

Abstract

Thomas Willers, PhD Thesis, Cologne 2011

This thesis aims at determining the crystal field and Kondo scale of the heavy-fermion systems CePt₃Si, CeMIn₅ (M=Co, Ir, and Rh), CeM₂Si₂ (M=Au, Cu, Ru, and Rh), CeRh₃B₂, and YbInNi₄ via x-ray and neutron spectroscopies.

The crystal-field schemes of all compounds in this work were determined by a combined analysis of inelastic neutron scattering (INS) and polarization dependent soft x-ray absorption spectroscopy (XAS), whereupon partly resorting to previously published neutron data. Combining neutrons and x-rays has the advantage of being able to determine transition energies and ground-state wave functions independently, each with the most suitable technique. The line positions in the magnetic contributions of the neutron scattering data yield the crystal-field transition energies within meV resolution, whereas the polarization dependence (linear dichroism) in a low temperature M_{4,5}-edge XAS experiment yields the ground-state wave function with greatest accuracy.

All compounds but CeRh₃B₂ and YbInNi₄ display tetragonal point symmetry. The hexagonal compound CeRh₃B₂ stands out because as a so-called *giant crystal field* material its crystal-field splittings are of the order of the spin-orbit splitting. YbInNi₄ is a representative for a large class of cubic materials. However, XAS is a dipole dominated technique, so that cubic wave functions appear isotropic although they are not. We have overcome this problem and determined the wave functions in YbInNi₄ by *inducing* linear dichroism via application of a magnetic field. Thereby we introduce magnetic field induced linear dichroism x-ray absorption spectroscopy as a new method for determining the ground-state wave functions of systems which have cubic point symmetry and additionally settle a long standing debate on the crystal-field ground state of YbInNi₄.

The hybridization of 4*f* and conduction electrons is described by its energy scale expressed in terms of the so-called Kondo temperature T^* and the occupancy of the 4*f* orbital. For the CeMIn₅ series the Kondo temperatures were determined via quasi-elastic neutron scattering and hard x-ray photoemission spectroscopy (HAX-PES) measurements were performed in view of determining the 4*f* occupancy. Additionally, the M_{4,5}-edge x-ray absorption spectroscopy data enable a comparative study of the 4*f*⁰ contributions in the crystal-field ground states for all cerium based compounds.

This thesis demonstrates the wide applicability of this method in determining the crystal fields of 4*f* systems and after an introduction into heavy-fermion physics and crystal-fields the experimental and theoretical techniques are explained before all experimental result are discussed in detail for each compound respectively.

Kurzzusammenfassung

Thomas Willers, Dissertation, Köln 2011

Der Focus dieser Arbeit ist die spektroskopische Bestimmung der Kristallfelder und Kondoskalen der Schweren Fermionensysteme CePt_3Si , CeMIn_5 ($M=\text{Co}$, Ir , und Rh), CeM_2Si_2 ($M=\text{Au}$, Cu , Ru , and Rh), CeRh_3B_2 und YbInNi_4 .

Die Kristallfeldschemata aller Verbindungen in dieser Arbeit wurden durch eine Kombination von polarisationsabhängiger Röntgenabsorptionsspektroskopie (XAS) und inelastischer Neutronenstreuung (INS) bestimmt, wobei teilweise auf bereits veröffentlichte Neutronendaten zurückgegriffen wurde. Die Kombination von Röntgenabsorption mit Neutronenstreuung hat den Vorteil, dass die Kristallfeldgrundzustandswellenfunktionen und die Kristallfeldenergien unabhängig voneinander und mit der jeweils am besten geeigneten Methode bestimmt werden. Die Peakpositionen im magnetischen Teil der Neutronenstreuung liefern die Kristallfeldenergien bis auf weniger als ein meV genau. Komplementär ermöglicht die Polarisationsabhängigkeit der Röntgenabsorption an den Lanthanid $M_{4,5}$ -Kanten (gemessen bei tiefer Temperatur) die Bestimmung der Grundzustandswellenfunktion mit höchster Präzision.

Alle Verbindungen außer CeRh_3B_2 und YbInNi_4 haben tetragonal Punktsymmetrie. Die hexagonale Verbindung CeRh_3B_2 hat die Besonderheit eines *gigantisches Kristallfeldes*, d.h. die Größe von Kristallfeld- und Spin-Bahn-Aufspaltung ist vergleichbar. YbInNi_4 ist ein Vertreter für eine Vielzahl von kubischen Verbindungen. Allerdings, werden polarisationsabhängige XAS-Messungen mit weichen Röntgenstrahlen in erster Linie durch Dipolübergänge beschrieben. Daher erscheinen kubische Systeme in XAS-Messungen isotrop obwohl sie keineswegs isotrop sind. Es wird gezeigt, dass das Anlegen eines Magnetfeldes einen Dichroismus in kubischen Systemen induzieren kann. Am Beispiel von YbInNi_4 werden diese feldinduzierten Lineardichroismusexperimente als neue Methode zur Bestimmung der Grundzustandswellenfunktionen kubischer Systeme eingeführt und beenden eine schon lange bestehende Debatte über den Kristallfeldgrundzustand von YbInNi_4 .

Die Hybridisierung der $4f$ - und Leitungsbandelektronen wird beschrieben durch die charakteristische Energieskala, der so genannten Kondotemperatur T^* , und der Besetzungszahlen der $4f$ Orbitale. Für die CeMIn_5 Familie wurde T^* mit quasielastischer Neutronenstreuung bestimmt und außerdem wurden Photoemissionsexperimente mit harten Röntgenstrahlen durchgeführt um die $4f$ Besetzungszahlen zu ermitteln. Zusätzlich erlauben die $M_{4,5}$ Absorptionsspektren eine vergleichende Studie der $4f^0$ Anteile im Grundzustand für alle Ce-Verbindungen.

Diese Arbeit zeigt die umfassende Anwendbarkeit dieser Methode zur Kristallfeldbestimmung für $4f$ Systeme. Nach einer Einführung in die Physik der Schweren Fermionensysteme und Kristallfelder werden theoretische und experimentelle Methoden erklärt, bevor die Ergebnisse der jeweiligen Verbindungen im Detail diskutiert werden.