung des Hall-Widerstands in der paramagnetischen Phase zeigen. Diese Untersuchung zeigt einen Metall-Semimetall-Übergang im Temperatur-Magnetfeld-Phasendiagramm [12]. Die Autoren vermuten, dass der Übergang durch Überlappung von magnetischen Polaronen zustande kommt, die mit zunehmenden Magnetfeld größer beziehungsweise zahlreicher werden. Ähnlich wie bei dem Eintritt in die ferromagnetische Phase bei $B = 0$ wird hier eine Delokalisierung der Löcher erwartet. Außerdem wurde vorgeschlagen, dass dieser Übergang von perkolativer Art ist.

Mittels Messungen des nichtlinearen elektrischen Transports und Fluktuationsspektroskopie wurde in dieser Arbeit das System EuB_6 untersucht, um festzustel-

len, ob die Übergänge eine perkolative Natur haben und ob ein zunehmendes Magnetfeld die gleiche Wirkung auf die magnetischen Polaronen hat wie abnehmende Temperatur.

Ein wichtiger Teil dieser Arbeit war die Weiterentwicklung von Messmethoden. Insbesondere ist die Aufnahme der Daten mittels einer schnellen Datenerfassungskarte und die Berechnung von Rauschspektren mit Hilfe einer selbst geschriebenen Software von Bedeutung. Die Software basiert auf der Skript-Sprache *Python*. Diese Vorarbeit ist wichtig für die Analyse des sogenannten Zweiten Spektrums. Es beschreibt die zeitliche Entwicklung der eigentlichen Fluktuationsspektren und liefert wertvolle Informationen über etwaige räumliche Korrelationen der elektronischen Fluktuationen. Ein wichtiger Vorteil dieser Software sind die Erweiterungen, die man hinzufügen kann. Zum Beispiel wurden die Messungen an Test-Systemen (Nickelate) voll automatisiert durchgeführt.

Am Anfang dieser Arbeit wird eine Einführung in elektronische Transportprozesse in Festkörper gegeben, sowie die wichtigsten Begriffe der Signalanalyse vorgestellt (Kapitel 1.1). In Kapitel 2 wird eine Einführung in die Perkolationstheorie, insbesondere die der sogenannten „zufälligen Netzwerke“ und ihr Einfluss auf das Rauschen des Systems gegeben. In Kapitel 3 werden alle innerhalb dieser Doktorarbeit verwendeten Messmethoden vorgestellt. Die Theorie der Signalanalyse und die entwickelte Software werden knapp in Kapitel 4 vorgestellt. Kapitel 5 stellt den Hauptanteil der Arbeit dar. In diesem Kapitel werden Ergebnisse und Diskussionen zum System EuB_6 zusammengefasst.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Die Schwerpunkte dieser Arbeit sind elektrische, stationäre und zeitaufgelöste Transportmessungen an EuB_6 sowie die Weiterentwicklung von Messmethoden und Analyseverfahren der Fluktuationsspektroskopie. Durch die Verwendung von modernen Computern und Datenerfassungskarten konnten die Messmethoden effektiver eingesetzt werden.

Die ersten beiden Kapitel stellen die Grundlagen dar, die für diese Arbeit von Bedeutung sind. Der erste Teil dieser Arbeit wurde der Weiterentwicklung der bereits bekannten Messmethoden unter Verwendung einer schnellen Datenerfassungskarte gewidmet. Im Gegensatz zur Verwendung eines Signalanalysators bietet die Karte die Möglichkeit, auf die Rohdaten im Zeitraum zuzugreifen und sie anschließend mit einer selbst programmierten Software auszuwerten. Die technischen Methoden und der Aufbau der Software wurden in den Kapiteln 3 und 4 vorgestellt. Durch das Ersetzen des Signalanalysators kann bis zu 50% der Messzeit eingespart werden. Durch die Code-Erweiterung (siehe Abschnitt 4.7.2) kann bereits nach zwei hintereinander gemessenen Spektren vorläufig bei tiefen Frequenzen ausgewertet und somit frühzeitig entschieden werden, ob eine längere Messzeit aussichtsreich ist. Außerdem wird durch Verwendung der Code-Erweiterung eine sehr viel höhere Spektrendichte (Anzahl von Messpunkten) erreicht. Da im Gegensatz zum Signalanalysator alle gemessenen Spektren gespeichert werden, können in jeder Messung die Spektren auf ihre Korrelation (Korrelationskoeffizient und Zweites Spektrum) hin untersucht werden, ohne zusätzliche Messzeit zu benötigen. In Abschnitt 4.8 befindet sich eine Demonstration der neu eingeführten Messmethoden, der automatisierten Messroutinen und der zugehörigen Auswertung.

Der zweite Teil dieser Arbeit befasst sich mit den elektrischen Transporteigenschaften von EuB_6 und dem Verständnis der Kopplung zwischen Ladungs- und magnetischen Freiheitsgraden. Im fünften Kapitel werden die durchgeführten Messungen dargestellt. Mittels Widerstands- und nichtlinearer Transportmessungen sowie Fluktuationsspektroskopie wurden Hypothesen von anderen Wissenschaftler systematisch verifiziert, sowie neue, weiterführende Erkenntnisse gewonnen. Im Folgenden sind die Ergebnisse zusammengefasst.

Im Zentrum aktueller „Spintronik“-Forschung steht die Untersuchung des CMR-Effektes. Aufgrund seiner kubischen Gittersymmetrie eignet sich EuB_6 als Modellsystem, um die dem stark negativen MR-Effekt zugrunde liegenden Mechanis-

6 Zusammenfassung und Ausblick

men zu untersuchen.

Der Widerstand von EuB_6 nimmt mit sinkender Temperatur bis zu einem Minimum bei $T^* = 35$ K ab, um anschließend bis zum Erreichen eines Maximums nahe $T_{\text{MI}} = 15.5$ K anzusteigen. Unterhalb des Maximums fällt der Widerstand über eine Schulter bei $T_{\text{C}} = 12.5$ K rasch ab. Das Material weist eine niedrige Ladungsträgerdichte auf und ist damit ein Semimetall. Magnetische Messungen (z.B. Neutronenstreuung) zeigen, dass EuB_6 unterhalb von T_{C} ferromagnetisch geordnet ist. Zwischen T_{MI} und T_{C} zeigen die Neutronendaten allerdings kein klares magnetisches Signal. In diesem Bereich wird vermutet, dass es in EuB_6 zu einer nanoskaligen magnetischen Phasenseparation durch die Bildung von magnetischen Polaronen mit einhergehender Lokalisierung der Löcher kommt. Aus Messungen der spezifischen Wärme wurde abgeschätzt, dass beim Abkühlen bei T_{MI} bereits 15% der magnetischen Eu-Momente ferromagnetisch ordnen. Ferner wird angenommen, dass die Größe und/oder Anzahl der MPen mit abnehmender Temperatur zunimmt und es bei T_{MI} zu einem Überlapp der MPen kommt. D.h. bei T_{MI} wird die Perkolationschwelle erreicht und ein ferromagnetischer Polaronenpfad gebildet, in dem die Löcher wieder delokalisiert werden. Die Ausbildung des leitfähigeren FM Polaronenpfads in der schlechter leitfähigen PM Umgebung führt zum beobachteten Abfall des Widerstands unterhalb von T_{MI} . Das Modell ist schematisch in Abbildung 6.0.1 dargestellt.

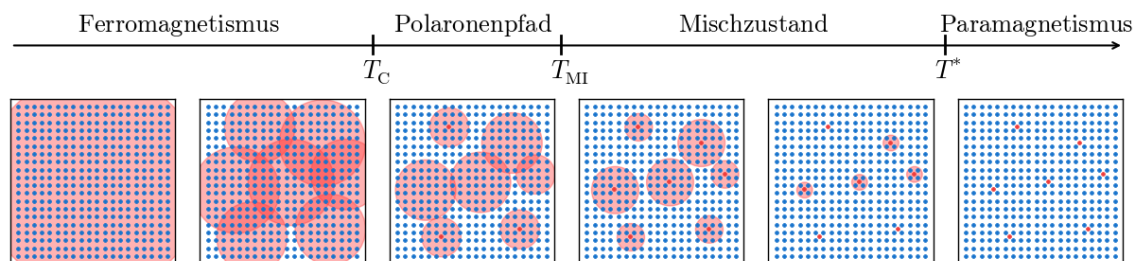


Abbildung 6.0.1: Schematische Darstellung der Entstehung von MPen bei verschiedenen Temperaturen in EuB_6 . Die Punkte stellen die Gitterpositionen der Eu-Ionen dar. Die roten Punkte markieren die Spins der unterhalb von T^* lokalisierten Löcher, während die blauen Punkte für die Spins der Eu^{2+} -Ionen stehen. Im Bereich der roten Kreise erfolgt unterhalb von T^* eine ferromagnetische Polarisierung der lokalen Spins aufgrund der Lokalisierung der Löcher. Unterhalb von T_{MI} erfolgt durch Überlappung der MPen eine Delokalisierung der Löcher innerhalb des Polaronenpfads. Bei tiefen Temperaturen unterhalb von T_{C} tritt der ferromagnetische Übergang auf.

Neuere Hall-Effekt-Messungen im paramagnetischen Bereich zwischen 20 K und

60 K zeigen eine deutliche Änderung der Steigung des Hall-Widerstands bei Erreichen einer kritischen Magnetisierung in der Probe. Im Rahmen des MPen-Modells wird angenommen, dass auch durch Anlegen eines externen Magnetfelds die Größe der MPen zunimmt. Demzufolge wird die Überlappung der MPen bzw. das Überschreiten der Perkolationschwelle in externen Magnetfeldern bereits bei höheren Temperaturen erreicht. Dieser Übergang stellt somit eine Trennlinie zwischen der semimetallischen Phase (Lokalisierung von MPen) und der metallischen Phase (Delokalisierung von MPen) dar.

Direkte experimentelle Hinweise für die Phasenseparation sowie das Auftreten von Perkolationsaus Transportmessungen fehlten bisher. In dieser Arbeit wurden daher systematisch die elektrischen Transporteigenschaften des Systems in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Magnetfeld untersucht. Mittels Fluktuationspektroskopie konnte erstmals ein direkter Hinweis auf perkolatives Verhalten in den Transporteigenschaften beobachtet werden. Ein starkes nichtlineares Transportsignal (dritter harmonischer Widerstand, DHW) im Bereich von T_{MI} und T_{C} ist eine Signatur einer räumlich inhomogenen Stromverteilung auf der Mikroskala und ein weiterer deutlicher Hinweis auf magnetisch induzierte elektronische Phasenseparation. Insbesondere tritt nichtlinearer Transport bei $H = 0$ im FM Bereich auf und kann im PM-Bereich bei $T > T_{\text{MI}}$ durch externe Magnetfelder induziert werden. Die Ergebnisse dieser Arbeit sind im Folgenden kurz zusammengefasst.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Magnetowiderstand als Funktion der Temperatur in kleinen externen Magnetfeldern zwischen 1 mT und 700 mT untersucht. In höheren Magnetfeldern zeigen die durchgeführten Messungen in guter Übereinstimmung mit der Literatur einen negativen CMR-Effekt. Unterhalb von $B \approx 12$ mT zeigt EuB_6 zwischen T_{MI} und T_{C} allerdings einen positiven MR.

Eine mögliche Erklärung für den beobachteten positiven CMR-Effekt stellt die Annahme dar, dass die Wirkung der im Magnetfeld in Größe oder Anzahl wachsenden MPen unterschiedlich ist, je nachdem ob die MPen am Polaronenpfad beteiligt oder unbeteiligt sind. MPen, die sich innerhalb isolierter Inseln oder „*dead end*“-Gebieten befinden, erhöhen den Widerstand aufgrund abnehmender Beweglichkeit und/oder der Zunahme des Streuquerschnittes mit Elektronen bei zunehmendem externem Magnetfeld bis 12 mT. Folgt man dieser Annahme, ist eine Zunahme der Inhomogenitäten und somit eine größere Amplitude des DHW zu erwarten.

Allerdings führt eine weitere Erhöhung des externen Magnetfelds zu einer verstärkten Ausrichtung aller magnetischen Momente in Richtung des externen Felds und folglich zu einer Erhöhung der Beweglichkeit der Polaronen (MP-Delokalisierung). Dieser Effekt führt zu dem beobachteten negativen CMR-Effekt und einer geringeren Inhomogenität der Probe.

Im allgemeinen wird erwartet, dass sich alle Widerstände frequenzunabhängig verhalten, solange die Anregungsfrequenz des Stroms kleiner als 1 kHz ist. Nur ober-

6 Zusammenfassung und Ausblick

halb dieser Frequenz sind zusätzliche Effekte wie der *Skin*-Effekt oder der *Proximity*-Effekt zu erwarten. Dagegen konnte im Rahmen dieser Arbeit bereits bei niedrigen Frequenzen eine starke Frequenzabhängigkeit des Widerstands (R_x und R_y) unterhalb von T_{MI} beobachtet werden.

Um eine Frequenzabhängigkeit des Widerstands zu erklären, ist es plausibel anzunehmen, dass die MPen elektrisch geladen sind beziehungsweise eine elektrische Polarisierung aufweisen. Die durchgeführte Analyse der Daten zeigte, dass die Abhängigkeit des Widerstands von der Frequenz durch ein Potenzgesetz gut beschrieben wird. Dies ist ein weiterer Hinweis auf das Vorliegen von Perkolations in EuB_6 . Durch Annahme unterschiedlicher Wechselwirkungsstärken zwischen den einzelnen MPen aufgrund unterschiedlicher Polaronengrößen könnte die beobachtete Frequenzabhängigkeit erklärt werden.

In perkolativen Systemen liefert der DHW (nichtlinearer Transport) Hinweise auf Inhomogenitäten in der mikroskopischen Stromverteilung. Mit Hilfe von diesen Messungen kann das Verhalten der MPen (leitende Cluster) indirekt in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Magnetfeld untersucht werden.

Messungen des DHW als Funktion der Temperatur zeigen Maxima bei T_{MI} und T_{C} . Der normierte DHW $V_{3\omega}/I_0^3 R^2$ zeigt ebenfalls beide Übergänge und erlaubt einen direkten Vergleich mit der normierten spektralen Leistungsdichte. Besonders informativ ist die Abhängigkeit des DHW von Temperatur und externem Magnetfeld.

Die Messungen sind sensitiv auf kleine Änderungen des Magnetfeldes. Während sich der Metall-Isolator-Übergang T_{MI} mit zunehmenden Magnetfeldern zu höheren Temperaturen verschiebt, nimmt die DHW-Amplitude ab, bis der Übergang ab ca. 90 mT nicht mehr in den Messungen nachweisbar ist. Bemerkenswerterweise verschwindet das Maximum im Widerstand nahe T_{MI} ebenfalls bei Erreichen von ca. 90 mT. Folgt man dem Perkolationsansatz (Perkolationschwelle bei T_{MI}) kann sich demzufolge nur unterhalb von ungefähr 90 mT ein Polaronenpfad ausbilden. In höheren Magnetfeldern werden die Polaronen größer aufgrund der zunehmenden Polarisierung der umgebenden magnetischen Momente und ihre Abgrenzung von der Umgebung wird zunehmend „weicher“. Unabhängig von der Existenz eines Polaronenpfades steigt daher die Beweglichkeit der Löcher (Polaronen), während der Widerstand in zunehmendem Magnetfeld abnimmt.

Die Signatur des magnetischen Übergangs bei T_{C} im nichtlinearen Transport ist ebenfalls sensitiv auf kleine Magnetfelder und verschwindet schlagartig beim Überschreiten eines Magnetfeldes von circa 12 mT. Bemerkenswerterweise verschwindet das Signal des DHW bei dem gleichen Magnetfeld, bei dem der CMR-Effekt sein Vorzeichen von positiv zu negativ wechselt. Eine Zunahme der Inhomogenitäten in kleinen externen Magnetfeldern, sowie das Verschwinden der Inhomogenitäten in höheren Magnetfeldern passen gut zu der vorgeschlagenen Erklärung des positiven

und negativen CMR-Effekts.

Durch Wahl einer passenden Probengeometrie konnte mit Hilfe des DHW magnetische Inhomogenitäten auch oberhalb von 16 K durch Anlegen externer Magnetfelder nachgewiesen werden. Dazu wurde der MR und der DHW bei konstanten Temperaturen als Funktion des Magnetfeldes gemessen. Jede DHW-Messung zeigt ein Maximum, genau dort wo der bereits in der Literatur beschriebene Semimetall-Metall-Übergang auftritt, was von einem Minimum in $d\rho/dT$ begleitet wird.

Um die perkolative Natur der Übergänge detaillierter zu untersuchen wurden zum ersten mal Messungen der Fluktationsspektroskopie an EuB_6 durchgeführt. Wie der DHW ist die Fluktationsspektroskopie besonders sensitiv auf Inhomogenitäten im elektrischen Transport und damit eine weitere geeignete Methode, um perkolative Phasenübergänge zu untersuchen. In perkolativen Systemen liefert die normierte spektrale Leistungsdichte analog zum DHW Hinweise auf Inhomogenitäten in der mikroskopischen Stromverteilung.

In dieser Arbeit wurden daher elektrische Widerstandsfluktuationen ohne externes Magnetfeld zwischen 5 K und 100 K sowie in Anwesenheit eines Magnetfeldes zwischen 18 K und 32 K gemessen.

Im Temperaturbereich von 100 K bis 35 K ist die spektrale Leistungsdichte PSD klein ($S_R/R^2 \sim 1 \times 10^{-9}$ 1/Hz) und nahezu konstant. Unterhalb von $T^* \approx 35$ K steigt die PSD von 1×10^{-9} 1/Hz auf 4×10^{-9} 1/Hz an.

Dieser Anstieg ist in guter Übereinstimmung mit der Annahme des MP-Modells, dass die Bildung der Polaronen unterhalb von T^* erfolgt. Neben dem Anstieg des Widerstands aufgrund der Lokalisation der Löcher erfolgt auch Streuung der Leitungselektronen an den MPen. Diese Streuung ist vermutlich die Ursache der erhöhten Rauschamplitude unterhalb von T^* . Unterhalb von 18 K steigt die Rauschamplitude stark an und erreicht bei T_{MI} einen Wert von 7×10^{-9} 1/Hz. Bei T_C ist ein scharfer Peak mit einer Amplitude von 27×10^{-9} 1/Hz zu beobachten. Offensichtlich hat die normierte PSD ihr Maximum bei T_C und nicht wie erwartet bei der Perkolationschwelle bei T_{MI} . Dieses komplexe Verhalten konnte durch Annahme eines aus zwei Komponenten zusammengesetzten Systems (englisch: composite system) beschrieben werden. In diesem System bezeichnet p die metallische Phase (FM-Phase) in einem weniger leitfähigen Hintergrund (PM-Phase), welcher mit q beschrieben wird. Die Perkolationschwelle p_c dieser metallischen Phase kann von der Perkolationschwelle q_c der weniger leitenden oder isolierenden Phase verschieden sein. In EuB_6 liegen die Perkolationschwellen q_c bei T_C und p_c bei T_{MI} , wobei die normierte Rauschamplitude bei q_c wesentlich stärker als bei p_c ausgeprägt ist.

Im Rahmen der Perkolationsstheorie wird erwartet, dass die normierte PSD S_R/R^2 als Funktion des Widerstandes R ein Potenzgesetzverhalten zeigt. Dieses charakteristische Verhalten ist ebenfalls in anderen CMR-Systemen gemessen worden. Der

6 Zusammenfassung und Ausblick

in EuB_6 zwischen 18 K und 12 K beobachtete Exponent $|w| = 2.1$ stimmt gut mit theoretischen Modellrechnungen überein.

Das Verhalten S_R/R^2 als Funktion von T zwischen T_{MI} und T_{C} zeigt eine Potenzgesetzabhängigkeit mit $S_R/R^2 \propto T^\beta$, wobei $\beta = -6.5$. Ein solches Verhalten wird in der Literatur als Hinweis für das Vorliegen eines Metall-Isolator-Übergangs interpretiert.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Messungen des normierten DHW ein ähnliches Verhalten wie die Messungen der normierten spektralen Leistungsdichte zeigen. Die Ergebnisse sind konsistent mit Vorhersagen der Perkolations-*on*stheorie, wonach $S_R/R^2 \propto V_{3\omega}/I_0^3 R^2 \propto \sum_s i_s^4 / \left(\sum_s i_s^2 \right)^2$.

Basierend auf Hall-Effekt-Messungen wurde vermutet, dass es auch oberhalb von T_{MI} durch Anlegen eines externen Magnetfelds zu einem perkolativen Phasenübergang kommt. Die durchgeführten DHW-Messungen zeigten allerdings, dass für Temperaturen oberhalb von ca. 17.5 K bzw. in Magnetfeldern von mehr als 90 mT kein Polaronenpfad zustande kommt. Demzufolge kann oberhalb von dieser Temperatur kein perkolativer Phasenübergang vorliegen. Um einen möglicherweise perkolativen Charakter des Übergangs im PM-Bereich zu untersuchen, wurde die Fluktationsspektroskopie angewendet.

Bei konstanter Temperatur wurden Messungen der spektralen Leistungsdichte in externen Magnetfeldern im Temperaturbereich von 18 K bis 32 K durchgeführt. Anstelle des bei einem perkolativen Übergang zu erwartenden Maximums in der normierten PSD bei Erreichen des magnetfeldinduzierten Übergangs wurde ein Minimum in der normierten PSD beobachtet. Das Auftreten eines Minimums in der normierten PSD ist ein Hinweis für einen nicht-perkolativen Semimetall-Metall-Übergang. Ein magnetinduzierter Peak in $R_{3\omega}(T, B)$ im PM-Bereich wird demnach in diesem Sinne interpretiert.

Während diese Arbeit entstand wurden die physikalischen Eigenschaften von EuB_6 mit Hilfe anderer Messmethoden charakterisiert, um das Zusammenspiel von Ladung, Spin und Gitter besser zu verstehen.

Hochauflösende Messungen des thermischen Ausdehnungskoeffizienten zeigten eine sehr starke Kopplung der magnetischen (polaronischen) Freiheitsgrade an das Kristallgitter. Derzeit wird untersucht inwieweit dieses Verhalten mit der Delokalisierung der Ladungsträger durch den Perkolationsübergang verknüpft ist.

Messungen der lokalen magnetischen Induktion mittels Mikro-Hall-Magnetometrie zeigen, dass beide Übergänge magnetischer Natur sind und sensitiv auf das Anlegen sehr kleiner externer Magnetfelder reagieren.

Wie in den durchgeführten Transportmessung tritt der Übergang bei T_{MI} nur in kleinen Magnetfeldern (< 75 mT) auf. Nur in höheren Magnetfeldern wird das System homogen und lassen die Messkurven sich im Rahmen eines einfachen Modells

(Molekularfeldtheorie) beschreiben. Aus der Auswertung des Modells ergibt sich eine Abnahme des mittleren magnetischen Moments eines (polaronischen) Clusters bei zunehmendem Magnetfeld. Dies könnte in Analogie zu den Transportmessungen als Aufweichen der Polaronengrenzen interpretiert werden.

Eine Messung des Zweiten Spektrums kann künftig wertvolle Informationen über die elektronische Dynamik des Systems EuB_6 im Bereich der Phasenseparation zwischen T_{MI} und T_{C} sowie in Anwesenheit kleiner Magnetfelder zwischen 16 K und 32 K liefern.

Durch Vergleich mit ähnlichen Systemen könnte ein umfassenderes Verständnis des CMR-Effektes basierend auf dem MP-Modell erlangt werden. In diesem Zusammenhang besonders relevante Systeme sind mit Ca substituierte EuB_6 -Proben, Manganate und magnetische Halbleiter.