

Kurzzusammenfassung

Das Ziel der Arbeit war die Entwicklung eines neuen Monochromators für die ^{121}Sb -Resonanz (37.13 keV), um erstmals Nuclear Forward Scattering (NFS)-Experimente unter hohen Drücken an Antimon-Verbindungen durchzuführen. Zusätzlich wurde durch Messungen von Hyperfeinwechselwirkungen im ferromagnetischen MnSb bei sehr hohen Drücken die Anwendbarkeit des Monochromators erfolgreich demonstriert.

Beim Design des neuen Monochromators für ^{121}Sb -NFS Experimente wurde unter Berücksichtigung der Anforderungen für Hochdruck-Messungen der bestmögliche Kompromiss zwischen der Energieauflösung und dem Fluss angestrebt. Der für die vorliegende Arbeit entwickelte Monochromator verwendet Reflexe niedrigerer Ordnung vom Silizium-Einkristall, die eine ausreichend hohe Winkelakzeptanz gewährleisten, um den Monochromator an die Divergenz des Synchrotronstrahls anpassen zu können. Der Silizium-Channelcut-Monochromator in der "nested"-Geometrie besteht aus zwei ausgeschnittenen Silizium-Einkristallen. Dabei wird der Strahl zunächst an einem asymmetrischen (8 0 0)-Reflex reflektiert, um die Divergenz des einfallenden Strahles von gut $2\ \mu\text{rad}$ zu reduzieren auf einen Wert von $0.22\ \mu\text{rad}$. Dies entspricht dann der Akzeptanz des (10 6 0)-Reflexes, der beim zweiten Silizium-Einkristall verwendet wird. Zwei weitere Reflektionen, erst an einem (10 6 0)- und dann an einem (8 0 0)-Reflex, jeweils in gespiegelter Richtung, dienen dazu, den Strahl wieder auf seine ursprüngliche Richtung zurückzulenken.

Die Energieauflösung des Monochromators wird dabei durch die zweite Reflektion am (10 6 0)-Reflex bestimmt. Der im Experiment erzielte Wert von 13.3 meV für die Energieauflösung stimmt mit den Berechnungen für den Monochromator gut überein. Dasselbe gilt für die gemessene spektrale Effizienz des Monochromators von etwa 35 % an der Resonanz-Energie des ^{121}Sb -Isotops. Dies ist damit gut dreimal größer als die gemessene spektrale Effizienz des Rückstreu-Monochromators bei dieser Energie.

Als Anwendungsbeispiel für ^{121}Sb -NFS zur Messung von Hyperfeinwechselwirkungen unter hohen Drücken wurde das ferromagnetische MnSb ($T_C \sim 580\ \text{K}$) gewählt. MnSb, welches unter Normalbedingungen eine hexagonale NiAs-Struktur hat, ist dafür wegen seines großen Sättigungsmoments von ca. $3.5\ \mu_B$ und des daraus resultierenden starken transferierten magnetischen Hyperfeinfeldes B_{thf} an den Sb-Atomen hervorragend geeignet. Der ferromagnetische Zustand ist stark anisotrop entlang der c -Achse und zeigt unterhalb von ca. 520 K eine Spinreorientierung von der c (easy)-Achse zur

a -Achse. Des Weiteren wurde beobachtet, dass der ferromagnetische Zustand von MnSb schon bei moderaten Drücken ($\lesssim 6$ GPa) instabil wird.

Um einen tieferen Einblick in den Charakter des magnetischen Grundzustands von MnSb und seiner Kopplung an die magnetokristalline Anisotropie zu bekommen, haben wir den ferromagnetischen Zustand von MnSb unter hohem Druck bis 28 GPa mittels ^{121}Sb -NFS untersucht. Die Änderung des ferromagnetischen Grundzustands kann hierbei über die entsprechende Änderung von B_{thf} am ^{121}Sb -Kern verfolgt werden. Um zu überprüfen ob die erwarteten Änderungen der magnetischen Eigenschaften mit angelegtem Druck mit einer strukturellen Instabilität oder einem strukturellen Phasenübergang einhergehen, wurden Pulverdifraktions-Messungen an MnSb unter hohem Druck durchgeführt.

Die Auswertung der Druckabhängigkeit von B_{thf} und der Strukturparameter von MnSb offenbart ein ungewöhnliches magnetisches Verhalten und ein starkes Wechselspiel zwischen Magnetismus und Struktur. Der ferromagnetische Zustand wird mit zunehmendem Druck instabil bei Drücken bis zu 3 GPa. Im Druckbereich $3 \text{ GPa} \lesssim p \lesssim 9 \text{ GPa}$ zeigt sich eine dramatische Änderung des ferromagnetischen Zustands zu einem ungeordneten magnetischen Zustand, wobei die NiAs-Struktur in diesem Druckbereich stabil bleibt. Wir gehen davon aus, dass dieser ungeordnete magnetische Zustand durch eine druckinduzierte Abnahme der Stärke der Anisotropie der magnetischen Austauschwechselwirkung relativ zu der des Kristallfeldes getrieben wird. Sobald diese konkurrierenden Anisotropien von gleicher Stärke sind, kommt es zu einer magnetischen Frustration der Mn-Spins, die einen ungeordneten Zustand bilden.

Oberhalb von 9 GPa beobachten wir wieder ein wohldefiniertes B_{thf} mit einer schmalen Verteilung und einem Wert, der etwa halb so groß ist wie der des ferromagnetischen Zustands unterhalb von 3 GPa, was auf einen wieder geordneten magnetischen Zustand hinweist. Diese Hochdruckphase ist mit einem strukturellen Phasenübergang von der hexagonalen NiAs-Struktur zu einer orthorhombischen MnP-Struktur verbunden. Analog zu Beobachtungen in MnP bei Normaldruck nehmen wir an, dass sich in der Hochdruckphase von MnSb eine helikale magnetische Ordnung gebildet hat. Der stark reduzierte Wert von B_{thf} im Vergleich zu dem von MnSb in der NiAs-Struktur bei niedrigen Drücken kann mit einer Reduzierung der Besetzungszahl der Mn 3d-Zustandsdichte von MnSb erklärt werden. Dies wurde bereits für andere 3d-Verbindungen (CrP, VP) mit strukturellen Phasenübergängen von einer NiAs- zu einer MnP-Struktur berechnet.