

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaft

# Elektronische und magnetische Phasenseparation in $\text{EuB}_6$

–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.

# Akronyme und Abkürzungen

AC	Alternating Current: Wechselstrom
AKF	Autokorrelationsfunktion
CMR	Colossal Magnetoresistance: Kolossale Magnetowiderstand
DC	Direct Current: Gleichstrom
DFT	Diskrete Fourier-Transformation
DHW	Dritter harmonischer Widerstand
FFT	Fast Fourier Transform: Schnelle Fourier-Transformation
FM	Ferromagnetisch
FT	Fourier-Transformation
GUI	Graphical User Interface: Grafische Benutzeroberfläche
MP	Magnetisches Polaron
MPen	Magnetische Polaronen
MR	Magnetoresistance: Magnetowiderstand
PM	Paramagnetisch
PSD	Power Spectral Density: Spektrale Leistungsdichte
RTN	Radom Telegraph Noise: Zufälliges Telegraphenrauschen



# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Grundlagen</b>	<b>5</b>
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
<b>2 Rauschen in perkolierenden Systemen</b>	<b>35</b>
2.1 Mathematische Beschreibung der Perkolationstheorie . . . . .	36
2.2 Fluktuationsspektroskopie in perkolierenden Systemen . . . . .	39
<b>3 Experimentelle Methoden</b>	<b>41</b>
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
<b>4</b>	<b>Software zur Signal-Analyse</b>	<b>51</b>
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
<b>5</b>	<b>Das System EuB<sub>6</sub></b>	<b>73</b>
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

<b>6 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>119</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>125</b>





# 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  $\text{EuO}$  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  $\text{Eu}^{2+}$  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  $\text{EuB}_6$ . Der letzte Forschungsstand zeigt, dass  $\text{EuB}_6$  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  $T_{\text{MI}}$  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  $T_{\text{C}}$  entspricht einer elektronischen und magnetischen Phasenseparation [11]. Aufgrund der isotropen magnetischen und der einfachen Gitterstruktur kommt  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  zusammengefasst.



# 1 Grundlagen

## 1.1 Stochastische Prozesse

Zur Beschreibung von Zufallsprozessen verwendet man verschiedene Parameter, zum Beispiel den Mittelwert, die Varianz, die Kovarianz, die Verteilungsfunktion, und so weiter.

In diesem Abschnitt wird eine besondere Form von stochastischen Prozessen dargestellt, die relevant für die Messung von physikalischen Größen ist. Dafür wichtige Begriffe wie korrelierte Funktion, stationäre Prozesse und Ergodizität werden im Folgenden behandelt.

Zur Beschreibung eines stochastischen Prozesses führen wir die zeitabhängige Zufallsfunktion  $X = X(t, w)$  ein, wobei  $w$  die Zufallsvariable<sup>1</sup> wiedergeben soll. Durch eine Mittlung über alle Wahrscheinlichkeiten erhält man den Mittelwert

$$\langle X \rangle = \overline{X(t, w)} = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T X(t, w) dt \quad (1.1.1)$$

und die Varianz für eine diskrete Messung ist:

$$\sigma(t)^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=0}^n \left( X_n(t, w) - \overline{X(t, w)} \right)^2. \quad (1.1.2)$$

Von einem stationären stochastischen Prozess spricht man, wenn sich der Mittelwert des Produkts der Zufallsfunktion zu verschiedenen Zeitpunkten  $t_1$  und  $t_2$  als Funktion der Zeitdifferenz schreiben lässt  $\overline{X(t_1, w) X(t_2, w)} = f(t_1 - t_2)$  und damit gegenüber gleichen Zeitverschiebungen ( $t_1 \rightarrow t_1 + \Delta t$ ,  $t_2 \rightarrow t_2 + \Delta t$ ) invariant wird.

**Definition 1.** Der Prozess  $X(t)$  wird stationär genannt, wenn folgende Bedingungen erfüllt sind:

$$\overline{X(t)} = \frac{1}{N} \sum_i^N x_i(t) = \text{const.} \quad (1.1.3)$$

---

<sup>1</sup>Zum Beispiel Kopf oder Zahl beim Werfen von Münzen.

## 1 Grundlagen

$$\overline{X(t) X(t + \tau)} = f(\tau). \quad (1.1.4)$$

Allerdings setzt die Berechnung des Mittelwerts die Integration der Bewegungsgleichungen eines Systems über die Zeit für alle Freiheitsgrade voraus, was zur Ergodenhypothese von *L. Boltzman* (1887) führt.

Später hat *P. Ehrenfest* (1911) aus mathematischen Gründen die Theorie zur Quasi-Ergodenhypothese abgeschwächt. Trotz problematischer Beweisführung der Gleichheit wird die Hypothese meistens als Postulat betrachtet [13].

**Definition 2.** Ein stationärer Prozess  $X(t, w)$  mit der Bedingung

$$\overline{X(t)} = \overline{X(w)} \quad (1.1.5)$$

wird ergodisch genannt.

Das heißt, in einem ergodischen System sind das zeitliche Mittel  $\overline{X(t)}$  und das Ensemblemittel  $\overline{X(w)}$  gleich [14, 15]. Wir wollen jetzt die Korrelation zwischen zwei Rauschsignalen untersuchen. Ein Weg ist, das erste Signal gegen das andere zu plotten, was wir in Abschnitt 1.5.3 diskutieren werden, um den Korrelationskoeffizienten zu bestimmen. Hier interessiert uns die sogenannte *Autokorrelationsfunktion* (AKF)  $A(\tau)$ , die es ermöglicht, eine Aussage über die Wahrscheinlichkeit einer physikalischen Größe im Zeitintervall  $\tau$  zu treffen.

**Definition 3.** Die Autokorrelationsfunktion lautet:

$$A(\tau) \equiv \overline{X(t + \tau) - X(t)} = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T X(t) X(t + \tau) dt. \quad (1.1.6)$$

Die AKF ist der Mittelwert des Produkts aus dem Rauschsignal zur Zeit  $t$  und dem Rauschsignal zur Zeit  $t + \tau$ . Im stationären Fall geht man davon aus, dass die Messungen zum Zeitpunkt  $t$  unabhängig von Messungen zu andern Zeitpunkten sind und damit die AKF  $A(\tau) = A(t_2 - t_1)$  nur von der Zeitdifferenz abhängig ist. Außerdem gilt in diesem Fall, dass  $A(\tau)$  eine gerade Funktion  $A(\tau) = A(-\tau)$  sein muss. Für reine Fluktuation<sup>2</sup> und  $\tau = 0$  ist die  $A(\tau = 0) = \sigma^2$  (siehe Gleichung 1.1.2) [15].

Diese drei Konzepte, nämlich die stationären Prozesse, die Ergodizität und die Autokorrelationsfunktion machen es interessant, dynamische Messungen durchzuführen, wie zum Beispiel mit der sogenannten Fluktuationsspektroskopie, die sich zur Identifikation der Korrelation im elektronischen Rauschen des Systems verwenden lässt. Im Folgenden werden der elektronische Transport im Festkörper sowie die am häufigsten auftretenden Rauscharten behandelt.

---

<sup>2</sup>Allgemeine Schwankungsgröße ist  $A(t) = a(t) + \overline{A(t)}$  mit reinem Schwankungsterm  $a(t)$ .

## 1.2 Transport im Festkörper

Elektrische Transportmessungen sind eine einfache und wichtige Methode zur Charakterisierung der Festkörpereigenschaften und beruhen auf der Mittelwertberechnung der gemessenen Variable (Spannung beziehungsweise Strom) in Abhängigkeit von anderen physikalischen Größen wie Temperatur oder Magnetfeld.

Es wird die stationäre Verteilungsfunktion  $f(\mathbf{r}, \mathbf{k})$  verwendet, die nicht im Gleichgewicht ist, um die Besetzung der Elektronenzustände zu charakterisieren, wobei  $\mathbf{r}$  die Position und  $\mathbf{k}$  den Wellenvektor darstellen. Diese Funktion ist die Lösung der *Boltzmann-Gleichung* für Elektronen und Phononen in Anwesenheit einer Störung.

Das *Ohmsche Gesetz* beschreibt den linearen Zusammenhang zwischen Stromdichte  $\mathbf{j}$  und einem schwachen elektrischen Feld  $\mathbf{E}$

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E} = -\sigma \nabla \varphi, \quad (1.2.1)$$

wobei  $\sigma$  der elektrische Leitfähigkeitstensor und  $\varphi$  das elektrische Potential sind. In Analogie kann man die thermische Leitfähigkeit bei einem Temperaturgradienten oder bei der Diffusion von elektrischen Ladungen definieren:

$$\mathbf{j}_Q = -\lambda \nabla T \quad (1.2.2)$$

$$\mathbf{j}_n = -D \nabla n, \quad (1.2.3)$$

wobei  $\lambda$  die thermische Leitfähigkeit und  $D$  der Diffusionskoeffizient sind. Demzufolge kann ein starkes elektrisches Feld zu einem Temperaturgradienten bzw. zur Entstehung eines thermischen Stromes führen.

Die klassische Beschreibung der Elektronenbewegung im Festkörper basiert auf dem *Drude-Lorentz Modell* (1900, 1905), das auf klassischen Annahmen beruht. Obwohl die Theorie einerseits die Relaxationszeit durch Stöße von Elektronen mit Phononen und Fehlstellen berücksichtigt, bleibt andererseits die Elektron-Elektron-Wechselwirkung unbeachtet. Eine quantenmechanische Ergänzung wurde später von *Sommerfeld* (1928) und *Bethe* (1933) vorgestellt. Im thermischen Gleichgewicht wird die Besetzung der Elektronenzustände durch die *Fermi-Dirac-Verteilung* und die Besetzung der Phononenzustände durch die *Bose-Einstein-Verteilung* beschrieben. In der semiklassischen Näherung kann der Nichtgleichgewichtszustand durch eine Nichtgleichgewichtsverteilungsfunktion angegeben werden.

Die Lösung der *Boltzmann-Gleichung* ist relativ einfach, wenn sich eine Relaxationszeit definieren lässt. Verwendung einer Relaxationszeit verlangt, dass sich die

## 1 Grundlagen

Energie der Elektronen während der Stöße mit den Phononen nicht wesentlich ändert. Das heißt, dass die entsprechenden Phononenenergien vernachlässigbar im Vergleich zu den Elektronenenergien sind, sodass die Streuung der Elektronen an den Phononen als elastisch angesehen werden kann[16, 17].

### 1.2.1 DC-Leitfähigkeit

Die Verteilungsfunktion ist in Abwesenheit eines Magnetfeldes ( $B = 0$ ) und Temperaturgradienten ( $\Delta T = 0$ ) bei konstantem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  gegeben durch:

$$f(\mathbf{k}) = f_0(\mathbf{k}) - e(\mathbf{E} \cdot \mathbf{v}_k)\tau(\varepsilon_k) \left( -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_k} \right), \quad (1.2.4)$$

wobei  $e$  die Elementarladung,  $\varepsilon_k$  die Energie,  $\tau(\varepsilon_k)$  die Relaxationszeit und

$$\mathbf{v}_k = \dot{\mathbf{r}} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon_k}{\partial \mathbf{k}} \quad (1.2.5)$$

die Geschwindigkeit der Elektron darstellen. Die stationäre Verteilungsfunktion lässt sich von der Fermi-Funktion durch das Verschieben der Energie um  $e\tau \mathbf{E}/\hbar$  ableiten:

$$f(\mathbf{k}) = f_0(\mathbf{k}') = f_0 \left( \mathbf{k} + \frac{e\tau \mathbf{E}}{\hbar} \right), \quad (1.2.6)$$

wobei diese Energie aus dem elektrischen Feld gewonnen wird. Da der Elektronenstrom im thermischen Gleichgewicht verschwindet, folgt für die Stromdichte:

$$\mathbf{j} = -e \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \mathbf{v}_k [f(\mathbf{k}) - f_0(\mathbf{k})] = -e \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \mathbf{v}_k [f(\mathbf{k}) - f_0(\mathbf{k})]. \quad (1.2.7)$$

Der Leitfähigkeitstensor lässt sich dann ausdrücken als

$$\boldsymbol{\sigma} = e^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \mathbf{v}_k \otimes \mathbf{v}_k \tau(\varepsilon_k) \left( -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_k} \right) \quad (1.2.8)$$

mit  $\mathbf{v}_k \otimes \mathbf{v}_k$  als dyadischem Produkt. Dieser Tensor weist die Symmetrien des Kristallgitters auf. Für kubische Kristalle ist  $\sigma_{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta}\sigma$ , sodass sich die Leitfähigkeit als Skalar angeben lässt. Für niedrigere Symmetrien sind  $\mathbf{j}$  und  $\mathbf{E}$  nicht unbedingt parallel sowie bei  $T = 0$  ist  $\tau(\varepsilon_k) = \tau(\varepsilon_F)$ . Daher wird die Formel für die Leitfähigkeit zu:

$$\sigma_0 = e^2 \tau(\varepsilon_F) \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \mathbf{v}_k}{\partial \mathbf{k}} f_0(\varepsilon_k) = e^2 \tau(\varepsilon_F) \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \frac{1}{m_k^*}. \quad (1.2.9)$$



Falls die effektive Masse unabhängig von  $\mathbf{k}$  ist, erhält man die *Drude-Formel* für Elektronen:

$$\sigma_0 = \frac{n_e e^2 \tau}{m_e^*} \quad (1.2.10)$$

und für Löcher:

$$\sigma_0 = \frac{n_h e^2 \tau}{m_h^*}, \quad (1.2.11)$$

wobei  $n$  die Ladungsträgerkonzentration und  $m^*$  die effektive Masse für Elektronen beziehungsweise Löcher darstellt [16].

### 1.2.2 AC-Leitfähigkeit

Eine analoge Rechnung für Wechselstrom (AC) mit  $E(t) = E(\omega) e^{-i\omega t}$  ergibt folgende Verteilungsfunktion:

$$f(\mathbf{k}, t) = f_0(\mathbf{k}) - e^{-i\omega t} \frac{1}{1/\tau(\varepsilon_{\mathbf{k}}) - i\omega} \left( -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}} \right) e \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{E}(\omega), \quad (1.2.12)$$

wobei  $\omega$  die Frequenz ist. Unter Verwendung dieser Formel resultiert für die AC-Leitfähigkeit:

$$\sigma_{\alpha\beta}(\omega) = e^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} v_{\mathbf{k}}^\alpha v_{\mathbf{k}}^\beta \frac{1}{1/\tau(\varepsilon_{\mathbf{k}}) - i\omega} \left( -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}} \right). \quad (1.2.13)$$

Im Fall eines kubisches Systems und falls die Relaxationszeit unabhängig von der Energie ist, entspricht diese Formel der von *Drude*

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau} \quad (1.2.14)$$

mit

$$\sigma_0 = e^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \frac{1}{3} v_{\mathbf{k}}^2 \tau \left( -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}} \right). \quad (1.2.15)$$

Folgt man der Schreibweise von *Drude* für  $\sigma_0$ , muss man im Nenner die sogenannte *optische Masse*  $m_{opt}$  als neuen Parameter einführen<sup>3</sup>:

<sup>3</sup>Wenn das periodische Gitterpotential mitberücksichtigt wird, erhält man dieselben Ergebnisse für die optischen Eigenschaften von Metallen und die Rolle der Plasmafrequenz in der Näherung der Relaxationszeit wie im klassischen Modell der freien Elektronen.

$$\sigma_0 = n_e e^2 \tau / m_{\text{opt}} . \quad (1.2.16)$$

### 1.2.3 Hohe-harmonische Signalgenerierung

Mit Hilfe eines Lock-in-Verstärkers lassen sich sehr kleine Wechselspannungssignale detektieren, filtern und verstärken. Beim Anlegen einer Wechselspannung  $V_{\text{rms}}(t)$  an einen Vorwiderstand  $R_{\text{vor}}$  wird ein Stromfluss  $I(t)$  verursacht. Die Probenspannung lässt sich dann folgendermaßen ausdrücken:  $V(t) = R(I) I(t)$ , wobei  $I = I_0 \sin(\omega t)$  ist. Prinzipiell kann man  $R(I)$  durch eine *Taylor-Reihe* beschreiben:

$$R(I) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{R_0^{(n)}}{n!} I^n \quad (1.2.17)$$

mit

$$R_0^{(n)} = \frac{d^n R}{dI^n} \Big|_{R(0)} \quad (1.2.18)$$

dabei ist  $d^n$  die  $n$ -te Ableitung von  $R(I)$  bei  $I = 0$  [18].

Im idealen Fall sind alle höheren Ordnungen gleich Null. Für reale Systeme spielen diese Ordnungen hingegen eine wichtige Rolle bei der Erklärung des Transportmechanismus (siehe Abbildung 1.2.1).

Die Probenspannung lässt sich somit als Summe der höheren harmonischen Signale ausdrücken:

$$V(t) = V_{1\omega} \sin(\omega t) + V_{3\omega} \sin(3\omega t) + \dots , \quad (1.2.19)$$

wobei

$$V_{1\omega} = R_0 I_0 + \frac{3}{8} R_0'' I_0^3 + \dots , \quad (1.2.20)$$

$$V_{3\omega} = \frac{R_0'' I_0^3}{8} + \sum_{n=5}^{\infty} \binom{n}{\frac{n-3}{2}} \frac{R_0^{(n-1)} I_0^n}{(n-1)!} \quad (1.2.21)$$

sind. Hier sind  $R_0''$  die zweite sowie  $R_0^{(n)}$  die  $n$ -te Ableitung des Widerstandes,  $I_0$  die Stromamplitude und  $\binom{n}{k}$  der Binomialkoeffizient<sup>4</sup> [18]. Geradzahlige Ordnungen werden in der Entwicklung weggelassen, da der Widerstand immer einen positiven

---

<sup>4</sup>  $\binom{n}{k} = \prod_{j=1}^k \frac{n+1-j}{j}$  .

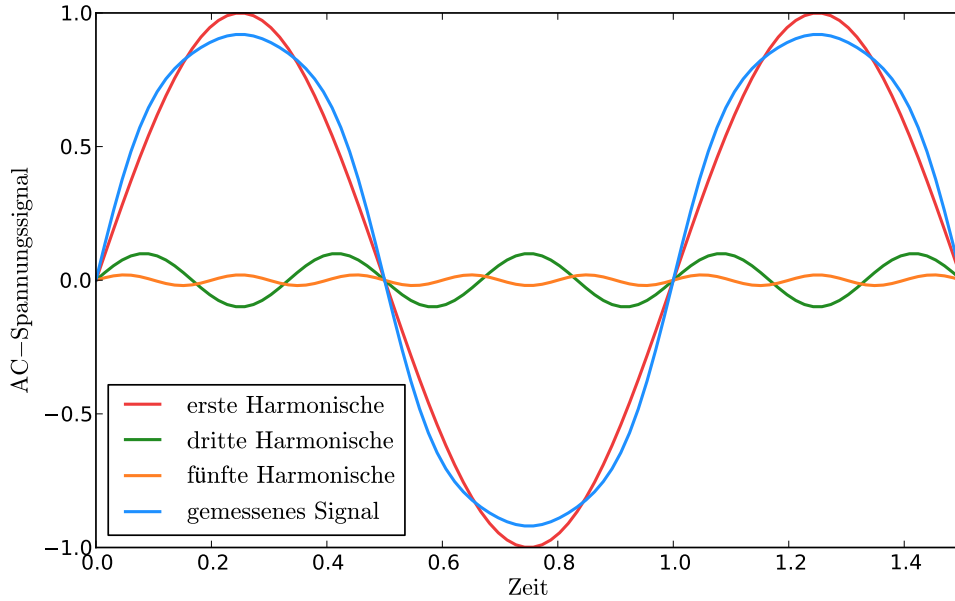


Abbildung 1.2.1: Schematische Darstellung einer realen Messung (blaue Kurve) und der dazugehörigen, höheren Harmonischen (erste in Rot, dritte in Grün, fünfte in Orange).

Wert annehmen soll. Außerdem existieren weitere Möglichkeiten zur Berechnung der dritten harmonischen Signale abhängig vom jeweiligen physikalischen Problem.

Die nichtlinearen Beiträge wurden bei vielen Systemen beobachtet, zum Beispiel bei polaronischen Systemen wie den Manganaten [19], Hochtemperatursupraleitern [20, 21], organischen Ladungstransfersalzen (OCTS) [22], sowie in Systemen, bei denen die Joulesche Wärme und Perkolation eine Rolle spielen. Dabei ist der nichtlineare Transport weit verbreitet in perkolutiven Systemen und wurde zum Beispiel in zufälligen Widerstandsnetzwerken (englisch: random resistor network) untersucht. Bei fester Temperatur treten immer Widerstandsoszillationen infolge von Temperaturoszillationen  $T \pm \Delta T$  auf, woraus eine Abhängigkeit des Signales von der Anregungsfrequenz  $f$  des Stromes resultiert [23, 24, 25, 21]:

$$V_{3\omega} \propto f^{-1/2}. \quad (1.2.22)$$

In zufälligen Widerstandsnetzwerken betrachtet man die Energie in jedem stromführenden Widerstandselement, die proportional zu der lokalen Temperaturoszillation ist. Damit ist der normierte dritte harmonische Widerstand (DHW) sensitiv auf das vierte Moment der Stromverteilung [23]:

$$\frac{V_{3\omega}}{I_0^3 R^2} \propto \frac{\sum_{\alpha} i_{\alpha}^4}{\left(\sum_{\alpha} i_{\alpha}^2\right)^2}, \quad (1.2.23)$$

was einen direkten Vergleich mit dem normierten Rauschen erlaubt (siehe Kapitel 2). In der vorliegenden Arbeit wurde diese Methode angewandt, um den nichtlinearen Beitrag des Widerstandes in  $\text{EuB}_6$  zu untersuchen (siehe Gleichung 2.2.3).

### 1.3 Signalanalyse

Zeitabhängige Signale lassen sich durch verschiedene Standardverfahren transformieren. Uns interessiert die Frequenz-Domäne, die sich durch eine diskrete Fourier-Transformation (DFT) berechnen lässt. Abbildung 1.3.1 zeigt ein Beispiel einer DFT von einem Spannungssignal mit zwei unterschiedlichen Frequenzen, wobei sich das Signal auf zwei Peaks im Frequenzraum reduziert.

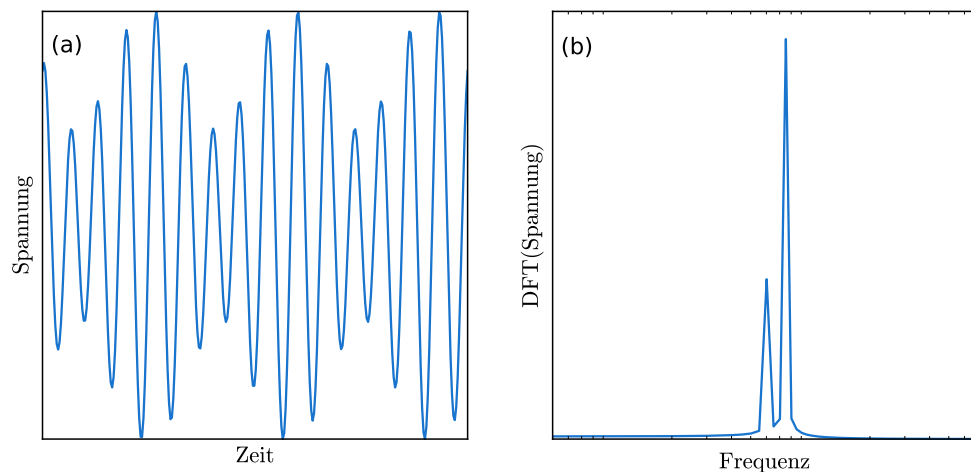


Abbildung 1.3.1: (a) Das Spannungssignal besteht aus der Überlagerung zweier Sinus-Funktionen in der Zeit-Domäne. (b) Die diskrete Fourier-Transformation (DFT) des Spannungssignals.

Anders ausgedrückt geht es um die Analyse der Rauschsignale im Sinne von Amplituden und Frequenzen durch passende Transformationen. Im Folgenden werden Definitionen wie die spektrale Leistungsdichte und das zweite Spektrum vorgestellt.

### 1.3.1 Spektrale Leistungsdichte

Die spektrale Leistungsdichte (englisch: power spectral density, PSD) wird zur Charakterisierung von Zufallsprozessen wie dem Rauschen in elektronischen Systemen verwendet. Das elektronische Rauschen enthält viele Frequenzen, die durch *Fourier-Transformation* (FT) analysiert werden können.

Ein typisches Rauschspektrum ist in der Abbildung 1.3.2 zeigt. Bei tiefen Frequenzen ist  $1/f$ -artiges, bei höhere Frequenzen dagegen ist *Johnson-Rauschen* dominant. Wir definieren zuerst die gesamte Leistung  $P(\omega)$  eines Rauschprozesses, die aus physikalischen Gründen endlich sein soll:

$$P = \int_0^{\infty} \mathcal{F}(\omega) d\omega = \overline{a^2}, \quad (1.3.1)$$

wobei  $\mathcal{F}(\omega)$  die spektrale Leistungsdichte ist. Das gilt für eine reine Schwankungsgröße  $a(t)$ . Eine Gleichstromanteil äußert sich als  $\delta$ -Funktion bei  $f = 0$ . Abhängig von der Variable  $a(t)$  wird die Einheit von  $\mathcal{F}(\omega)$  definiert. Zum Beispiel, für  $a(t) = V(t)$  (Spannungssignal) ist die Einheit  $[\text{V}^2/\text{Hz}]$  und für  $a(t) = I(t)$  ist die Einheit  $[\text{A}^2/\text{Hz}]$ . Der Zugang zum Frequenzraum ist die Fourier-Transformation.

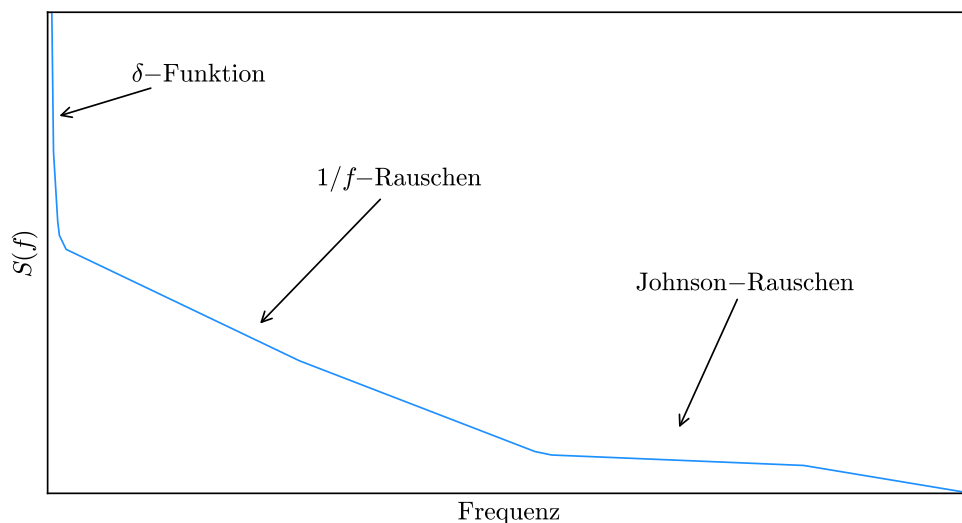


Abbildung 1.3.2: Verschiedene Bereiche der spektralen Leistungsdichte (PSD) in Abhängigkeit von der Frequenz. Das  $1/f$ -Rauschen ist bei tiefen Frequenzen dominant, wohingegen bei hohen Frequenzen das *Johnson-Rauschen* auftritt.

In der Praxis können nur diskrete Messungen durchgeführt werden, die mittels der relativ zeitintensiven DFT analysiert werden. Optimierte Varianten der DFT

## 1 Grundlagen

sind die „Fast Fourier Transform“ (FFT)<sup>5</sup> und der *Goertzel-Algorithmus*. Die folgenden Gleichungen beschreiben die FT und die Rücktransformation:

$$\mathcal{F}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi(\tau) \exp(-i\omega\tau) d\tau \quad (1.3.2)$$

und

$$\psi(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{F}(\omega) \exp(i\omega\tau) d\omega. \quad (1.3.3)$$

Für  $\tau = 0$  ergibt sich folgende sehr interessante Größe:

$$\psi(0) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{F}(\omega) d\omega. \quad (1.3.4)$$

$\psi(0)$  entspricht in diesem Fall der mittleren Leistung des Prozesses und somit ist  $2\mathcal{F}(\omega_0)d\omega/(2\pi)$  das Leistungssignal am Ausgang eines Bandpass-Filters mit  $\omega_0 < |\omega| < \omega_0 + d\omega$  [14, 15].

Zu Beginn soll das Theorem von *Wiener-Khinchin*<sup>6</sup> eingeführt werden, das die Leistung eines stationären Prozesses durch FT mit der AKF  $A(\tau)$  verknüpft. Will man nach Gleichung 1.1.6 nur positive Frequenzen betrachten, so setzt man  $s(\omega) = 2\mathcal{F}(\omega) = S_V(\omega)$  und erhält die *Wiener-Khinchin*-Beziehungen:

$$S_V(\omega) = 2 \int_{-\infty}^{\infty} A(\tau) \exp(-i\omega\tau) d\tau, \quad (1.3.5)$$

$$A(\tau) = \int_0^{\infty} S_V(\omega) \cos(\omega\tau) d\omega, \quad (1.3.6)$$

wobei die AKF  $A(t) = \psi(t)$  ist.

$$A(0) = \int_0^{\infty} S_V(\omega) d\omega = \overline{(\delta x)^2}, \quad (1.3.7)$$

Da  $\psi(\tau)$  symmetrisch und  $s(\omega)$  reell sind, kann man die Beziehungen wie folgt beschreiben:

---

<sup>5</sup>Algorithmus von COOLEY und TUKEYIN.

<sup>6</sup>N. WIENER (1930), A. KHINCHIN (1934).

$$S_V(\omega) = 4 \int_0^{\infty} A(\tau) \cos(-\omega\tau) d\tau, \quad (1.3.8)$$

$$A(\tau) = \int_0^{\infty} S_V(\omega) \cos(\omega\tau) d\omega. \quad (1.3.9)$$

Aus physikalischen Gründen ist die endliche Größe der gesamten Rauschleistung eines Prozesses immer gewährleistet. Die Beziehungen gelten für eine reine Schwankungsgröße  $a(t)$  oder allgemeine Schwankungsgröße  $A(t) = a(t) + \overline{A(t)}$ . Der konstante Summand in der AKF liefert nach FT bei  $f = 0$  eine  $\delta$ -Funktion [26].

Für diese Arbeit stellt die PSD die wichtigste verwendete Messgröße bei der Charakterisierung des Rauschens dar:

$$P = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} |V(t)|^2 dt = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^{\infty} 2 \frac{|\hat{V}(\omega)|^2}{T} d\omega, \quad (1.3.10)$$

wobei  $V(t)$  die gemessene Spannung als Funktion der Zeit und  $\hat{V}(\omega)$  die Spannung im Frequenzraum  $\hat{V}(\omega) = 2 \int_0^{\infty} V(t) \exp(-i\omega t) dt$  sind.

Die PSD eines fluktuierenden Prozesses im Bereich  $0 < \omega < \infty$  ist dann

$$S_V(\omega) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{2 |\hat{V}(\omega)|^2}{T}. \quad (1.3.11)$$

Die spektrale Leistungsdichte kann direkt nach der Messung des Spannungssignals durch einen Signalanalysator angezeigt werden.

### 1.3.2 Kreuzspektrum

Man kann in Analogie zum vorherigen Abschnitt die kreuzkorrelierte Funktion definieren. Ein Messsignal (Spannung) wird in zwei Teile, zum Beispiel  $V_1(t)$  und  $V_2(t)$ , aufgeteilt. Das Kreuzspektrum  $S_V(\omega)$  wird dann folgendermaßen berechnet:

$$S_V(\omega) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{2 \hat{V}_1(\omega) \hat{V}_2(\omega)}{T}. \quad (1.3.12)$$

Dies hat den Vorteil, dass nur die korrelierten Moden der beiden gesplitteten Signale  $V_1(t)$  und  $V_2(t)$  berechnet werden und alle unkorrelierten Moden, die von den Messgeräten stammen, gefiltert werden (siehe Abschnitt 3.2.1).

## 1.4 Rauschen

Es existieren viele Rauscharten. Von den Wichtigsten sind computergenerierte Beispiele in Abbildung 1.4.1 zu sehen: (a) Weißes Rauschen, (b)  $1/f$ -Rauschen, (c) Random Walk und (d) zufälliges Telegraphenrauschen. Von Bedeutung für diese Arbeit ist vor allem das  $1/f$ -Rauschen. Obwohl keine allgemeingültige Theorie für das  $1/f$ -Rauschen existiert, kann zum Beispiel das Modell von *Dutta, Dimon und Horn* (1979) dieses Rauschen phänomenologisch beschreiben. Beim Telegraphenrauschen handelt sich um einen Fluktuationsprozess zwischen den zwei Niveaus eines Systems, der durch eine *Lorentz-Funktion* beschrieben werden kann. Dieses Rauschen ist häufig in Halbleitern zu beobachten, wie zum Beispiel in Si-MOSFET [27] oder in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-Heterostrukturen [28].

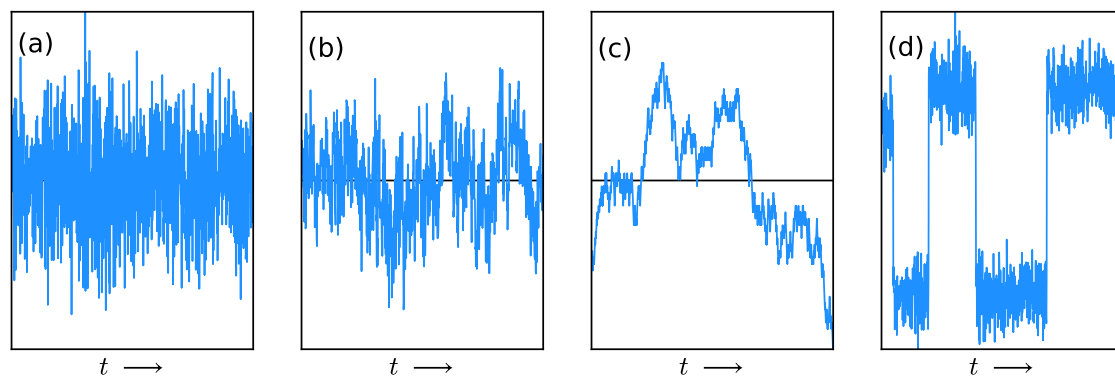


Abbildung 1.4.1: Computergenerierte Daten: (a) Weißes Rauschen, (b)  $1/f$ -Rauschen, (c) Random Walk und (d) zufälliges Telegraphenrauschen.

### 1.4.1 Unkorrelierte Fluktuationen

Fluktuationen, die eine flache, das heißt frequenzunabhängige, PSD zeigen, werden unkorreliert genannt, wie beispielsweise thermisches Rauschen und Schrotrauschen. Ersteres wird nur durch Temperatur verursacht und kann bei tiefen Temperaturen vernachlässigt werden. Das Schrotrauschen ist nur bei tiefen Temperaturen zu beobachten und wird durch Tunnelprozesse von Ladungsträgern verursacht.

#### Thermisches Rauschen

Die thermische Energie verursacht im Gleichgewichtszustand Fluktuationen der Elektronenbewegung im Widerstand, was das *Johnson-Nyquist-Rauschen*<sup>7</sup> zur Folge hat [29] (siehe Abbildung 1.4.1(a)). Es wird als weiß bezeichnet, da die PSD

<sup>7</sup>J. B. JOHNSON (1927), H. NYQUIST (1928).



frequenzunabhängig ist und sich durch die *Nyquist*-Formel für Widerstände berechnen lässt [30]:

$$S_V = 4k_B T R, \quad (1.4.1)$$

$$S_I = 4k_B T G. \quad (1.4.2)$$

$S_V$  und  $S_I$  sind die PSD in  $[\text{V}^2/\text{Hz}]$  beziehungsweise in  $[\text{A}^2/\text{Hz}]$ , mit  $T$  als Temperatur,  $R$  als Widerstand,  $G$  als Leitwert und  $k_B$  als Boltzmann-Konstante [31].

Die PSD sind frequenzunabhängig. Für einen Widerstand von  $1 \text{ M}\Omega$  beträgt der Effektivwert (englisch: root mean square, RMS) der Spannung bei Raumtemperatur  $4 \mu\text{V}$ . Dieses Signal enthält keine Informationen über die Dynamik der Ladungsträger im System. Daher wird zum Beispiel bei Widerstandsmessungen versucht, das Signal-Rausch-Verhältnis zu maximieren.

### Schrotrauschen

Schrotrauschen (englisch: shot noise, *sn*) ist mit dem Strom assoziiert und wird durch einen Nichtgleichgewichtszustand hervorgerufen. Dieser Strom ist mit der Quantisierung der Ladungsträger verknüpft. Das Schrotrauschen wurde erstmals in einer Vakuumröhre von *Schottky* (1918) beobachtet [32], wobei die spektrale Leistungsverteilung weiß ist, mit

$$S_I = 2eI. \quad (1.4.3)$$

Das Stromrauschen  $I_{sn}$  in der Bandbreite  $\Delta f$  ist

$$I_{sn} = \sqrt{2eI\Delta f}. \quad (1.4.4)$$

Dieser Effekt kann nur bei tiefen Temperaturen beobachtet werden, wenn Ladungsträger tunneln [33].

### 1.4.2 Korrelierte Fluktuationen

Es existieren andere Rauscharten, deren PSD nicht flach sind. Diese werden als korrelierte Fluktuationen bezeichnet. Das Wichtigste ist das  $1/f$ -Rauschen, das bei tiefen Frequenzen dominant ist (siehe Abbildung 1.3.2). Ein anderes Beispiel ist das Rauschspektrum eines Random-Walk-Prozesses (siehe Abbildung 1.4.1 (c), Random Walk Prozess in der Zeitdomäne). Seine PSD ist proportional zu  $f^{-2}$ . Man bezeichnet solchen Prozess als perfekt korreliert. Das Telegraphenrauschen

## 1 Grundlagen

ist ein Spezialfall und zeigt ein Lorentz-Spektrum. Es wird in Abschnitt 1.4.2.4 näher erläutert.

Für diese Arbeit spielt das  $1/f$ -Rauschen eine wichtige Rolle und soll daher im Folgenden detailliert dargestellt werden.

### 1.4.2.1 $1/f$ -Rauschen

Bei tiefen Frequenzen wird das Rauschspektrum vom  $1/f$ -Rauschen dominiert, wobei die PSD  $S_V$  proportional zu  $1/f^\alpha$  ist, mit  $\alpha = 0.8 - 1.4$ . Dieses Verhalten ist ein universeller Effekt, der bei vielen Phänomenen zu beobachten ist, beispielsweise beim menschlichen Herzschlag [34], bei Erdbeben [35], bei Musiksendern [36] oder bei der Lichtintensität von Quasaren [37]. Bis jetzt gibt es keine universelle Theorie, die die Allgegenwart des  $1/f$ -Verhaltens erklären kann. Im Bereich der Festkörperphysik existieren aber verschiedene phänomenologische und mathematische Modelle.

Abbildung 1.4.2 zeigt ein typisches  $1/f$ -Rauschspektrum. (a) zeigt das mit Hilfe eines Signalanalysators gemessene Spannungssignal in der Zeitdomäne. In (b) ist eine dem Spannungssignal angepasste *Gauß-Verteilung* (rote Kurve) und in (c) das Rauschspektrum zu sehen, das durch Gleichung 1.3.11 berechnet wurde.

Das  $1/f$ -Verhalten wird bei der Messung von Widerständen in allen Bereichen der Festkörperphysik beobachtet. Es zeigt sich bei Halbleitern, Supraleitern, Spin-Glas-Systemen, magnetischen Tunnelübergängen, granularen Metallen, ferromagnetischen Halbmetallen, usw. [38].

### 1.4.2.2 Das Hooge-Modell

Ein einfaches Modell wurde von *Hooge* (1969) vorgeschlagen, in dem er das Rauschen verschiedener Messdaten anderer Autoren gegen passende Parameter aufgetragen hat, wie zum Beispiel gegen Spannung, Ladungsträgerkonzentration und Frequenz. Das Modell ließ sich erfolgreich bei den damaligen Messungen anwenden und lieferte auf einfache Art und Weise zugängliche Parameter für das  $1/f$ -Rauschen:

$$\frac{S_V}{V^2} = \frac{S_R}{R^2} = \frac{\gamma_H}{N_c f^\alpha} = \frac{\gamma_H}{n \Omega f^\alpha}, \quad (1.4.5)$$

wobei  $N_c = n \Omega$ ,  $n$  die Konzentration der Ladungsträger,  $\Omega$  das Volumen der Probe,  $\gamma_H = 2 \cdot 10^{-3}$  der *Hooge*-Koeffizient,  $\alpha = 1$  und  $f$  die Frequenz sind [39]. Der Versuch, diese Gleichung theoretisch herzuleiten, war nicht erfolgreich und spätere Messungen an verschiedenen Materialien haben gezeigt, dass der *Hooge*-Koeffizient temperatur- und stark materialabhängig und damit kein spezifischer

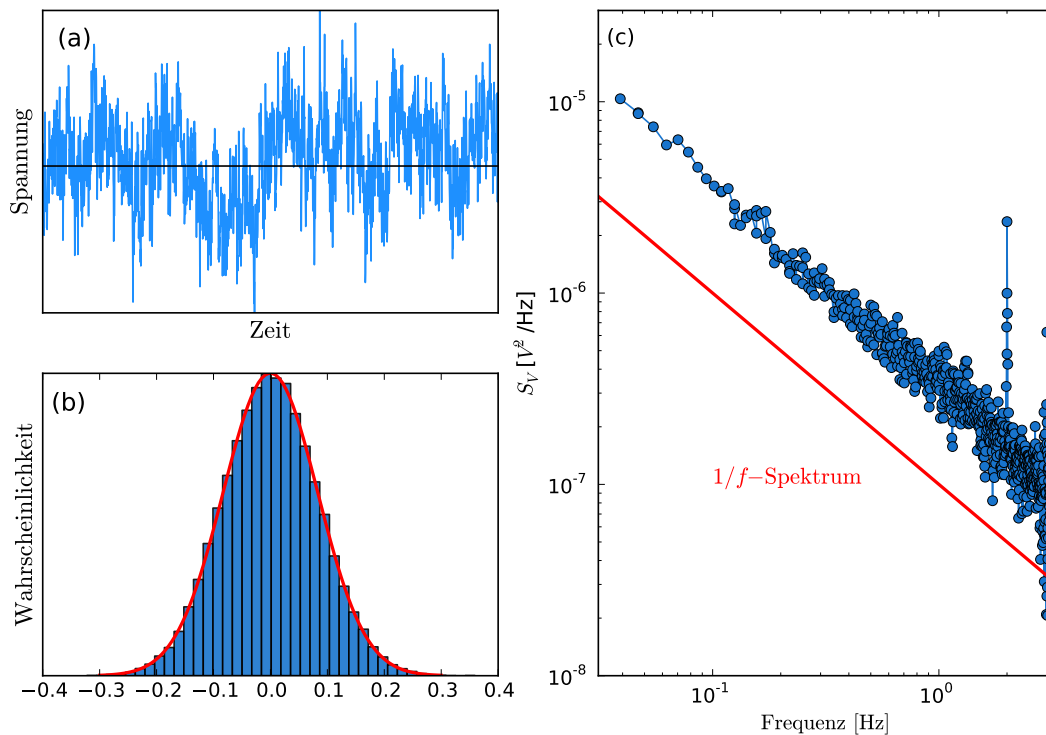


Abbildung 1.4.2: Ein typisches  $1/f$ -Rauschspektrum. (a) Gemessenes Spannungssignal gegen die Zeit. (b) Die Wahrscheinlichkeitsverteilung des Signals aus (a): die rote Linie entspricht einer *Gauß-Verteilung*. (c) Die aus dem Spannungssignal in (a) berechnete, spektrale Leistungsdichte (PSD) und die  $1/f$ -Funktion in Rot.

Parameter ist [40]. Variationen des *Hooge*-Koeffizienten sind zwischen  $10^{-6}$  und  $10^7$  beobachtet worden [34].

Die Abhängigkeit der PSD vom Quadrat des Stromes deutet darauf hin, dass die Fluktuationen vom Widerstand stammen und nicht vom angelegten Strom. Es wurde durch die Experimente von *Voss & Clarke* [41] festgestellt, dass der Strom nicht das  $1/f$ -Rauschen generiert, sondern nur als Sonde dient, um die Widerstandsfluktuationen zu detektieren. Die Ergebnisse von *Beck & Spruit* haben später bestätigt, dass ein Widerstand im Gleichgewicht  $1/f$ -Rauschen zeigt [42].

Allerdings wird die Abhängigkeit  $S_V \sim I^2$  ausgenutzt, um die Beiträge des  $1/f$ -Rauschens der Probe von denen der Messgeräte zu unterscheiden. Da die Geräte dauerhaft mit dem gleichen Strom versorgt werden, liefern sie auch immer den gleichen Beitrag am  $1/f$ -Rauschen, unabhängig vom Probenstrom. Dies gilt allerdings nur, solange kein besonderen Mechanismus erkennbar ist, wie dies zum Beispiel beim supraleitenden System FeSe [43].

### 1.4.2.3 Generations-Rekombinations-Rauschen

Abbildung 1.4.1 (d) zeigt ein typisches Spannungssignal bei der Generation und Rekombination von Elektron-Loch-Paaren in direkten Halbleitern. Das Signal entsteht beim Wechsel der Elektronen zwischen den Zuständen eines Zwei-Niveau-Systems. Ein Beispiel ist die gemessene Hall-Spannung in einer GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-Heterostruktur [28, 44]. In Abbildung 1.4.3 (a) ist ein Zwei-Niveau-System schematisch dargestellt, dessen Spektrum von *S. Machlup* (1954) berechnet wurde [45].

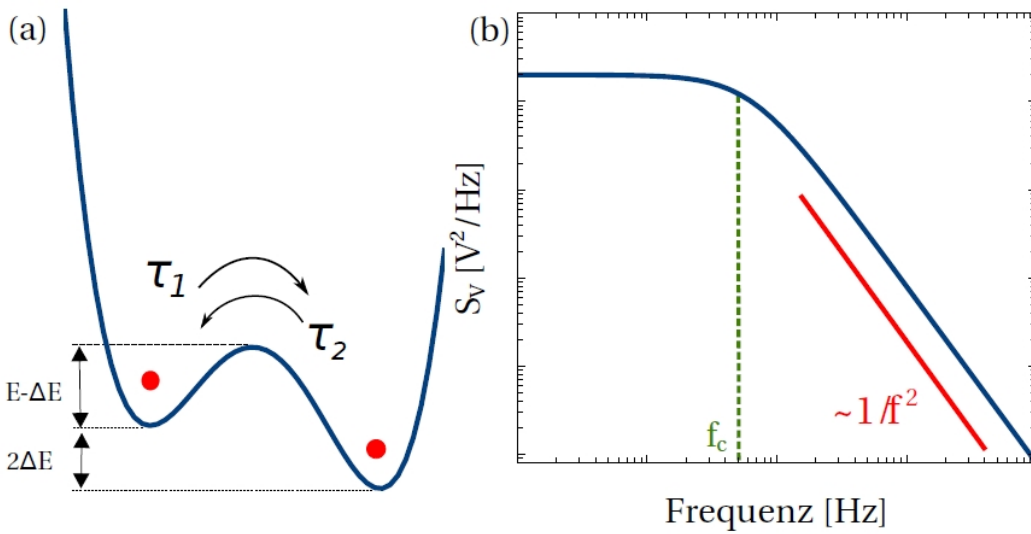


Abbildung 1.4.3: (a) Fluktuierendes Zwei-Niveau-System mit charakteristischen Energien und Zeitkonstanten. (b) Korrespondierendes Lorentz-Spektrum, nach [38, 46].

Diese Rauschart wird im Allgemeinen zufälliges Telegraphenrauschen genannt (englisch: random telegraph noise, RTN) und wird durch das Lorentz-Spektrum beschrieben (siehe Abbildung 1.4.3 (b)). Man kann die AKF  $\psi_x(\tau)$  eines Zwei-Niveau-Systems durch eine einfache Exponentialfunktion beschreiben:

$$\psi_x(\tau) = \overline{(\delta x)^2} \exp\left(\frac{-\tau}{\tau_c}\right), \quad (1.4.6)$$

(siehe Gleichung 1.3.7). Nach der *Wiener-Khinchin*-Beziehung (Gleichung 1.3.8) erhält man ein Lorentz-Spektrum, das auch als Lorentz-Fluktuator oder einfach Fluktuator bezeichnet wird:

$$S_V(f) = 4\overline{(\delta x)^2} \tau_c \frac{1}{1 + (f/f_c)^2}, \quad (1.4.7)$$

wobei  $\tau_1$  und  $\tau_2$  die charakteristischen Lebensdauern der Zustände sind und  $1/\tau_c =$

$1/\tau_1 + 1/\tau_2$  gilt. Abbildung 1.4.3 (a) zeigt schematisch zwei Zustände (rote Kreise) im Doppel-Potentialtopf mit zwei charakteristischen Lebensdauern  $\tau_1$  und  $\tau_2$ . Bei tiefen Frequenzen ist das Spektrum frequenzunabhängig (kein Gedächtnis-Effekt) und bei höheren Frequenzen proportional zu  $1/f^2$  (perfekt korreliert). Die Abknickfrequenz  $f_c = 1/2\pi\tau_c$  hängt mit den charakteristischen Zeitkonstanten des Prozesses zusammen [38, 47].

#### 1.4.2.4 Das Dutta-Dimon-Horn-Modell

Das *Dutta-Dimon-Horn-Modell*<sup>8</sup> (*DDH-Modell*) ist ein phänomenologisches Modell, das erfolgreich zur mathematischen Beschreibung des  $1/f$ -Rauschens eingesetzt wurde. Es besagt, dass durch die Superposition einer großen Zahl an unabhängigen Fluktuatoren, deren Amplituden gaußverteilt sind, das  $1/f$ -Rauschspektrum abgebildet werden kann. Mathematisch ausgedrückt ist das eine Integration über das Produkt der Zustandsdichte aller Fluktuatoren mit dem Lorentz-Spektrum (siehe Gleichung 1.4.7) [48, 49]:

$$S(f) \propto \int D(\tau) \frac{\tau}{1 + 4\pi^2\tau^2 f^2} d\tau. \quad (1.4.8)$$

*Du Pré* [50] und *Van der Ziel* [51] gingen davon aus, dass die verschiedenen kinetischen Anregungsprozesse thermisch aktiviert sind und sich deren Relaxationszeiten  $\tau$  mit einer Exponentialfunktion beschreiben lassen:

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E}{k_B T}\right), \quad (1.4.9)$$

wobei  $E$  die Aktivierungsenergie und  $\tau_0 \approx 10^{-14} - 10^{-11}$  s die charakteristische Zeitkonstante (in der Größenordnung der inversen Phononenfrequenz) sind. Mit  $D(\tau) \propto 1/\tau$  und Gleichung 1.4.9 lässt sich die Gleichung 1.4.8 lösen:

$$S(f) \propto \int \frac{\tau(E)}{1 + \tau(E)^2 4\pi^2 f^2} D(E) dE \quad (1.4.10)$$

und in guter Näherung, wenn die Verteilung  $D(E)$  groß gegenüber  $k_B T$  ist, erhält man:

$$S(f, T) \propto \frac{k_B T}{2\pi f} D(E, T). \quad (1.4.11)$$

---

<sup>8</sup>DUTTA-DIMON-HORN (1979)

## 1 Grundlagen

Aus dieser Gleichung lässt sich die Verteilung  $D(E)$  berechnen zu:

$$D(E) \propto \frac{2\pi f S(f, T)}{k_B T}. \quad (1.4.12)$$

Die Übergangsenergie  $E$  ist mit der Frequenz und der Temperatur verknüpft:

$$E \approx -k_B T \ln(2\pi f \tau_0). \quad (1.4.13)$$

Für den Fall, dass  $D(E)$  nur von der Energie  $E$  und nicht von der Temperatur  $T$  abhängt, lässt sich durch Gleichung 1.4.11 eine sehr wichtige Beziehung für den Frequenzexponenten des  $1/f$ -Rauschens im DDH-Modell herleiten [48]:

$$\alpha(T) = 1 - \frac{1}{\ln(2\pi f \tau_0)} \left[ \frac{\partial \ln S(f, T)}{\partial \ln T} - 1 \right]. \quad (1.4.14)$$

Später wurde dieses Modell durch das Hinzufügen einer temperaturabhängigen Funktion  $g(T) = a \cdot T^b$  erweitert. Dies ist notwendig, wenn der gemessene Exponent  $\alpha_{meas}(T)$  um einen konstanten Wert von dem berechneten  $\alpha_{calc}(T)$  abweicht. Da im Experiment sowohl  $S(f, T)$  als auch  $\alpha_{meas}(T)$  gemessen werden, können mit Hilfe von Gleichung 1.4.14 die Annahmen des Modells überprüft werden.

Diese Korrektur wirkt auf die Gleichung 1.4.10:

$$S(f) \propto \int g(T) \frac{\tau(E)}{1 + \tau(E)^2 4\pi^2 f^2} D(E) dE. \quad (1.4.15)$$

Damit erhält man die modifizierten Gleichungen [52]:

$$\alpha(T) = 1 - \frac{1}{\ln(2\pi f \tau_0)} \left[ \frac{\partial \ln S(f, T)}{\partial \ln T} - \frac{\partial \ln g(T)}{\partial \ln T} - 1 \right], \quad (1.4.16)$$

$$D(E) \propto \frac{2\pi f S(f, T)}{k_B T g(T)}. \quad (1.4.17)$$

Das *DDH-Modell* ist ein phänomenologisches Modell für viele Systeme in der Festkörperphysik und ermöglicht in vielen Fällen den Zugang zu wichtigen Prozessen und ihren Energien, die eine Rolle bei der Dynamik des Transports spielen.

An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass man keinen Hinweis auf die Zwei-Niveau-Systemen und die zugehörige Tunnelprozesse hat. Außerdem kann es das universelle Auftreten des  $1/f$ -Rauschens nicht erklären [53].

## 1.5 Dynamik der Fluktuatoren

### 1.5.1 Allgemeine Beschreibung des Rauschspektrums

Es kommt vor, dass bei realen Messungen nicht nur  $1/f$ -Rauschen zu beobachten ist, sondern auch Generations-Rekombinations-Rauschen (einzelner Fluktuatoren) und thermisches Rauschen. Gleichung 1.5.1 beschreibt die Rauschamplituden als Summe dieser drei Arten

$$S_V = \frac{A}{f^\alpha} + \sum_i \frac{B_i}{1 + (2\pi f\tau_i)^2} + 4k_B T R, \quad (1.5.1)$$

wobei  $A$  die Amplitude vom  $1/f$ -Rauschen bei 1 Hz,  $B_i$  die Amplitude,  $\tau_i$  die Zeitkonstante vom  $i$ -ten Fluktuator und der mittlere Term die Summe der einzelnen aktiven Fluktuatoren darstellen [54].

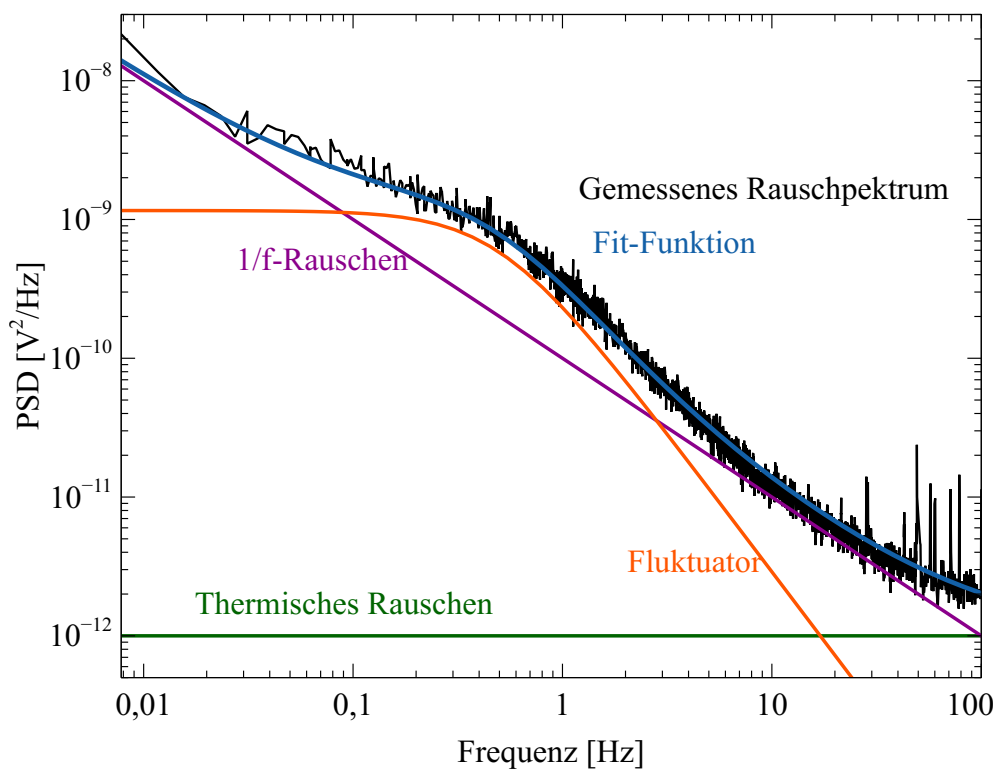


Abbildung 1.5.1: Überlagerung verschiedener Rauscharten: Das gemessene Spektrum (schwarz) ist die Summe (blau) aus  $1/f$ -Rauschen (violett), einem einzelnen Fluktuator (orange) und thermischem Rauschen (grün).

Abbildung 1.5.1 zeigt ein typisches gemessenes Spektrum in Schwarz, das durch

## 1 Grundlagen

Superposition der drei Rauscharten beschrieben werden kann.

Solche Spektren wurden schon in vielen Systemen beobachtet, zum Beispiel bei den organischen Ladungstransfersalzen (OCTS) [46], beim zweidimensionalen Elektrogenas in AlGaAs-Systemen [55].

Bei Vernachlässigung des thermischen Rauschens kann Gleichung 1.5.1 für einen aktiven Fluktuator nach [46] umgeschrieben werden

$$\frac{S_R(f)}{R^2} \cdot f = \underbrace{\frac{A}{f^{(\alpha-1)}}}_{1/f\text{-Hintergrund}} + \underbrace{\frac{B}{4\pi^3} \cdot \frac{f}{f^2 + f_c^2}}_{\text{Fluktuator}}. \quad (1.5.2)$$

Die Abknickfrequenz  $f_c$  kann in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern wie Temperatur, elektrischem Feld, Anregungsfrequenz des Wechselstroms oder Magnetfeld in einem *Arrhenius*-Plot aufgetragen werden. In vielen Fällen kann man die Energie der Fluktuationsprozesse in diesem Plot bestimmen, insbesondere wenn das Verhalten auf thermischer Aktivierung beruht.

### 1.5.2 Wechselwirkung zwischen verschiedenen Fluktuatoren

Bis hierher wurde angenommen, dass die Fluktuatoren nicht miteinander wechselwirken. Kommt nun eine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Fluktuatoren ins Spiel, muss das Modell modifiziert werden, wie zum Beispiel bei Gläsern. In vielen Publikationen wird der Ansatz gewählt, dass ein Zwei-Niveau-System durch ein elektrisches Dipolmoment ersetzt wird, mit Hilfe dessen sich die Wechselwirkung zwischen verschiedenen Zwei-Niveau-Systemen berechnen lässt [53, 56, 57]. Eine Möglichkeit besteht darin, dass ein angeregtes Zwei-Niveau-System entweder durch Emittieren eines Phonons oder durch Energietransfer an ein anderes Zwei-Niveau-System relaxieren kann. Für die Relaxationsrate  $1/\tau$  ergibt sich dann

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\text{Phonon}}} + B_0 \left( \frac{\Delta_0}{\sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}} \right) k_B T, \quad (1.5.3)$$

wobei  $\Delta_0 = 2\Delta E$  die Energiedifferenz (siehe Abbildung 1.4.3),  $\Delta$  das sogenannte Tunneling-Matrixelement und  $B_0 \sim T_C^2 \coth(E/k_B T)|_{E=k_B T}$  eine Konstante sind.

Nach [58] ist die Energie der Zwei-Niveau-Systeme nicht relevant, falls  $E < k_B T$ , da beide Energieniveaus fast die gleiche Besetzungswahrscheinlichkeit haben. Daher sind nur Prozesse mit Energien  $E \sim k_B T$  relevant für die Änderung der dielektrischen Konstante.

Bei  $T_C$  sind die Relaxationsraten durch Emission eines Phonons und durch Wechselwirkung mit einem anderen Zwei-Niveau-System gleich. Eine ausführliche Rech-



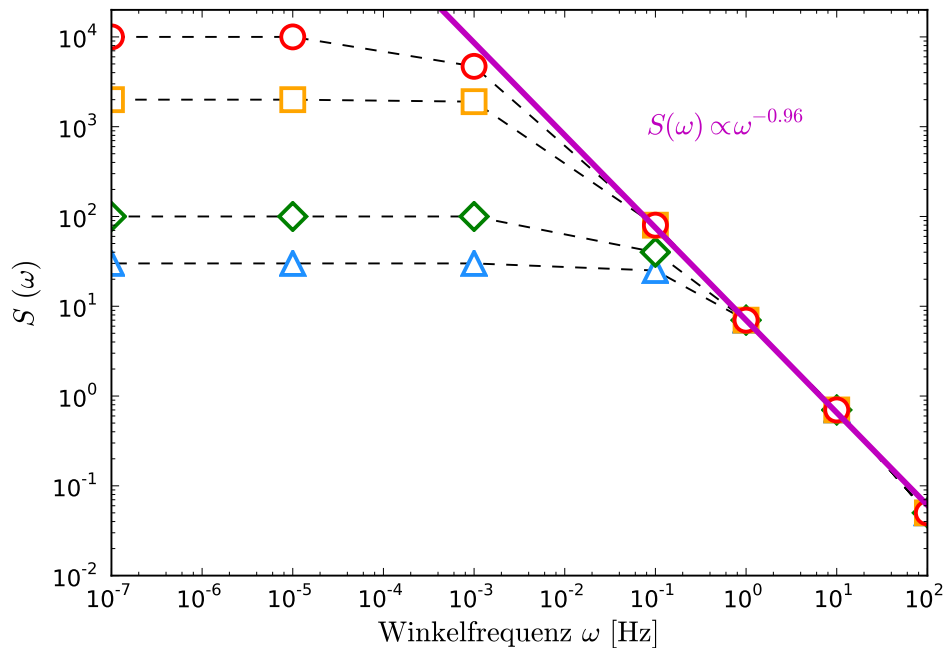


Abbildung 1.5.2: Doppellogarithmischer Plot der PSD  $S(\omega)$  gegen die Frequenz  $\omega$  für wechselwirkende Zwei-Niveau-Systeme. Bei hohen Frequenzen ist  $1/f$ -Verhalten zu sehen und bei tiefen Frequenzen ist die PSD flach. Parameter für die Berechnung: Material  $\text{SiO}_2$ , rot:  $T = 0.1$  K,  $\Delta_0^{\min} = 2 \times 10^{-6}$  K, orange:  $T = 2$  K,  $\Delta_0^{\min} = 2 \times 10^{-6}$  K, grün:  $T = 0.1$  K,  $\Delta_0^{\min} = 2 \times 10^{-5}$  K, blau:  $T = 2$  K,  $\Delta_0^{\min} = 2 \times 10^{-5}$  K, nach [57].

nung zeigt, wie sich die PSD bei wechselwirkenden Zwei-Niveau-Systemen verhält. In Abbildung 1.5.2 ist das mit verschiedenen Parametern berechnete Verhalten für  $\text{SiO}_2$  zu sehen: Nur bei hohen Frequenzen liegt  $1/f$ -Rauschen vor. Man erkennt, dass die Wechselwirkung zwischen Zwei-Niveau-Systemen einen vernachlässigbaren Effekt auf das Rauschen hat [57].

### 1.5.3 Korrelationskoeffizient

Zusammenhänge zwischen den verschiedenen gemessenen Spektren sind in vielen Fällen eine wichtige Informationsquelle für die Dynamik in einem System und daher bietet der Korrelationskoeffizient eine Möglichkeit, stochastische Prozesse besser zu analysieren. In Abbildung 1.5.3 sind verschiedene Punktwolken<sup>9</sup> und

<sup>9</sup>Für zwei gemessene Signale  $X_1$  und  $X_2$  präsentiert die Punktwolke der Plot beiden Signale gegeneinander ( $X_1[i], X_2[i]$ ).

## 1 Grundlagen

ihre dazugehörigen Korrelationskoeffizienten zu sehen<sup>10,11</sup>.

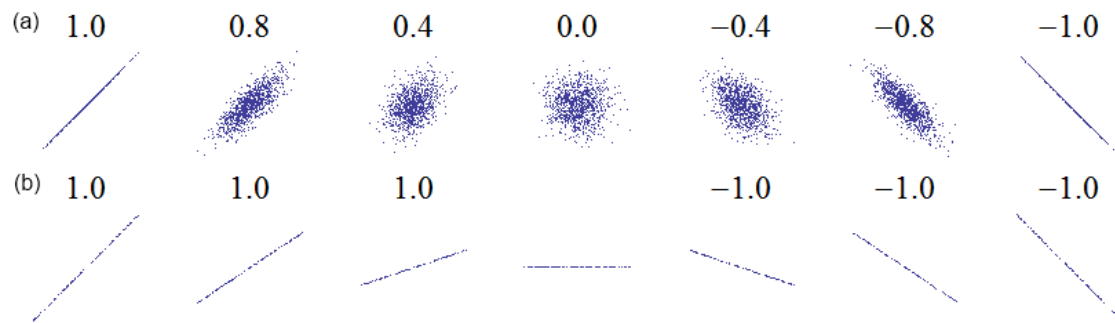


Abbildung 1.5.3: Verschiedene Punktwolken zusammen mit dem für sie jeweils berechneten Korrelationskoeffizienten  $\rho_x$ , der im Bereich  $[-1.0, \dots, 1.0]$  definiert ist. (a)  $\rho_x$  zeigt die Streuung der Punktwolke sowie die generelle Richtung der linearen Abhängigkeit von zwei Signalen. (b) Die Steilheit der Punktwolke lässt sich durch  $\rho_x$  nicht wiedergeben. Ist die Steigung Null (Mitte), ist für die Varianz  $\sigma_y^2 = 0$  gar kein Korrelationskoeffizient definiert. [Nach Wikipedia].

In der Praxis verwendet man den Mittelwert der Spektren, um ein besser auswertbares Spektrum zu erhalten. Allerdings geht dadurch die Zeitabhängigkeit verloren. Wenn man aber alle einzelnen Spektren behält und jedem einen Zeitpunkt  $t_i$  zuordnet, kann eine erneute Analyse der verschiedenen Rauschspektren durch FT zu wichtigen Informationen über die Korrelation der Fluktuatoren führen (siehe Abschnitt 1.4.2.4), allerdings nur unter der Voraussetzung, dass  $\Delta t = t_{i+1} - t_i = \text{const.}$  ist [59, 60, 61]. Die Zahl der Punkte pro Spektrum reduziert sich auf sieben Punkte, wenn die Methode der Erzeugung von Oktaven angewandt wird (siehe dazu Abschnitt 1.5.4). Der Vergleich von den Ergebnissen der verschiedenen Oktaven liefert die sogenannte Kovarianzmatrix  $\rho_{i,j}$  [14]. Sie beschreibt die Kovarianz von Oktave  $i$  und Oktave  $j$  normiert nach der Standardabweichung der Oktaven  $i$  und  $j$

$$\rho_{i,j} = \frac{\sum_{n=1}^{N_S} (Q_{i,n} - \langle Q_i \rangle) (Q_{j,n} - \langle Q_j \rangle) / (N_S - 1)}{\sigma_i \sigma_j}, \quad (1.5.4)$$

wobei  $Q_{i,n}$  die Rauschleistung in Oktave  $i$  des  $n$ -ten Spektrums,  $\langle Q_i \rangle$  den Mittelwert der Rauschleistung der Oktave  $i$  für die Gesamtzahl der Spektren  $N_S$  und  $\sigma_i$  die Standardabweichung der Oktave  $i$  darstellen. Die Indizes  $i$  und  $j$  laufen von

<sup>10</sup><http://de.wikipedia.org/wiki/Korrelationskoeffizient>

<sup>11</sup>[http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/02/Correlation\\_examples.png](http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/02/Correlation_examples.png)

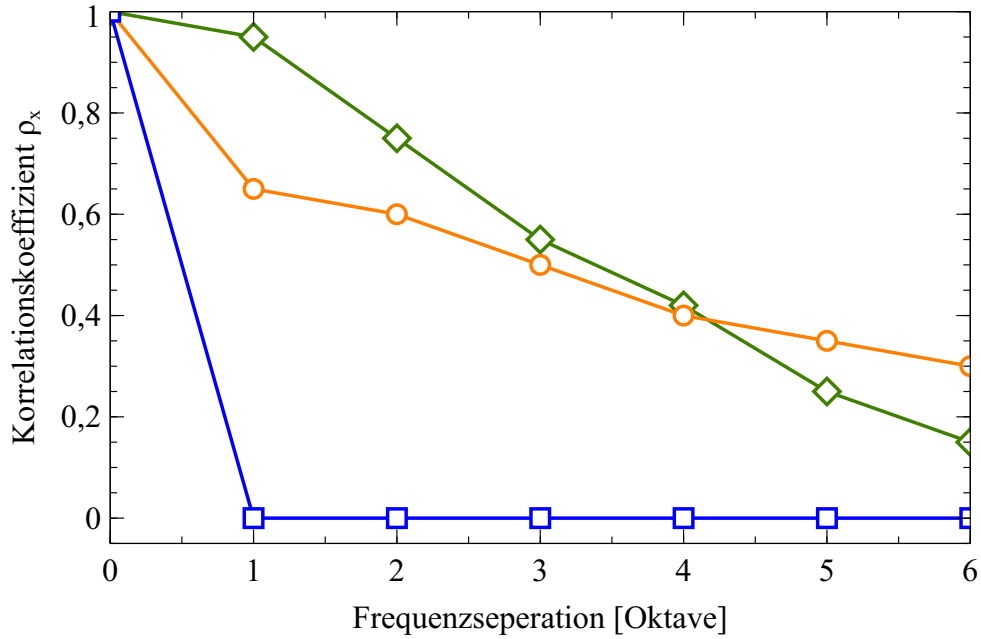


Abbildung 1.5.4: Korrelationskoeffizient  $\rho_x$  in Abhängigkeit von den berechneten Oktaven: Es ist das Ergebnis für einen Widerstand von  $1\text{ M}\Omega$  in Blau, das vorhergesagte Resultat für voneinander unabhängige *Lorenz-Spektren* in Grün und Daten von undotiertem  $\alpha\text{-Si:H}$  bei  $435\text{ K}$  in Orange zu sehen, nach [62].

1 bis 7 und  $N_S$  beträgt typischerweise 1024 (beziehungsweise  $N_S = 2^z$ ,  $z$  ganzzahlig). Man definiert das System als perfekt korreliert für  $\rho_{i,j} = 1$  und perfekt antikorreliert für  $\rho_{i,j} = -1$ . Für  $\rho_{i,j} = 0$  ist das Rauschsignal unkorreliert (siehe dazu Abbildung 1.5.4). Die Matrix hat folgende Gestalt

$$\rho_{i,j} = \begin{pmatrix} 1 & \rho_{1,2} & \rho_{1,3} & \rho_{1,4} & \rho_{1,5} & \rho_{1,6} & \rho_{1,7} \\ \rho_{1,2} & 1 & \rho_{2,3} & \rho_{2,4} & \rho_{2,5} & \rho_{2,6} & \rho_{2,7} \\ \rho_{1,3} & \rho_{2,3} & 1 & \rho_{3,4} & \rho_{3,5} & \rho_{3,6} & \rho_{3,7} \\ \rho_{1,4} & \rho_{2,4} & \rho_{3,4} & 1 & \rho_{4,5} & \rho_{4,6} & \rho_{4,7} \\ \rho_{1,5} & \rho_{2,5} & \rho_{3,5} & \rho_{4,5} & 1 & \rho_{5,6} & \rho_{5,7} \\ \rho_{1,6} & \rho_{2,6} & \rho_{3,6} & \rho_{4,6} & \rho_{5,6} & 1 & \rho_{6,7} \\ \rho_{1,7} & \rho_{2,7} & \rho_{3,7} & \rho_{4,7} & \rho_{5,7} & \rho_{6,7} & 1 \end{pmatrix}. \quad (1.5.5)$$

Man bildet die Mittelwerte der Hauptdiagonale und der sekundären Diagonalen in der Kovarianzmatrix  $\rho_{i,j}$ , was in diesem Fall eine *Toeplitz-Matrix*<sup>12</sup> ergibt. Der Korrelationskoeffizient<sup>13</sup>  $\rho_x$  ( $x = |i - j|$ ) oder die Produkt-Moment-Korrelation

<sup>12</sup>O. TOEPLITZ (1911)

<sup>13</sup>A. BRAVAIS (1811-1863) und K. PEARSON (1857-1936)

## 1 Grundlagen

ist auch als *Pearson*-Korrelation bekannt [62, 59]. Eine detaillierte mathematische Beschreibung findet man in [63]. Für die Hauptdiagonale gilt  $i = j$  und damit  $\rho_x = \rho_0 = 1$ , weil jeder Prozess perfekt mit sich selbst korreliert ist. Bei unkorrelierten Prozessen gilt  $\rho_x(i \neq j) = 0$ .

Für den Fall, dass das  $1/f$ -Rauschen durch unabhängige Fluktuatoren beschrieben werden kann, ist der resultierende Mittelwert des Korrelationskoeffizienten gleich  $r/\sinh(r)$ . Dabei sind  $r = \ln(f_i/f_j)$  und  $f_i$  und  $f_j$  die Mittenfrequenzen<sup>14</sup> (englisch: center frequency) der Oktaven  $i$  und  $j$  [61, 62, 64]. Die Amplituden dieser Fluktuatoren sind bei  $1/f$ -Rauschen normalerweise gaußverteilt. Bei nicht *Gauß*-verteilten Amplituden tritt ein Überlapp der Fluktuatoren auf, was zu einem Abfall des Korrelationskoeffizienten führt, wenn er gegen die Oktaven aufgetragen wird [62, 57].

### 1.5.4 Das Zweite Spektrum des Rauschens

Die meisten natürlichen Prozesse weisen eine *Gauß*-Verteilung auf, zum Beispiel das thermische Rauschen, und werden deshalb als *Gaußsche* Prozesse bezeichnet. Im mathematischen Sinn folgt die Verteilung der Amplituden über die einzelnen Frequenzen einer *Gauß*-Verteilung.

Die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Variable  $X$  ist definiert als

$$f_x = \frac{1}{\sigma_X \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{(x - \bar{X})^2}{2\sigma_X^2} \right], \quad (1.5.6)$$

wobei  $\sigma_X^2$  die Varianz und  $\bar{X}$  der Erwartungswert sind. Sind  $X_1(t)$  und  $X_2(t)$  *Gaußsche* Prozesse, dann sind sie unabhängig voneinander. Trägt man die Messwerte zweier Messungen gegeneinander auf, erhält man eine kreisförmige Punktwolke mit einem Korrelationskoeffizienten  $\rho_x = 0$ , siehe Abbildung 1.5.3.

Bei konstanten Bedingungen sind die PSD-Werte für eine Oktave im Frequenzraum im Allgemeinen auch gaußverteilt. In vielen Veröffentlichungen wird von einer Abweichung des sogenannten *Zweiten Spektrums* vom weißen Verhalten bei verschiedenen Systemen berichtet [65, 66, 64, 62, 67]. Um dieses Phänomen zu untersuchen, berechnet man das Zweite Spektrum des Rauschens. Viele Publikationen berichten von Abweichung vom Gauß-Verhalten bei Coulomb-Gläser in Si-Inversionsschichten [68] und bei einiger Metall-Isolator-Übergänge wie in Si:P(B) [69].

Es existieren drei Methoden das Zweite Spektrum zu berechnen:

---

<sup>14</sup>Mittenfrequenz entspricht dem geometrischen Mittel zweier Frequenzen.

1. Für das Zweite Spektrum  $S_V^{(2)}$  benötigt man  $n$  Messungen des ersten Rausch-

spektrums mit  $m$  Werten, das heißt  $S_V [1, j] = \begin{pmatrix} S_{11} \\ S_{12} \\ \vdots \\ S_{1m} \end{pmatrix}$  mit  $j = 1, \dots, m$

und das letzte Spektrum ist  $S_V [n, j] = \begin{pmatrix} S_{n1} \\ S_{n2} \\ \vdots \\ S_{nm} \end{pmatrix}$ . Dies lässt sich als Matrix

schreiben:  $S_V = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{21} & \cdots & S_{n1} \\ S_{12} & S_{22} & & \\ \vdots & & \ddots & \\ S_{1m} & S_{2m} & & S_{nm} \end{pmatrix}$ . Man ordnet jetzt jedem Spek-

trum einen Zeitpunkt zu, zum Beispiel den Zeitpunkt als die Messung für das Spektrum  $n$  gestartet wurde. Es ist an dieser Stelle wichtig, dass die Zeitdifferenz  $\Delta t$  zwischen  $S_V^{(i,m)}$  und  $S_V^{(i+1,m)}$  konstant ist.  $T = (t_1 \ t_2 \ \cdots \ t_n)$  ist dann der Zeitvektor, der den  $n$  Spektren zugeordnet wurde.  $n$  ist normalerweise ein Vielfaches von 1024 und  $m = 400$  beziehungsweise 800. Wir berechnen das Rauschspektrum von  $S_V [i, j]$ , mit  $i = 1, \dots, n, j = \text{const.}$ , als Funktion von  $T$  und erhalten damit das zweite Spektrum  $S_V^{(2)}$  für jeden Punkt im Frequenzraum. In anderen Worten wird die PSD für jede Zeile separat berechnet [57]:

$$S_V^{(2)} [n, m] = PSD(S_V [n, m]) = \begin{pmatrix} PSD(S_V [n, 1]) \\ PSD(S_V [n, 2]) \\ \vdots \\ PSD(S_V [n, m]) \end{pmatrix}. \quad (1.5.7)$$

2. Ähnlich zur ersten Methode bildet man hier die Summe von allen Werten eines Spektrums innerhalb einer Oktave, wodurch die Zahl der Punkte von 400 auf 6 beziehungsweise 7 Punkte reduziert werden kann. Eine Oktave ist der Frequenzbereich zwischen  $f$  und  $2f$ : Für ein 100 Hz-Rauschspektrum können zwischen 50 Hz und 100 Hz genau 200 Punkte und zwischen 25 Hz und 50 Hz genau 100 Punkte aufsummiert werden. Von jeder Oktave erhält man nur einen Wert und berechnet dann die PSD für jede Zeile separat

## 1 Grundlagen

[60, 61, 62, 57]:

$$S_V^{(2)} [n, j] = PSD (S_V [n, j]) = \begin{pmatrix} PSD (S_V [n, 1]) \\ PSD (S_V [n, 2]) \\ \vdots \\ PSD (S_V [n, 6]) \end{pmatrix}, \quad j = [1, 2, \dots, 6] \quad (1.5.8)$$

3. Zur Berechnung der ersten Spektren wird bei dieser Methode die Wavelet-Transformation (*Haar-Transformation*) anstelle der FT verwendet. Damit wird die Matrix  $S_V$  gebildet und das zweite Spektrum mittels Methode 2 berechnet [57] (siehe Abschnitt 4.7.3).

### 1.5.5 Interpretation des Zweiten Spektrums

Behandelt man Zwei-Niveau-Systeme, wie in Glas-Systeme, im Rahmen einer Spin-Glas-Theorie, so lässt sich das Verhalten des zweiten Spektrums, das durch die Wechselwirkung der Fluktuatoren miteinander zustande kommt, möglicherweise mit dem Droplet-Modell des Spin-Glases oder dem Hierarchie-Modell erklären. Diesen beiden Modelle werden im folgenden erläutert. Ein Beispiel sind die Messungen des Zweiten Spektrums an dem Spin-Glas System  $n^+$ -Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te [70].

#### 1.5.5.1 Das Droplet-Modell

Alternativ zu Modellen, die sich mit Domänenwände befassen, wurden Anfang der 1980er Jahren andere Ansätze diskutiert [71, 72, 73]. Diese Publikationen motivierten einen völlig anderen Ansatz zur Theorie der Spin-Gläser. Durch die Erweiterung dieser Ansätze wurde das Droplet-Modell (englisch: droplet: Tröpfchen) von *Fisher* und *Huse* [74] entwickelt, eine phänomenologische Theorie, die sich mit Anregungen zwischen benachbarten Droplets in Ising-Spin-Gläsern beschäftigt. Die Grundidee ist, dass ein *Tröpfchen* der Längenskala  $L$  am Punkt  $x_i$  im Grundzustand die niedrigste Anregungsenergie besitzt.

Die freie Energie  $F_L$  skaliert mit  $L^\theta$ :  $F_L \propto \Upsilon(T) L^\theta$ , wobei  $L$  die Längenskala des Clusters und  $\Upsilon$  die sogenannte „stiffness“-Konstante sind, und  $\theta$  eine betragsmäßig kleine Potenz darstellt. Es wird darüber hinaus angenommen, dass eine thermische Anregung der Droplets über eine Energiebarriere stattfindet, wobei die freie Energie  $F_L$  von der Größenordnung der thermischen Energie ist:  $F_L \approx k_B T \ll \Upsilon L^\theta$ . Unter der Berücksichtigung der Ausdehnung von Droplets sind die typischen freien Energiebarrieren  $F_L^* \propto L^\psi$ , wobei  $\psi$  ein neuer unabhängiger Exponent mit  $\theta \leq \psi \leq d - 1$  und  $d$  die Dimension ist. Die charakteristische Zeit für die Bildung oder Ausdehnung von Droplets ist:

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{F_L^*}{k_B T}\right) \quad \text{oder} \quad \ln\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right) \sim \frac{L^\psi}{k_B T}. \quad (1.5.9)$$

Das führt zu einem langsamen logarithmischen Zerfall von zeitlichen Korrelationen und damit ist die AKF:

$$A(t) \sim (\ln t)^{-\theta/\psi}. \quad (1.5.10)$$

Diese Art von Berechnung führt dazu, dass das Droplet-Modell ein  $1/f$ -Rauschspektrum liefert [47].

Im Modell flippen komplette Spin-Cluster beziehungsweise Spin-Droplets kohärent und verursachen Fluktuationen in der Magnetisierung [75, 76, 77]. Die Zahl der großen Cluster ist geringer als die der kleinen Cluster, aber da die kleinen häufiger flippen als die größeren, leisten erstere einen größeren Beitrag für die niedrigeren Frequenzen und die kleinen Cluster einen stärkeren Beitrag für die höheren Frequenzen. Nach diesem Modell besteht keine Wechselwirkung zwischen den Fluktuatoren und damit ist das Zweite Spektrum in einfachster Näherung weiß. Da aber die großen Cluster eine größere Neigung zur Wechselwirkung aufweisen, erwartet man bei tiefen Frequenzen eine erhöhte Amplitude im ersten Spektrum [57].

### 1.5.5.2 Das Hierarchie-Modell

Ein endlicher Korrelationskoeffizient  $\rho_0 > 0$  (siehe Abschnitt 1.5.3) lässt vermuten, dass das  $1/f$ -Rauschen keine Kombination von unabhängigen Fluktuatoren ist, sondern eine Folge von seriellen kinetischen Prozessen, die zu einem frequenzabhängigen Potenzgesetz des Zweiten Spektrums führt [62].

Abbildung 1.5.5 zeigt eine Baumstruktur des Hierarchie-Modells. Die Spinzustände werden durch die Endpunkte der untersten Zweige dargestellt. Um von einem Zustand zu einem beliebigen anderen zu gelangen, muss der kürzeste Pfad im Baumdiagramm gefunden werden, welcher die beiden Zustände verbindet. Der Abstand zwischen dem Ausgangszustand und dem im kürzesten Pfad höchst gelegenen Knoten wird als *Hamming-Abstand*  $D$  bezeichnet. Der sogenannte Überlappungszustand  $q$  ist am größten zwischen den Zuständen mit dem niedrigsten  $D$ . Die Barrierenhöhe zwischen zwei beliebigen Zuständen ist eine endliche, monoton steigende Funktion von  $D$ . So wird auf der Zeitskala von einem gegebenen Experiment nur ein Teil der Hierarchie, zum Beispiel der in der Abbildung orange gefärbte Ast, untersucht. Diese Baumstruktur dient dazu, das physikalische Problem modellhaft und vereinfacht zu beschreiben [61, 57, 66]. Für mehr Details zum allgemeinen Hierarchie-Modell siehe [61, 66, 79, 80, 81, 82].

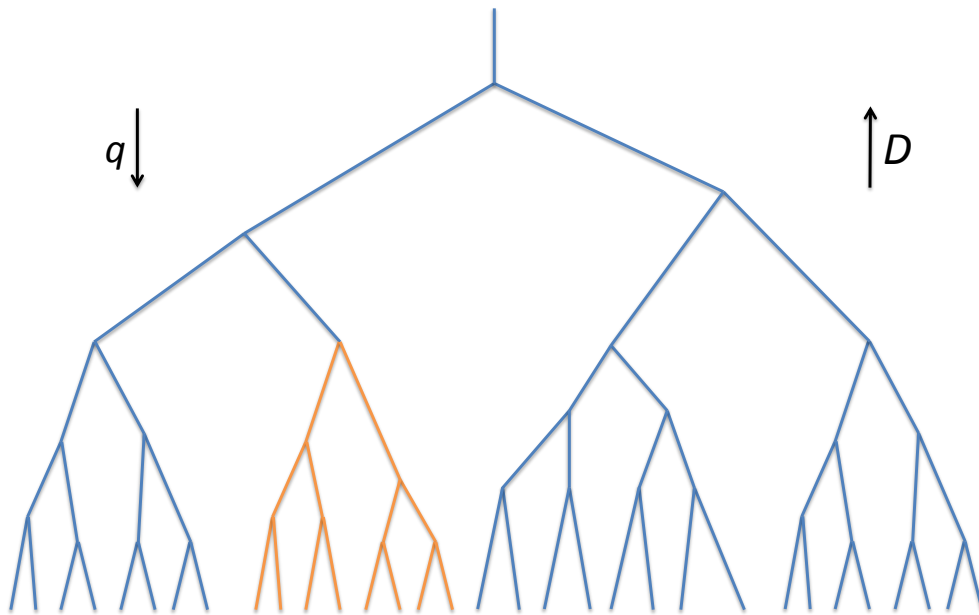


Abbildung 1.5.5: Schematische Darstellung der Baumstruktur des Hierarchie-Modells. Nach [78, 66].

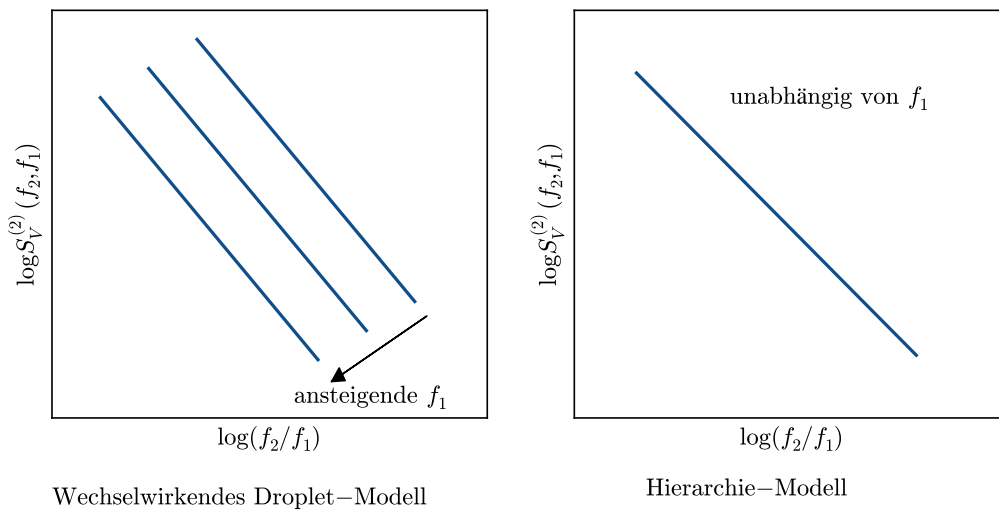


Abbildung 1.5.6: Das Zweite Spektrum als Funktion von  $(f_2/f_1)$  für verschiedene  $f_1$  für das wechselwirkende Droplet-Modell und das Hierarchie-Modell.



Abbildung 1.5.6 zeigt die Ergebnisse beider Modelle als Funktionen von  $(f_2/f_1)$ , wobei  $f_2$  das Frequenzband repräsentiert, von dem das erste Spektrum abgeleitet wurde und  $f_1$  die Frequenzskala ( $x$ -Achse) des Zweiten Spektrums darstellt. Im Droplet-Modell nimmt das Zweite Spektrum mit steigendem  $f_1$  ab, wohingegen es im Hierarchie-Modell unabhängig von  $f_1$  ist [57]. Messungen an Spin-Gläsern wie CuMn zeigen eine Übereinstimmung mit dem Hierarchie-Modell [66, 61].



## 2 Rauschen in perkolierenden Systemen

Viele Materialien wie Polymere oder Kunststoffe bestehen aus ungeordneten Einheiten (Clustern) mit unterschiedlicher Leitfähigkeit. Dies lässt sich modellhaft mit Hilfe eines zweidimensionalen Gitters darstellen, wobei ein Cluster durch einen Platz (oder mehrere Plätze) mit einer Besetzungswahrscheinlichkeit beschrieben werden kann.

Bei einem Gitter mit  $N$  Quadraten<sup>1</sup> und der Besetzungswahrscheinlichkeit  $p$  ist  $pN$  die Zahl der leitenden Quadrate und  $(1 - p)N$  die Zahl der isolierenden Quadrate. In der Perkolationstheorie wird jeder Platz des Gitters mit einer Wahrscheinlichkeit  $p$  zufällig besetzt, das heißt, es wird definiert, ob der Gitterplatz leitend oder isolierend ist. Durch Gruppierung von benachbarten leitenden Gitterplätzen kommt es zur Ausbildung von Clustern [83].

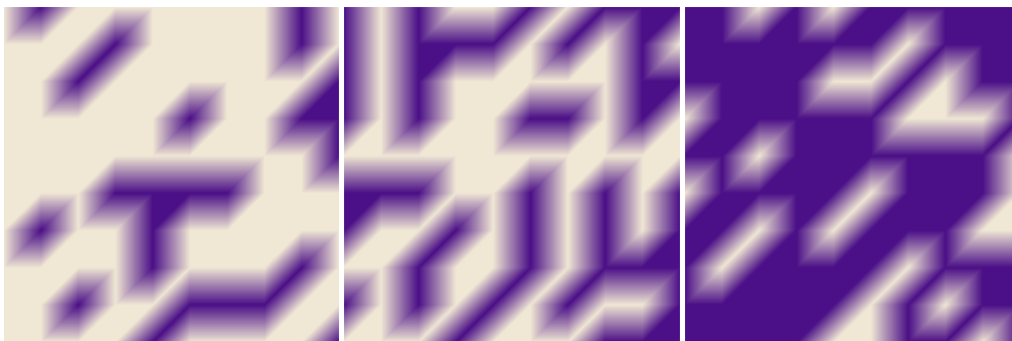


Abbildung 2.0.1: Beispiel eines Perkulationsgitters mit  $10 \times 10$  Gitterplätzen, wobei leitende Quadrate dunkel und isolierende Quadrate hell dargestellt sind. Von links nach rechts  $p = 0.2, 0.5, 0.75$ .

Abbildung 2.0.1 zeigt computergenerierte zweidimensionale Gitter mit  $10 \times 10$  Plätzen mit verschiedenen Besetzungswahrscheinlichkeiten. Man kann sehen, dass die leitenden Plätze bei  $p = 20\%$  nur isolierende Cluster (dunkel dargestellt) beziehungsweise Inseln<sup>2</sup> bilden können, was normalerweise keinen direkten Transport

<sup>1</sup> $N$  ist eine sehr große Zahl; ein Quadrat entspricht einem Platz.

<sup>2</sup>Eine Insel entspricht einem großen Cluster.

zwischen zwei gegenüberliegenden Seiten ermöglicht. Bei  $p = 50\%$  sind die leitenden Inseln größer aber immer noch voneinander isoliert. Ab einer kritischen Wahrscheinlichkeit beginnen die Inseln zu überlappen, womit ein direkter Transport zwischen zwei gegenüberliegenden Seiten erlaubt ist. Dies ist im dritten Beispiel mit  $p = 75\%$  zu sehen. Den Prozess nahe der kritischen Wahrscheinlichkeit nennt man *Perkolation* und diese spielt eine wichtige Rolle bei vielen kritischen Phänomenen, wie in der Nähe der Metall-Isolator-Übergängen. Man definiert die kritische Wahrscheinlichkeit als die sogenannte *Perkolationsschwelle*  $p_c$ , wo mindestens ein Cluster entsteht, der sich von einer Seite zur anderen Seite erstreckt. Dies kommt zustande, indem sich immer mehr und/oder größere Cluster bilden [83, 84].

## 2.1 Mathematische Beschreibung der Perkolationstheorie

Zuerst definiert man den Parameter  $h(p)$ , der die relative Häufigkeit des Auftretens von mindestens einem perkolierenden Cluster beschreibt. In der Abbildung (2.1.1, links) ist  $h$  als Funktion von  $p$  für verschiedene  $(L \times L)$ -Gitter zu sehen. Je größer  $L$  ist, desto schärfer ist der perkolierende Übergang bei  $p = 0.5927$ . Dabei macht  $h(p)$  einen Sprung bei  $p = p_c$  für  $L \rightarrow \infty$ .

Eine andere Definition ist zum Beispiel  $P_L$ :

$$P_L = \frac{\text{Anzahl der Quadrate des perkolierenden Clusters}}{\text{Anzahl aller Quadrate auf dem Gitter}} \quad (2.1.1)$$

In Abbildung 2.1.1 (rechts) ist  $P_L$  als Funktion von  $p$  für  $L = 20, 60, 100, 200$ , und  $400$  zu sehen. Für  $L \rightarrow \infty$  und  $p > p_c$  ist  $P_\infty \propto |p - p_c|^{5/36}$  und für  $p < p_c$  ist  $P_\infty \rightarrow 0$  und damit die Fluktuationskorrelationslänge  $\zeta \propto |T - T_c|^{-\nu}$  und die Clustergröße  $\zeta_P \propto |p - p_c|^{-\nu}$  wobei  $\nu$  der Exponent der Korrelationslänge ist. Man kann  $\zeta_P$  folgendermaßen definieren:

$$\zeta_P^2 = \frac{\sum_s s w_s R_s^2}{\sum_s s w_s} \quad (2.1.2)$$

mit

$$R_s^2 = s^{-1} \sum_{i=1}^s (\mathbf{r}_i - \mathbf{r})^2, \quad (2.1.3)$$

wobei  $\mathbf{r} = s^{-1} \sum_{i=1}^s \mathbf{r}_i$  und  $w$  die Wahrscheinlichkeit des Quadrates zu dem Cluster  $s$  zu gehören. Damit ist  $\zeta_P^2$  das Flächenausbreitungsmittel dividiert durch das

## 2.1 Mathematische Beschreibung der Perkolationstheorie

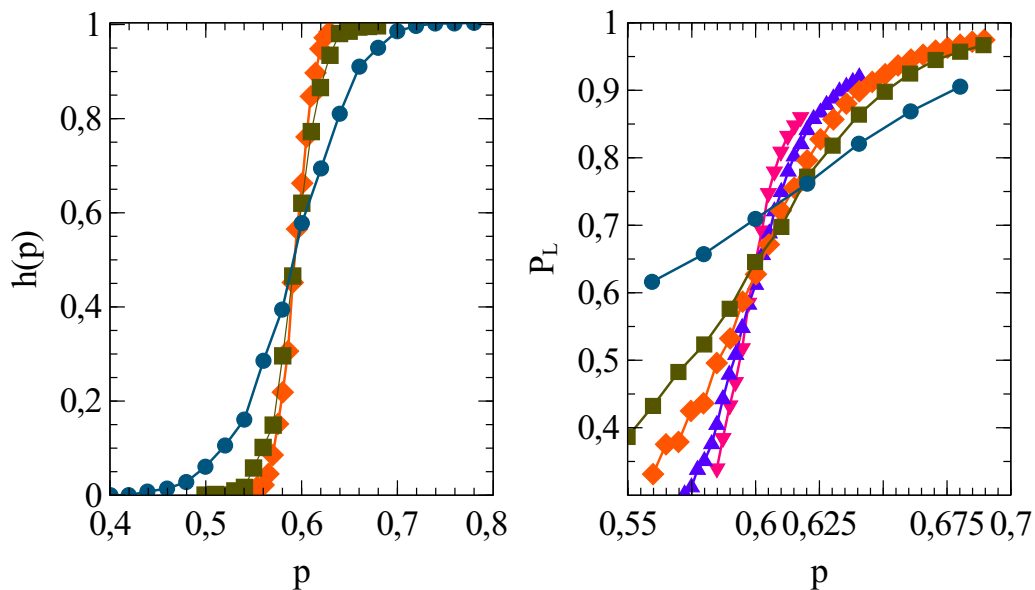


Abbildung 2.1.1: Links: relative Häufigkeit  $h(p)$  des Auftretens von mindestens einem perkolierenden Cluster als Funktion von  $p$  mit Gitter  $L = 20$  (blau),  $60$  (grün) und  $100$  (orange). Rechts:  $P_L$  als Funktion von  $p$  mit  $L = 20$  (blau),  $60$  (grün),  $100$  (orange),  $200$  (violett) und  $400$  (pink) nach [84].

Zahlenmittel  $\bar{s} = \sum_s s w_s$  und somit ein Maß für die mittlere Kompaktheit der Cluster [84]. Tabelle 2.1 zeigt einige wichtige Größen, die bei der Behandlung der Perkolationstheorie von Bedeutung sind.

Größe	Exponent	$d = 2$	$d = 3$	
Ordnungsparameter	$P_\infty(p) \propto (p - p_c)^\beta$	$\beta$	$5/36$	$0.417 \pm 0.003$
Korrelationslänge	$\xi(p) \propto  p - p_c ^{-\nu}$	$\nu$	$4/3$	$0.875 \pm 0.008$
Masse des Clusters	$M(r) \propto r^{d_f}$	$d_f$	$91/48$	$2.524 \pm 0.008$
Backbone Masse	$M_B(r) \propto r^{d_B}$	$d_B$	$1.62 \pm 0.02$	$1.855 \pm 0.015$
Chemischer Pfad	$l(r) \propto r^{d_{min}}$	$d_m$	$1.130 \pm 0.004$	$1.374 \pm 0.004$
Random Walk	$\langle r^2(t) \rangle \propto t^{2/d_w}$	$d_w$	$2.871 \pm 0.001$	$3.80 \pm 0.02$
Leitfähigkeit	$\sigma_{dc}(p) \propto (p - p_c)^t$	$t$	$1.300 \pm 0.002$	$1.99 \pm 0.01$
Supraleiter	$\sigma_S(p) \propto (p - p_c)^{-s}$	$s$	$1.300 \pm 0.002$	$0.74 \pm 0.03$
PSD[85]	$S_R/R^2 \propto (p - p_c)^{-\kappa}$	$\kappa$	$1.339$	$2.332$

Tabelle 2.1: Kritische Exponenten und fraktale Dimensionen in zwei und drei Dimensionen, nach [86].

Unser Interesse beschränkt sich auf den elektrischen Transport durch leitfähige Cluster. Das *Backbone*-Gebiet enthält nur die Cluster, die an der elektrischen Leit-

## 2 Rauschen in perkolierenden Systemen

fähigkeit beteiligt sind. Die topologische Distanz oder der sogenannte *chemische Pfad* beschreibt die kürzeste Weglänge durch die Cluster zwischen den beiden Elektroden.

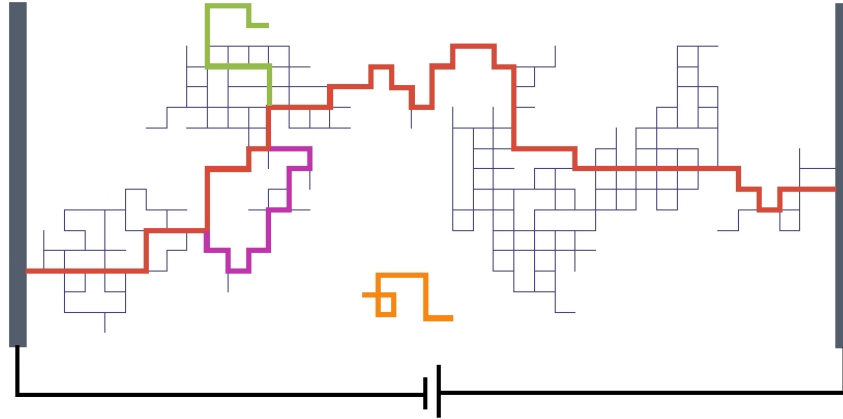


Abbildung 2.1.2: Ein computergeneriertes zufälliges Widerstandsnetzwerk: Blaue Linien stellen leitfähige Pfade einer zweidimensionalen Probe im elektrischen Potential dar. In Rot ist ein aktiver leitender Pfad (*Backbone*) zu sehen, der für den Transport verantwortlich ist. In Grün ist ein leitfähiger Pfad (*dead end*) eingezeichnet, der nicht am Stromtransport teilnimmt. In Violett ist ein sogenannter „*Shunt*“, der vielleicht am Transport teilnehmen kann und in Orange ist ein isolierter Cluster markiert.

Abbildung 2.1.2 zeigt ein zufälliges Widerstandsnetzwerk mit  $m$  Widerständen als Modell für ein Perkolationsystem im Festkörper. Die blauen Linien repräsentieren die leitfähigen Pfade (entspricht leitfähigen Clustern) im isolierenden Hintergrund. Dabei wird der Widerstand durch folgende Formel beschrieben:

$$R = \frac{1}{I^2} \sum_s r_s i_s^2 = \frac{1}{I^2} \sum_s r_s^{-1} V_s^2, \quad (2.1.4)$$

wobei  $i_s$  der Strom ist, der durch den Widerstand  $r_s$  fließt,  $V_s$  die entsprechende Spannung am Ort  $s$  und  $I$  der Gesamtstrom im System sind. Die Leitfähigkeit eines perkolierenden Gitters wird hauptsächlich durch die Cluster verursacht.

Die Leitfähigkeit tendiert zu Null, wenn  $p \rightarrow p_c$  ist und kann mit einem Potenzgesetz beschrieben werden:

$$G = R^{-1} \propto (p - p_c)^t. \quad (2.1.5)$$

Der Exponent  $t$  ist der Leitfähigkeitsexponent. Falls die perkolierenden Elemente ein regelmäßiges Netz bilden, wie ein Übergitter, und fast alle leitende Gitterplätze

an der Stromleitung teilnehmen, dann fällt die Leitfähigkeit  $G$  mit  $p \rightarrow p_c$  und die Potenz  $t$  wird gleich der Potenz  $\beta$ .

Wie man in Abbildung 2.1.2 sieht, unterscheidet man zwischen den leitenden Pfaden (*Backbone*), die wirklich am Transport teilnehmen und den leitfähigen Pfaden (*dead ends*), die nicht am Transport teilnehmen. Daraus folgt, dass  $t$  größer als  $\beta$  ist [40], siehe Tabelle 2.1.

## 2.2 Fluktuationsspektroskopie in perkolierenden Systemen

Die Theorie der Fluktuationen des Widerstands in einem perkolierenden System stammt von *Rammal et al.* (1985), siehe [85, 87].

Eine formale Gleichung für  $\delta R$  kann durch Linearisierung aus Gleichung 2.1.4 abgeleitet werden. Man hat zu berücksichtigen, dass die Joule-Energie bei einem bestimmten Widerstand  $r_s$  extremal in der Variation  $\delta i_s$  wird:

$$\delta R(t) = \frac{1}{I^2} \sum_s \delta r_s i_s^2. \quad (2.2.1)$$

In ungeordneten perkolierenden Systemen sind die mikroskopischen Korrelationslängen in der Regel kleiner als die Dimensionen des leitenden Clusters. Man nimmt an, dass alle leitenden Widerstände  $r_s$  identisch sind. In diesem Fall ist die spektrale Leistungsdichte:

$$2 \langle \delta r_s(t_1) \delta r_u(t_2) \rangle_\omega = \tilde{s}(f) r^2 \delta_{su}, \quad (2.2.2)$$

mit  $\tilde{s}(f)$  als spektraler Leistungsdichte der fraktionalen Fluktuationen und damit folgt aus den Gleichungen 2.2.1 und 2.2.2:

$$\frac{S_R}{R^2} = \tilde{s}(f) \frac{\sum_s i_s^4}{\left(\sum_s i_s^2\right)^2}. \quad (2.2.3)$$

Die Funktion  $\tilde{s}(f)$  wird durch den Mechanismus der Fluktuationen der Widerstände bestimmt (zum Vergleich siehe Gleichung 1.2.23). Nähert  $p$  sich der Perkolationschwelle  $p_c$ , divergiert die spektrale Leistungsdichte der Fluktuationen im Widerstand. Falls der Leitungspfad  $l$  im Vergleich zur Korrelationslänge  $\xi$  groß ist, dann gilt:

$$\frac{S_R}{R^2} \propto (p - p_c)^{-\kappa}, \quad (2.2.4)$$

## 2 Rauschen in perkolierenden Systemen

wobei  $\kappa$  ein durch Computersimulationen gefundener kritischer Exponent ist, siehe Tabelle 2.1.

In einem ungeordneten System ist die Leitfähigkeit sehr inhomogen verteilt, insbesondere in der Nähe vom Metall-Isolator-Übergang. Der wichtigste Beitrag zum Widerstand und zu den Fluktuationen stammt von den sogenannten (*hot spots*), in denen das lokale elektrische Feld und die Stromdichte viel größer sind als das mittlere Feld  $\langle \mathbf{E} \rangle$  beziehungsweise die mittlere Stromdichte  $\langle \mathbf{j} \rangle$ . Der Beitrag von solchen (*hot spots*) zum Widerstand ist proportional zum Quadrat des lokalen elektrischen Felds und ihr Beitrag zum Rauschen ist proportional zur vierten Potenz des lokalen Felds. Die Simulationen zeigen, dass der größte Beitrag am Rauschen in der Nähe von  $p_c$  von perkolierenden Clustern stammt [85] und oberhalb von  $p_c$  entstehen in der Probe mehr und mehr leitende Pfade.

Da  $p$  und  $p_c$  oftmals nicht experimentell zugänglich sind, kann man durch die Gleichungen 2.1.5 und 2.2.4 den Widerstand mit der spektralen Leistungsdichte verknüpfen:

$$\frac{S_R}{R^2} \propto R^w, \quad (2.2.5)$$

wobei  $w = \kappa/t$  ist. Der Exponent  $w$  lässt sich somit direkt aus den Messgrößen  $S_R/R^2$  und  $R$  bestimmen.

In der Literatur werden verschiedene Erklärungen für die Mechanismen der Fluktuationen diskutiert, zum Beispiel Wechselwirkung von Ladungsträgern mit Verunreinigungen oder Transport durch Hüpfprozesse [40]. In Kapitel 5 wird die Perkolation durch die Entstehung von magnetischen Polaronen bei tiefen Temperaturen begründet.



# 3 Experimentelle Methoden

In dieser Arbeit werden elektrische Transportmessungen durchgeführt. Gewöhnlich werden Widerstand, Leitfähigkeit und Rauschen gemessen. Für solche Messungen sind die elektrischen Kontakte von großer Bedeutung: Je kleiner der Widerstand der zu messenden Probe ist, umso kleiner müssen die Kontaktwiderstände sein, um Fluktuationsspektroskopie sinnvoll durchführen zu können. Idealerweise gilt dann:  $R_{\text{Probe}} \gg R_{\text{Kontakte}}$ .

Die Geometrie der Probe kann nach Gleichung 1.4.5 für die Fluktuationsspektroskopie optimiert werden:

$$S_V \sim \frac{V^2}{\Omega} \sim \frac{R^2}{\Omega} = \frac{(\rho l/A)^2}{l A}, \quad (3.0.1)$$

wobei  $\Omega$  das Probenvolumen,  $l$  die Probenlänge,  $A$  der Querschnitt und  $\rho$  der spezifische Widerstand sind. Daraus folgt:

$$S_V \sim \frac{l}{A^3}. \quad (3.0.2)$$

In der Praxis sollte die Probe folglich so lang und so dünn wie möglich sein. Aus diesem Grund lassen sich auch dünne Filme viel einfacher messen.

Abbildung 3.1.1 zeigt eine  $\text{EuB}_6$ -Probe, die mit Silberleitkleber kontaktiert wurde. Die Kontakte eignen sich für Widerstandsmessungen und Fluktuationsspektroskopie.

Die Messungen wurden in zwei Kryostaten (Oxford-Heliox<sup>1</sup> und Oxford-VTI<sup>2</sup>) durchgeführt, wobei die Probentemperatur im Bereich von 300 mK bis 310 K und das Magnetfeld bis zu 14 T verändert werden können. Für Details siehe [46, 55, 88, 89].

## 3.1 Widerstandsmessungen

In unserer Gruppe werden verschiedene Techniken zur Messung von Widerständen beziehungsweise der Leitfähigkeit verwendet. Standard ist die 4-Punkt-Methode, die in Abbildung 3.1.1 zu sehen ist: ein Strom wird von Kontakt 1 nach 5 geschickt

---

<sup>1</sup>He<sup>3</sup> insert.

<sup>2</sup>Variable temperature insert.

### 3 Experimentelle Methoden

und die Spannung an den Kontakten 2 und 4 gemessen. Bei DC-Messungen können wir auch den Strom umpolen und den Mittelwert berechnen. Dieses Vorgehen wird meistens bei hochohmigen Widerständen benötigt und hat den Vorteil, dass wirklich nur der Probenwiderstand gemessen wird und der thermische Strom ausgeschlossen bleibt. Dagegen kann man mit einer Leitfähigkeitsmessung nur den Gesamtwiderstand (Summe aus Probenwiderstand und Kontaktwiderstand) bestimmen, da sie eine 2-Punkt-Messung ist.

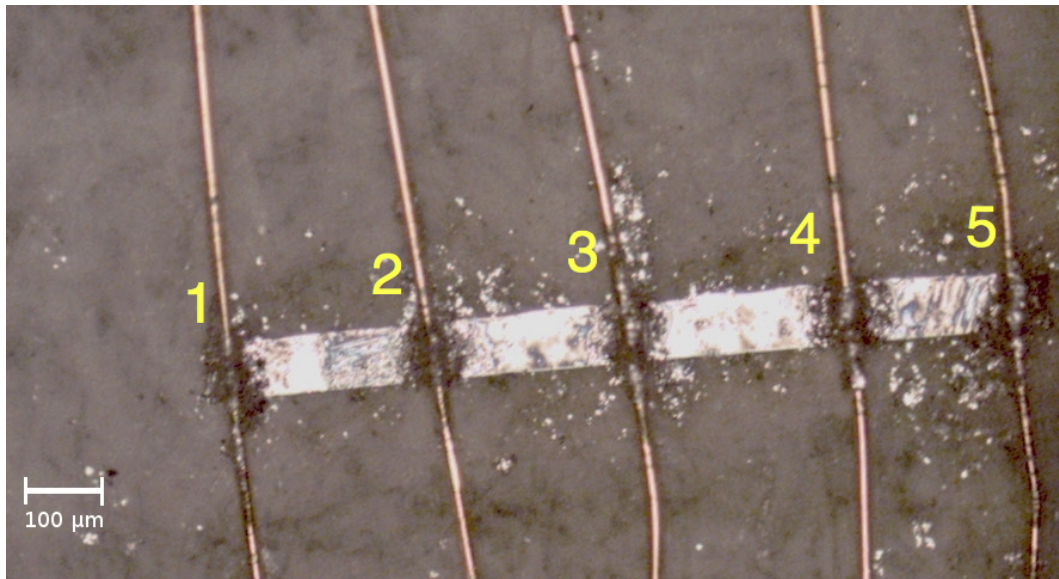


Abbildung 3.1.1: Mit Silberleitkleber kontaktierte  $\text{EuB}_6$ -Probe. Maße:  $1175\mu\text{m} \times 79\mu\text{m} \times 11.5\mu\text{m}$ .

## 3.2 Dynamische Widerstandsmessungen

In diesem Abschnitt werden die verschiedenen Schaltungen vorgestellt, die bei den dynamischen Messungen in dieser Arbeit eingesetzt wurden. Für die Fluktuationspektroskopie muss die jeweils passende Methode gewählt werden.

### 3.2.1 Schaltungskonzepte

Bei der Fluktuationsspektroskopie werden Schaltungen verwendet, die aus einem Vorverstärker<sup>3</sup>, einem Signalanalysator<sup>4</sup> beziehungsweise einer Datenerfassungskarte<sup>5</sup> und einer Spannungsquelle<sup>6</sup> (Lock-in- oder DC-Quelle) zusammengesetzt

<sup>3</sup>SR554 Transformer Preamplifier, SR552/SR560/SR570 Preamplifier.

<sup>4</sup>SR785 Dynamic Signal Analyzer.

<sup>5</sup>NI PCI-6281.

<sup>6</sup>AC: SR830-Lock In Amplifier. DC: Keithley 2400, Keithley 2612.

sind. Alle diese Geräte weisen ein eigenes,  $1/f$ -artiges Rauschen auf, das sich zum Rauschen der Probe addiert. Nach Gleichung 1.4.5 stellt man fest, dass die Rauschamplituden der Geräte konstant sein sollten, da der Versorgungsstrom von allen Geräten konstant ist. Ändert sich hingegen die Rauschamplitude mit dem Strom, dann hängt dieses Rauschen mit der Probe zusammen. Wichtig ist, dass abhängig vom Probenwiderstand die bestmöglichen Anregungsfrequenzen für jede Messung gewählt werden, welche es erlauben, den Verstärkungsfaktor zu optimieren (für Details siehe [88, 90]).

### AC-Spannungsteiler

In Abbildung 3.2.1 werden die vier wichtigsten Schaltungen vorgestellt, die bei der Fluktuationsspektroskopie zum Einsatz kommen. Bei Schaltung (a) misst man direkt die Spannung als Funktion der Zeit in der 4-Punkt-Konfiguration. Mit  $R_{\text{vor}} \gg R_{\text{Probe}}$  und der Wechselspannung  $V_{\text{rms}}$  ergibt sich der Strom zu  $I = V_{\text{rms}}/R_{\text{vor}}$ , wobei  $R_{\text{vor}}$  der Vorwiderstand ist.

Wir definieren nun  $R = R_{\text{vor}} + R_{\text{Kontakte}}$ , wobei  $R_{\text{Kontakte}}$  die durch die Kontaktierung entstandenen Widerstände darstellt. Damit erhält man für die Probenspannung

$$V_{\text{Probe}} = \frac{R_{\text{Probe}}}{R_{\text{Probe}} + R} V_{\text{rms}} \quad (3.2.1)$$

und für den Strom

$$I = \frac{V_{\text{rms}}}{(R_{\text{Probe}} + R)}. \quad (3.2.2)$$

Die Schwankung der Probenspannung lässt sich folgendermaßen berechnen:

$$\delta V_{\text{Probe}}(R_{\text{Probe}}, R) = \frac{\partial V_{\text{Probe}}(R_{\text{Probe}}, R)}{\partial R_{\text{Probe}}} \delta R_{\text{Probe}} + \frac{\partial V_{\text{Probe}}(R_{\text{Probe}}, R)}{\partial R} \delta R. \quad (3.2.3)$$

Setzt man Gleichung 3.2.1 und 3.2.2 in Gleichung 3.2.3 ein, ergibt sich:

$$\delta V_{\text{Probe}} = I \frac{R}{R + R_{\text{Probe}}} \left[ \delta R_{\text{Probe}} - \frac{R_{\text{Probe}}}{R} \delta R \right]. \quad (3.2.4)$$

Da  $R \gg R_{\text{Probe}}$ , folgt für  $R/(R + R_{\text{Probe}}) \rightarrow 1$  und  $R_{\text{Probe}}/R \rightarrow 0$  und damit ist

$$\delta V_{\text{Probe}} = I \delta R_{\text{Probe}}. \quad (3.2.5)$$

### 3 Experimentelle Methoden

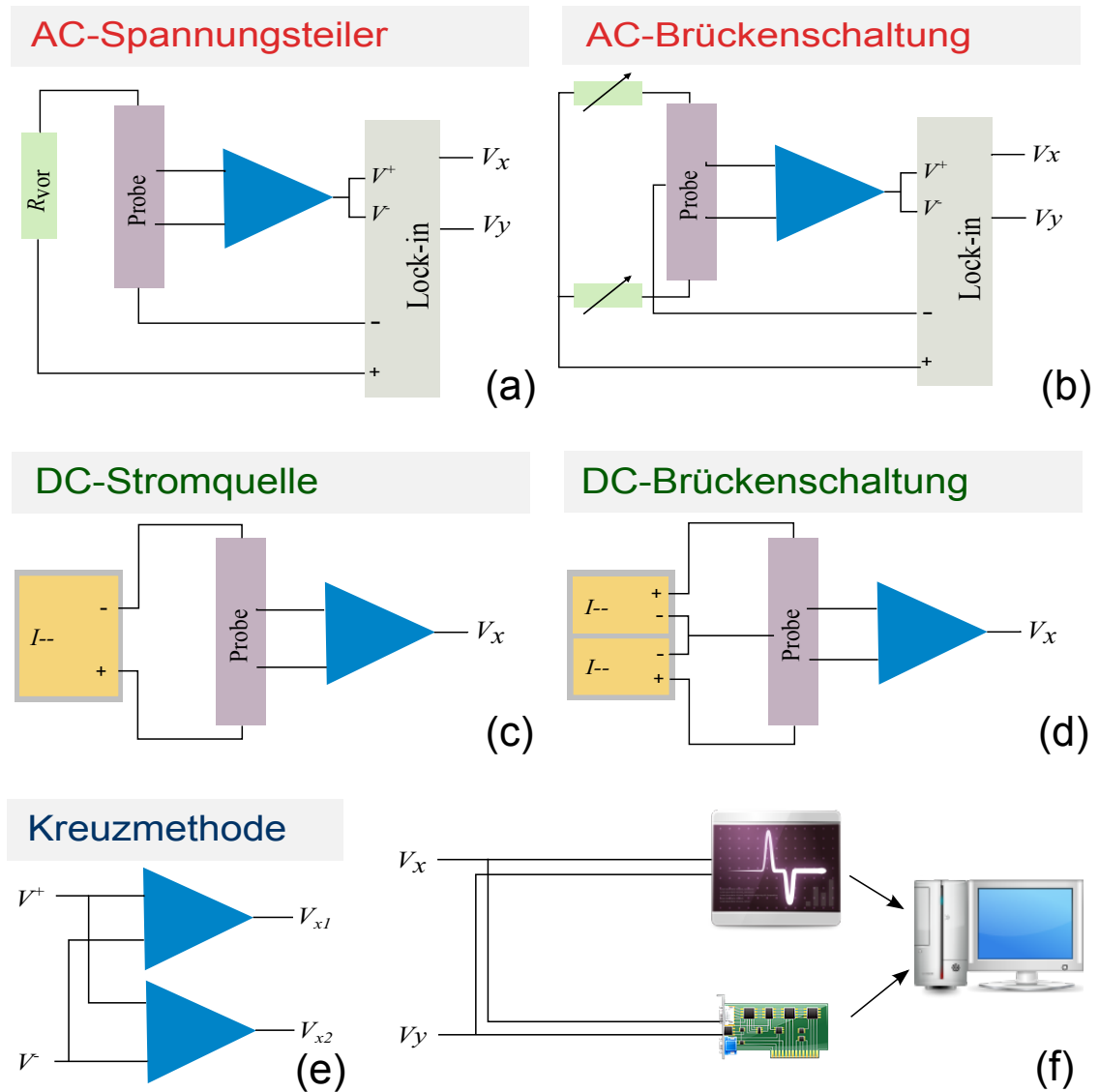


Abbildung 3.2.1: Schematische Darstellung der Schaltungskonzepte für die Fluktuationsspektroskopie: (a) 4-Punkt-Messung mit AC-Spannungsteiler, (b) 5-Punkt-Messung mit AC-Brückenschaltung, (c) 4-Punkt-Messung mit DC-Strom, (d) 5-Punkt-Messung mit DC-Brückenschaltung und (e) Kreuzmethode mit zwei Verstärkern. (f) Durch die Schaltungen in (a, b, c, d, e) wird das Signal  $V^+$  und  $V^-$  verstärkt. Bei AC-Messungen erhält man  $V_x$  und  $V_y$ , bei DC-Messungen  $V_x$  und bei der Kreuzmethode  $V_{x1}$  und  $V_{x2}$ . Diese Signale werden durch einen Signalanalysator beziehungsweise eine Datenerfassungskarte im Computer ausgewertet.

Wie man sehen kann, lässt sich der Einfluss der Kontakte eliminieren, sodass nur das Rauschen der Probe gemessen wird.

### AC-Brückenschaltung

Für 4-Punkt-Messungen gilt gemäß Abschnitt 3.2.1:

$$V_{\text{Probe}} = I R_{\text{Probe}} + I \delta R_{\text{Probe}}. \quad (3.2.6)$$

Der erste Term stört bei den Fluktuationsspektroskopie-Messungen und sollte daher durch einen geschickten Messaufbau minimiert werden. Abbildung 3.2.1 (b) zeigt die Kombination von zwei Schaltungen aus (a): die Summe der Spannungen soll ungefähr auf Null gebracht werden, indem man die Ströme so einstellt, dass  $I^{(1)} R_{\text{Probe}}^{(1)} \approx -I^{(2)} R_{\text{Probe}}^{(2)}$  ist. Damit folgt für die Spannung  $V^{(1-2)}$ :

$$V^{(1-2)} = V_{\text{Probe}}^{(1)} + V_{\text{Probe}}^{(2)} = I^{(1)} R_{\text{Probe}}^{(1)} + \delta R_{\text{Probe}}^{(1)} + I^{(2)} R_{\text{Probe}}^{(2)} + \delta R_{\text{Probe}}^{(2)}, \quad (3.2.7)$$

$$V^{(1-2)} \approx \delta R_{\text{Probe}}^{(1)} + \delta R_{\text{Probe}}^{(2)}. \quad (3.2.8)$$

Somit erhält man ein Signal, das genügend klein für eine Verstärkung ist. Dies stellt eine sehr effektive Methode dar, wenn die verstärkte Spannung  $V_{\text{Probe}}$  größer als 1 V ist, da der Input vom Lock-In auf 1 V beschränkt ist. Das Experiment von *Scofield* (1987) hat gezeigt, dass der Beitrag der Temperaturschwankungen des Bades durch diese Methode eliminiert werden kann [91].

Bei AC-Messungen bekommt man zwei Signale: die AC-Amplitude  $V_x$  und die AC-Phasenverschiebung  $V_y$  vom Lock-in-Verstärker. Damit ist  $S_V = PSD(V_x) - PSD(V_y)$ , wobei  $PSD(V_x)$  dem Probensignal und  $PSD(V_y)$  dem Hintergrundsignal (Störeffekte von den Geräten und Kontakten) entsprechen.

Es ist zu beachten, dass die Ströme in den beiden Zweigen im Allgemeinen nicht exakt gleich sind, was bei einigen Systemen zu Problemen führen kann, wenn die Abhängigkeit der Rauschspektren von  $I^2$  nach Gleichung 1.4.5 nicht erfüllt ist.

### DC-Methoden

In Analogie zum AC-Spannungsteiler und zur AC-Brückenschaltung kann man die Messungen auch direkt mit DC-Strom durchführen (siehe Abbildung 3.2.1 (c), (d)). Bei DC-Messungen erhält man nur ein PSD-Signal:  $S_V = PSD(V_x)$ . Ein Nachteil gegenüber AC-Messungen ist, dass man die Verstärkung durch den Lock-In verliert.

#### Kreuzmethode

Da in vielen Fällen die Rauschamplituden der Geräte größer als die Rauschamplitude der Probe sind, muss die Kreuzmethode verwendet werden. Abbildung 3.2.1 (e) zeigt schematisch, wie man ein Signal aufspalten kann und durch zwei Vorverstärker schickt. Der Signalanalysator kann gemäß Gleichung 1.3.12 aus den beiden  $V_x$ -Signalen die PSD berechnen. Dabei werden die von den Geräten stammenden, unkorrelierten Anteile eliminiert.

Mathematisch wird das Kreuz-Spektrum wie folgt ausgedrückt [92]:

$$S_V^{\text{Kreuz-Spektrum}} = \overline{(S_V^{(x1)} \times S_V^{(x2)})}, \quad (3.2.9)$$

wobei  $S_V^{(x1)}$  und  $S_V^{(x2)}$  die berechneten fouriertransformierten Spektren der Spannungen (nach Gleichung 1.3.8) sind.

#### Leitfähigkeits-Fluktuationsspektroskopie

In Analogie zum Spannungsrauschen kann man das Stromrauschen in der 2-Punkt-Konfiguration bei konstanter Spannung messen (siehe Abbildung 3.2.2). Der Vorverstärker<sup>7</sup> kann den Strom direkt messen und das verstärkte Signal als Spannung ausgeben.

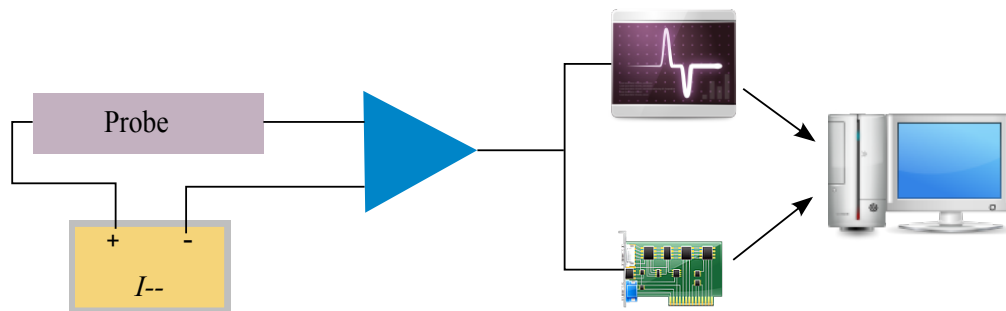


Abbildung 3.2.2: Schematische Darstellung der Schaltung bei der Leitfähigkeits-Fluktuationsspektroskopie.

Die Leitfähigkeits-Fluktuationsspektroskopie wird bei großen Probenwiderständen eingesetzt. Allerdings werden dabei die Kontaktwiderstände mitgemessen, sodass möglichst kleine, ohmsche Kontaktwiderstände nötig sind.

<sup>7</sup>SR570 von Stanford Research Instruments.

## 3.3 Steuerungssoftware für die Messungen (EVE)

### 3.3.1 Die Softwarekomponenten

Eine wichtige Aufgabe zu Beginn dieser Arbeit war es, ein neues Konzept zu entwerfen, das alle Programme der bis dahin verwendeten Software Testpoint ersetzt. Testpoint ist eine 8-Bit-Software, die nur in der DOS-Umgebung optimal lauffähig ist und ungeeignet für *Windows 7* oder für die Programmierung der Datenerfassungskarte von *National Instruments* ist. Wichtige Punkte bei der Wahl der neuen Software waren einerseits die Kompatibilität mit unserer Hardware und den Betriebssystemen, andererseits sollte die Software flexibel bei der Auswertung von größeren Datensätzen sein.

Während bei Programmiersprachen wie C/C++ oder Java sehr viel Routine-Arbeit für die Auswertung nötig wäre, ist bei *Matlab* oder *Mathematica* die Programmierung der Hardware schwieriger.

Die Lösung für alle unsere Labor-Bedürfnisse ist die Programmiersprache Python. Sie verfügt über Tausende von Paketen, die frei zur Verfügung stehen. Python ist eine höhere Skript-Programmiersprache, gratis und leicht zu lernen, wird immer weiter entwickelt und hat zahlreiche Module. Außerdem ist sie leicht lesbar, robust, Objekt-orientiert und lässt sich einfach mit C- oder Fortran-Algorithmen verbinden.

Zur Installation von Python wurde die Paket-Sammlung Python(x,y)-2.7.2.3<sup>8</sup> verwendet, die die wichtigsten wissenschaftlichen Pakete enthält. Die für diese Arbeit benötigten Pakete können in mehreren Kategorien zusammengefasst werden:

- Für die Bedienung der Hardware wird PyQt<sup>9,10,11</sup> benötigt, das ein sehr gutes Paket zur Erzeugung von graphischen Benutzeroberflächen GUI (englisch: Graphical User Interface) bietet. Durch PyQt.Core und PyQt.Gui kann man die graphischen Oberflächenelemente mit den entsprechenden Funktionen leicht in Verbindung bringen. Ein Vorteil ist der Qt-Designer, der den Anwender alle Elemente der Fenster konstruieren lässt.
- PyQt verfügt über verschiedene Eingabe-Elemente, die man zur Dokumentation von simultanen Messergebnissen verwenden kann und als dat-, txt- oder csv-Datei speichern kann. Bei Messungen mit der Sweep-Funktion kann man

<sup>8</sup>[www.pythonxy.com](http://www.pythonxy.com), <http://code.google.com/p/pythonxy/>

<sup>9</sup>Qt ist eine C++-Klassenbibliothek, die für die plattformübergreifende Programmierung grafischer Benutzeroberflächen geschrieben wurde. Im Oktober 2011 hat Nokia das Projekt unter dem Namen Qt-Project als freie Software in die Hände der Open-Source-Community gegeben (siehe Wikipedia).

<sup>10</sup>Alternativen: wxPython, PyGTK, TKinter, ...

<sup>11</sup>Alternative für PyQt ist PySide.

### 3 Experimentelle Methoden

die Daten direkt mit Hilfe des Pakets H5Py in einer hdf5-Datei speichern und damit zwei Drittel des Speicherplatzes sparen. Sie kommen zum Beispiel bei der Aufnahme von Spektren mit dem Signalanalysator oder mit der Datenerfassungskarte zum Einsatz. Sweep-Messungen sind Vorgänge, bei denen der Daten-Transfer erst am Ende der gesamten Messung erfolgt.

- Ein sehr mächtiges Plot-Werkzeug in der Python-Welt ist Matplotlib, das wir zurzeit zur Datenvisualisierung verwenden. Es läuft unter allen Betriebssystemen und wird immer weiterentwickelt. Außerdem eignet es sich sehr gut für professionelle Bilder bei Veröffentlichungen. Eine andere Möglichkeit ist GuiQwt<sup>12</sup>, mit dem sich sehr große Datenmengen plotten lassen und das zahlreiche Elemente zur interaktiven Darstellung bietet, allerdings zurzeit nur unter *Windows* lauffähig ist.
- Zwei wichtige Pakete sind NumPy<sup>13</sup> und SciPy<sup>14</sup>: Beide verwandeln Python in ein sehr mächtiges Werkzeug zur Auswertung, mit ähnlichem Umfang wie *Matlab*. Man findet hier alle benötigten Befehle wie Matrix-Manipulation, FFT, Array und so weiter.
- Die Kommunikation zwischen Software und Hardware wird durch Visa<sup>15</sup> (englisch: Virtual Instrument Software Architecture) vermittelt. Es wird häufig bei GPIB-, Serial- und USB-Geräten eingesetzt. Die Software ni-visa wird kostenlos von der Firma *National Instruments* zur Verfügung gestellt. Das Paket PyVisa sorgt für Kommunikation zwischen Python und der visa.dll-Datei.

#### 3.3.2 Der Aufbau des Skriptes EVE

Abbildung 3.3.1 zeigt schematisch den Aufbau unseres Messprogramms. Es besteht aus den Skripten EVE (Hauptprogramm), Matplotlib, den Gui-Skripten zur Gerätebedienung und dem Gui-Hauptfenster.

Das Hauptprogramm EVE ist für die Datenspeicherung, Datenvisualisierung und Überwachung zuständig und wird durch eine graphische Benutzeroberfläche bedient<sup>16</sup>. Damit lassen sich auf einfache Art und Weise Messungen starten oder Parameter ändern.

Wie man in Abbildung 3.3.1 sehen kann, besteht das EVE-Skript aus verschiedenen Klassen. Die erste Klasse ist das Hauptprogramm von EVE, wo alle Informationen

---

<sup>12</sup>Eine Kombination von Qwt, das in C++-Sprache für Qt geschrieben wurde, NumPy und SciPy.

<sup>13</sup>[numpy.scipy.org](http://numpy.scipy.org)

<sup>14</sup><http://www.scipy.org/>

<sup>15</sup>Alternative Agilent Visa oder Tektronix Visa.

<sup>16</sup>Gui-Hauptfenster-Skript ist für die Erzeugung der graphischen Benutzeroberfläche zuständig.



### 3.3 Steuerungssoftware für die Messungen (EVE)

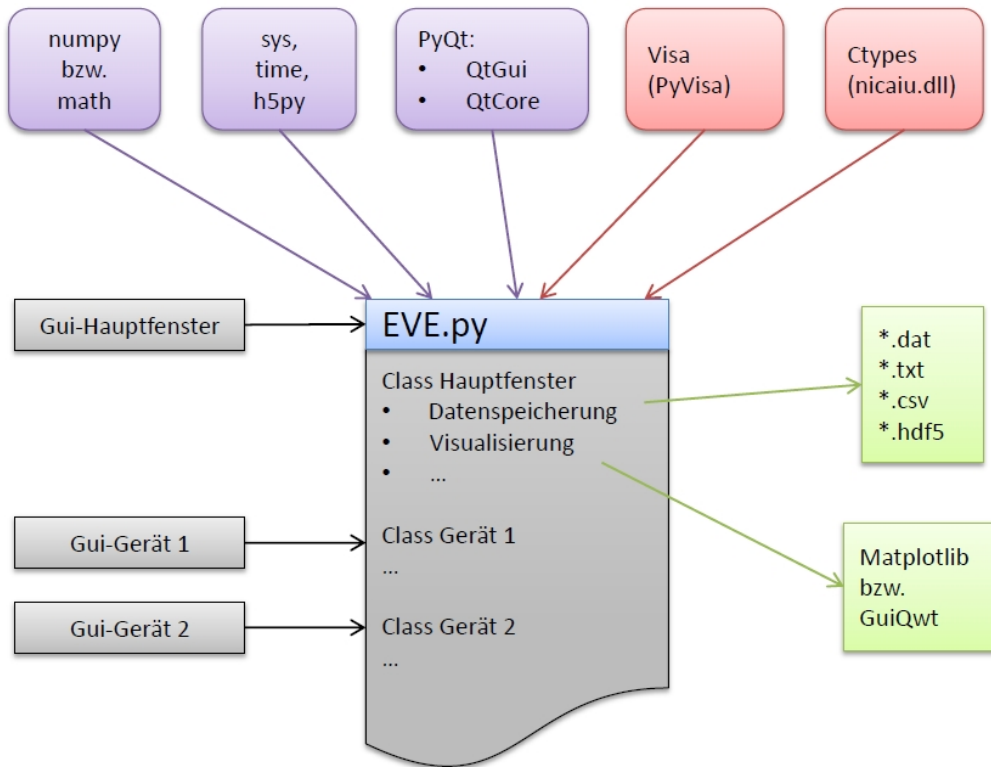


Abbildung 3.3.1: Schematische Darstellung der Struktur der Software EVE: Die wichtigsten Pakete, die verwendet werden, sind NumPy, PyQt und H5Py. Das Programm kann simultan im dat-, txt- oder csv-Format speichern und Daten mit MatPlotLib oder GuiQwt visualisieren. Bei Sweep-Messungen wird direkt im hdf5-Format gespeichert.

weitergeleitet und bearbeitet werden. Die anderen Klassen kontrollieren die Hardware und definieren die gemessenen Werte als globale Variablen, die allen Klassen bekannt sein sollen. Jede Klasse hat Zugriff auf ein eigenes Gui-Skript, das die Kontrolle der Geräte durch eine graphische Benutzeroberfläche erlaubt.

#### 3.3.3 Die Zukunft von EVE

Im Laufe der Entwicklung von EVE haben wir festgestellt, welche Vorteile man bei der automatischen Rausch-Messung mit Hilfe einer Datenerfassungskarte und der Programmiersprache Python hat. Unser nächstes Ziel ist die Entwicklung einer neuen, fortgeschrittenen Umgebung, die den Anwender auf einfache Art und Weise neue Geräte hinzufügen und automatische Messungen starten lässt. Damit können unsere Kryostaten effizienter betrieben und die Rauschspektren mit höhe-

### 3 Experimentelle Methoden

ren Punktdichten gemessen werden.

Die verbesserte Umgebung EVE 2.X<sup>17</sup> enthält einen effizienteren Code, da für jede Geräte-Art nur eine Klasse benötigt wird. Außerdem werden die Klassen, die für die Bedienung der Geräten verantwortlich sind, in separate Skripte geschrieben.

Eine weitere Verbesserung gegenüber der Vorgänger-Version ist, dass die UI-Dateien direkt mit der Umgebung verknüpft werden können, anstelle einer früher notwendigen Umwandlung der UI-Dateien in Python-Skript. Diese Version befindet sich zurzeit im Beta-Status und die Automatisierungsroutinen müssen noch angepasst werden.

---

<sup>17</sup>Wird hauptsächlich von Benedikt Hartmann mit Unterstützung von Merlin Pohlit entwickelt. Beiden sind derzeit Doktoranden in der AG Müller.

## 4 Software zur Signal-Analyse

In diesem Kapitel werden die in einem Signalanalysator eingesetzten mathematischen Methoden erläutert. Das Ziel ist es, den Signalanalysator durch eine Datenerfassungskarte und zusätzliche Auswertungssoftware zu ersetzen. Diese Art von Messung erlaubt es, die Hälfte der gesamten Messzeit zu sparen. Mit Hilfe einer mathematischen Erweiterung des Python-Codes ist es möglich, die Messzeit noch weiter zu verkürzen und das Hintergrundrauschen zu unterdrücken.

In den nächsten Abschnitten werden die zur Berechnung der Spektren notwendigen mathematischen Schritte vorgestellt. Wichtige Begriffe wie Abtasten, *Aliasing*-Effekt, *Nyquist*-Rate, usw. werden hier erläutert. Die verwendete Auswertungssoftware wurde vollständig in der Skriptsprache Python geschrieben. Dank der integrierten Hardware im Signalanalysator ist dieser in der Lage, auf die gemessenen Spannungssignale und deren Phasen simultan eine Fourier-Transformation anzuwenden und die entsprechende spektrale Leistungsdichte zu berechnen. Da aber dem Analysator nur ein sehr kleiner Speicher zur Verfügung steht, muss jedes Spektrum separat gemessen und ausgewertet werden, was zu langen Messzeiten führt.

Anstelle des Signalanalysators kann das von der Probe kommende zeitlich aufgelöste Spannungssignal mittels einer Datenerfassungskarte gemessen werden. Die Spektren werden anschließend durch eine in der Skriptsprache Python geschriebene Auswertungssoftware berechnet. Zum Testen dieser alternativen Messmethode wurde Messungen an Nickelaten durchgeführt. In Abbildungen 3.2.1 (c und f) und 3.2.2 sind die verwendeten Schaltungen gezeigt. Für detailliertere Ausführungen zur Signalanalyse siehe [93]. Abbildung 4.0.1 zeigt schematisch alle notwendige Schritte für die Berechnung des Ersten und Zweiten Spektrums.

### 4.1 Nyquist-Shannon-Abtasttheorem

Die meisten analogen Messungen scheinen kontinuierlich zu sein, wohingegen die moderne Welt der digitalen Information quantisiert ist. Diese Tatsache setzt voraus, dass nur natürliche Signale digitalisiert werden können, die sich als Reihenfolge von Zahlen darstellen lassen. Ein Nachteil der Digitalisierung ist, dass die Information zwischen zwei Messpunkten verloren geht. Es muss im Vorfeld geklärt werden,

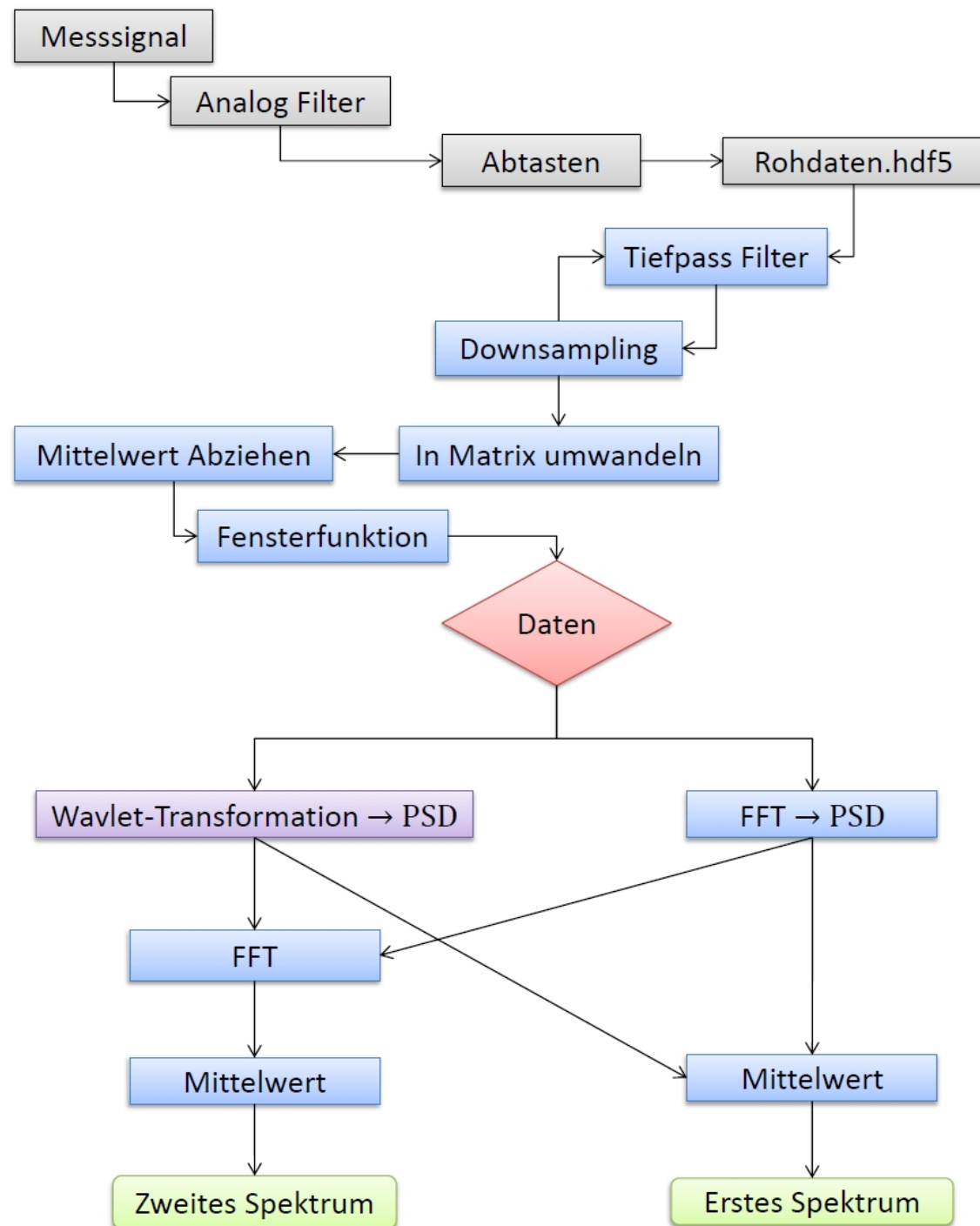


Abbildung 4.0.1: Schematische Darstellung der Schritte zur Berechnung des Ersten und Zweiten Spektrums des Widerstandsrauschens.

mit welcher Abtastrate das ursprüngliche Signal ohne Informationsverlust wiedergegeben werden kann. Alle Messungen in der digitalen Welt sind zeitlich begrenzt und bestehen aus einer endlich Anzahl an Messpunkten. Damit wird das natürliche Signal nur innerhalb eines bestimmten Frequenzbereiches wiedergespiegelt.

**Beispiel.** Wenn man einen 3-minütigen Song mit 44.1 kHz und 16 bits für zwei Kanäle speichern will, dann ergibt das für den benötigten Speicherplatz:

$$(3 \text{ Minuten}) \times \left(16 \frac{\text{Bits}}{\text{Messpunkt}}\right) \times \left(44100 \frac{\text{Messpunkte}}{\text{Sekunde}}\right) \times 2$$

mit 8 Bits = 1 Byte

$$180 \times (2 \text{ Bytes}) \times 44100 \times 2 = 31752000 \text{ Bytes} \approx 30 \text{ MB.}$$

In der Realität braucht man 30 MB nicht. Die Daten werden auf andere Art und Weise gespeichert, wie zum Beispiel im MP3-Format für Musik und HDF5-, MAT- oder NPY-Format für gemessene Daten [94].

**Theorem.** Um ein Signal mit der *Grenzfrequenz*  $f_g$  fehlerfrei rekonstruieren zu können, muss  $f_A > 2f_g$  sein, wobei  $f_A = 1/T_A$  die *Abtastfrequenz* und  $T_A$  die *Abtastzeit* sind. Die doppelte Grenzfrequenz  $2f_g$  wird *Nyquist-Frequenz* oder *kritische Abtastung* genannt und entspricht der minimalen Abtastrate, die nötig ist, um ein Signal zu rekonstruieren [95].

Folgende Gleichung beschreibt das abgetastete Signal:

$$x(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} x[n] \tilde{\delta}(t - nT_A), \quad (4.1.1)$$

wobei  $\tilde{\delta}(t)$  die Puls-Funktion ist [94]. Abbildung 4.1.1 zeigt ein kontinuierliches Signal in Blau, gemessen mit zwei verschiedenen Abtastraten. Für die roten Punkte ist  $f_A > 2f_g$  und das Signal wird gut rekonstruiert. Dagegen gilt für die grünen Punkte  $f_A < 2f_g$ , womit das kontinuierliche Signal nicht richtig rekonstruiert werden kann.

## 4.2 Alias-Effekt

Bei Signalen, die mit  $f_A < 2f_g$  abgetastet werden, kommt es zu einer Überlappung der Spektralanteile des Signals im Frequenzraum, und damit ist eine eindeutige Zuordnung der Spektralanteile nicht mehr möglich [96]. Dieser Effekt wird im Englischen als *aliasing* bezeichnet. Man kann diesen Effekt auch im Zeitraum anhand des folgenden Beispiels verstehen:

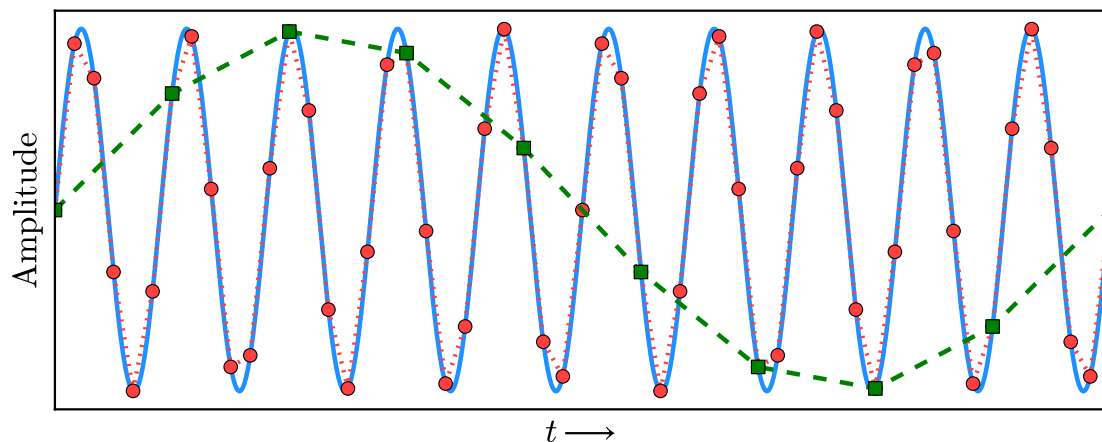


Abbildung 4.1.1: Ein Sinussignal in Blau wurde mit verschiedenen Raten abgetastet. Für die roten Punkte gilt  $f_A > 2f_g$  und für die grünen Punkte  $f_A < 2f_g$ .

**Beispiel.** Wir wollen ein zeitkontinuierliches Signal  $x(t) = \sin(2\pi \cdot 50 \text{ Hz} \cdot t) + \sin(2\pi \cdot 250 \text{ Hz} \cdot t)$  mit  $f_A = 200 \text{ Hz}$  abtasten. Das heißt  $T_A = 1/f_A = 0.005 \text{ s}$ . Für ein digitales Signal gilt  $t \rightarrow nT_A$ .

$$\begin{aligned} x &= x(nT_A) = \sin\left(2\pi \cdot \frac{50 \text{ Hz}}{200 \text{ Hz}} n\right) + \sin\left(2\pi \cdot \frac{250 \text{ Hz}}{200 \text{ Hz}} n\right) \\ &= \sin\left(2\pi \cdot \frac{1}{4} n\right) + \sin\left(2\pi \cdot \left(1 + \frac{1}{4}\right) n\right) \\ &= 2 \cdot \sin\left(\frac{\pi}{2} n\right). \end{aligned}$$

Hier kann man sehen, dass es nicht mehr möglich ist, zwischen den beiden Schwingungen zu unterscheiden, und damit gibt es einen Überlapp ihrer Spektralanteile [96] (siehe Abbildung 4.1.1, die grünen Punkte).

### 4.2.1 Antialiasing-Filter

Eine Möglichkeit dem Aliasing-Effekt vorzubeugen ist, einen Filter zu konstruieren, der alle Frequenzen oberhalb von  $f_g$  eliminiert. Mit Hilfe eines Tiefpass-Filters werden alle Frequenzen oberhalb dessen *Cutoff*-Frequenz unterdrückt, beziehungsweise der Tiefpass-Filter glättet das Signal (siehe Abbildung 4.2.1 rechte Spalte).

In der verwendeten Schaltung für die Messung mit der Datenerfassungskarte (Abbildung 3.2.1) wurde immer der im Vorverstärker integrierte Tiefpass-Filter verwendet. Bei der Verwendung eines Tiefpass-Filters ist es wichtig, dass die Abtastfre-

quenz  $f_A$  immer mindestens doppelt so groß wie die *Cutoff*-Frequenz des Tiefpass-Filters sein sollte.

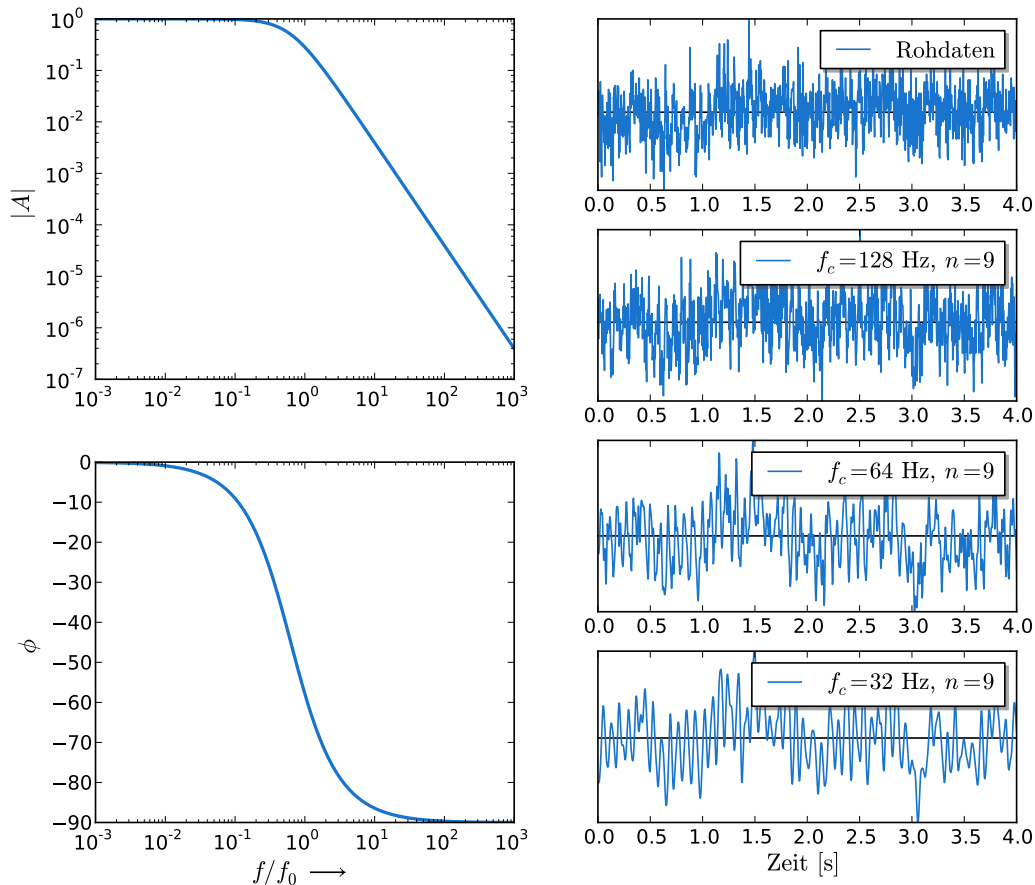


Abbildung 4.2.1: (a) zeigt die Amplitude eines Tiefpass-Filters und (b) stellt die Phase dar. Rechte Spalte: Die Wirkung eines *Butterworth*-Filters der Ordnung  $n = 9$  mit verschiedenen *Cutoff*-Frequenzen.

Eine typische verwendete Abtastfrequenz für unsere Messungen ist 8.192 kHz mit einer *Cutoff*-Frequenz bei 3 kHz. Die *Cutoff*-Frequenz dieses Filters ist für Spektren unterhalb von 100 Hz nicht gut geeignet. Deshalb verwenden wir später, abhängig von der gewünschten Frequenzbreite, noch einen digitalen Tiefpass-Filter. Häufig verwendete Filter sind IIR<sup>1</sup>- und FIR<sup>2</sup>-Systeme, wobei verschiedene Verfahren für den Entwurf des zeitdiskreten Filters eingesetzt werden (siehe Weeks [94], Kiencke and Jäkel [96], Kammeyer and Kroschel [97]).

Das Python-Paket „scipy.signal“ enthält verschiedene Befehle zur Signalbearbeitung, wie zum Beispiel Filterung und Filter-Design. Zum Filtern des Messsignals

<sup>1</sup>Unendliche Impulsantwort (englisch: infinite impulse response filter).

<sup>2</sup>Endliche Impulsantwort (englisch: finite impulse response filter).

wurde ein digitaler *Butterworth*-Filter mit IIR-Filter-Design verwendet. Folgender Code beschreibt die Verwendung des Filters:

```
from scipy import signal
import numpy as np

(N, Wn) = signal.buttord(wp, ws, gpass, gstop, analog=0)
(b, a) = signal.butter(N, Wn, btype='low', analog=0,
                      output='ba')
V_out = signal.lfilter(b, a, V_in)
```

Die Parameter werden abhängig von der Abtastrate und der *Cutoff*-Frequenz angepasst<sup>3</sup>.

Die Amplitude des *Butterworth*-Filters ist nahezu konstant für kleine Frequenzen (siehe Abbildung 4.2.1), knickt kurz vor  $f_g$  ab und erreicht eine Dämpfung von 3 dB bei 1 Hz. Für weitere Details siehe [97, 96, 98].

### 4.3 Downsampling

Das Verfahren, welches der Signalanalysator verwendet, funktioniert folgendermaßen: Zunächst wird das Signal durch einen Analogfilter mit höherer *Cutoff*-Frequenz ( $\sim 102.4$  kHz) geschickt und anschließend wird es mit höherer Rate ( $\sim 262$  kHz) abgetastet. Abhängig vom gewünschten Frequenzbereich wird zusätzlich ein passender Tiefpass-Filter eingeschaltet. Der nächste Schritt ist es, die passenden Punkte im Zeitraum aus dem Messsignal zu wählen, um dazu die passenden Spektren des gewünschten Frequenzbereiches zu berechnen.

Der Signalanalysator braucht für jedes Spektrum 1024 Punkte innerhalb einer bestimmten Zeitdauer. Abhängig von der Zeitdauer kann man einen bestimmten Frequenzbereich berechnen. Folgendes Beispiel erklärt das Verfahren:

**Beispiel.** Es werden 1024 Messwerte innerhalb von vier Sekunden benötigt. Das entspricht einem Zeitabstand von  $4/1024 \approx 3.9$  ms zwischen zwei Messwerten. Nach der Anwendung der FFT<sup>4</sup> muss mindestens die Hälfte der Messwerte verworfen werden. Die verbliebenen 500 Messpunkte entsprechen dann einem Frequenzbereich von 128 Hz. Da aber der Signalanalysator nur die ersten 400 berechneten Punkte zeigt, reduziert sich der Frequenzbereich von 128 Hz auf 100 Hz. Im Prinzip muss der Signalanalysator nach 4 Sekunden die Messung anhalten, das Spektrum berechnen und die zweite Messung starten. Eine Messung mit 50 Spektren dauert somit ungefähr 200 Sekunden.

<sup>3</sup><http://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.signal.buttord.html#scipy.signal.buttord>

<sup>4</sup>englisch: Fast Fourier Transform.



### 4.3 Downsampling

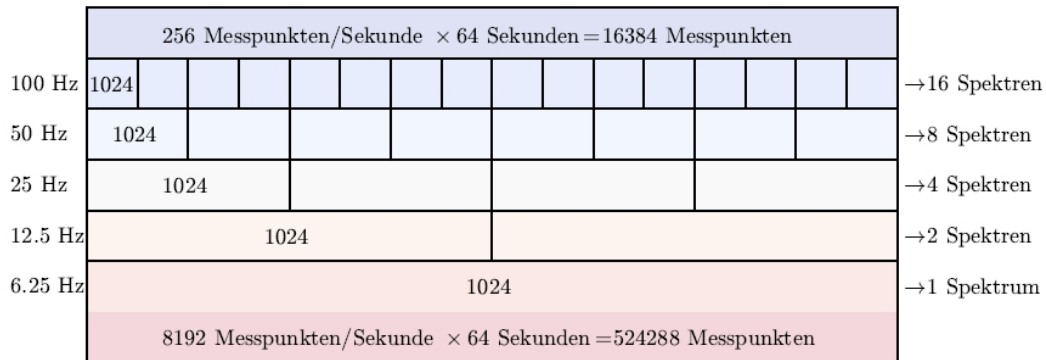


Abbildung 4.3.1: Schematische Darstellung der Zerlegungsmethode der abgetasteten Punkte für die Berechnung der Spektren. Die gesamte Punktzahl ist 524288 mit einer Abtastzeit  $T_A \approx 122 \mu\text{s}$ .

Wie im vorherigen Beispiel gezeigt wurde, dauert eine Messung dreier Frequenzbereiche 100 Hz, 50 Hz und 25 Hz mit 50 Spektren pro Frequenzbereich ungefähr 23 Minuten ( $4 \text{ s} \times 50 + 8 \text{ s} \times 50 + 16 \text{ s} \times 50 = 1400 \text{ s}$ ). Bei Verwendung der Datenerfassungskarte wird nur  $16 \text{ s} \times 50 = 800 \text{ s}$  für die gleiche Messung benötigt. Somit ist es möglich, auch die höheren Frequenzbereiche durch Auswählen der passenden Messpunkte mit einer minimalen Mittlung von 50 Spektren zu berechnen. In 800 Sekunden erhält man 50 Spektren mit 25 Hz, 100 Spektren mit 50 Hz und 200 Spektren mit 100 Hz.

Abbildung 4.3.1 zeigt eine schematische Darstellung der Zerlegungsprozedur der Daten. Dieses Messverfahren ist für niedrige Frequenzen ( $1/f$ -Fluktuationsspektroskopie) geeignet. In 64 Sekunden können mit der Datenerfassungskarte in gleichen Zeitabständen 524588 Spannungsmesswerte gemessen werden. In einem Zeitraum von 64 Sekunden kann nur ein Spektrum im Frequenzbereich 6.25 Hz berechnet werden, da der Zeitabstand zwischen zwei Messwerten 62.5 ms beträgt. Analog zur oben dargestellten Überlegung sind im gleichen Zeitsignal 16 Spektren im Frequenzbereich 100 Hz innerhalb von 64 Sekunden enthalten.

Die Gesamtzahl der Messwerte sollte immer einem Vielfachen von 1024 entsprechen. Ein Vorteil dabei ist, dass die Spektren somit mit dem des Signalanalysators vergleichbar sind.

Der folgende Code zeigt das Zerlegungsverfahren für den 100 Hz Frequenzbereich nach der Schematik von Abbildung 4.3.1.

## 4 Software zur Signal-Analyse

```
sample_rate = 8192           # per sec
rate_100Hz = 256            # per sec
samples = 524288            # number of samples
n_c = sample_rate/rate_100Hz # number of columns
n_r = samples/n_c           # number of rows

V_out = np.reshape(V_out, (n_r, n_c))
V_100Hz = V_out[:, 31]
```

Es wurde mit einer Rate von 8192 Messwerten pro Sekunde gemessen. Für den 100 Hz Frequenzbereich wird nur eine Rate von 256 Messwerten pro Sekunde benötigt. Das heißt, es müssen immer 31 Punkte übersprungen werden, um die richtigen Messpunkt zu erhalten, weshalb der Vektor  $V_{out}$  in eine Matrix  $V_{out}[i, j]$  mit 32 Spalten<sup>5, 6</sup> umgewandelt wird:

$$V_{out} = \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ \vdots \\ V_{524588} \end{bmatrix} \mapsto V_{out}[i, j] = \begin{bmatrix} V_1 & V_2 & \cdots & V_{32} \\ V_{33} & V_{34} & \cdots & V_{64} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & V_{524288} \end{bmatrix}. \quad (4.3.1)$$

Dabei entspricht  $V_{100\text{Hz}}$  der 32sten Spalte:

$$V_{100\text{Hz}} = V_{out}[i, 32] = [V_{32}, V_{64}, \cdots, V_{524288}], \quad (4.3.2)$$

wobei  $i \in [1, 2, \cdots, 32]$  ist.

Eine Spalte entspricht der richtigen Reihenfolge mit Zeitabstand  $T_A \approx 3.9$  ms (zum Beispiel zwischen  $V_1$  und  $V_{33}$  sowie zwischen  $V_{33}$  und  $V_{65}$ ) und enthält genau 16 Spektren. In Analogie dazu können immer neue Matrizen berechnet werden, die für andere Frequenzbereiche geeignet sind. So lässt sich der Vektor  $V_{out}$  in eine Matrix mit 64 Spalten mit Zeitabstand  $T_A = 7.8125$  ms umwandeln. Damit enthält eine Spalte genau 8 Spektren und entspricht einem Frequenzbereich von 50 Hz.

### 4.4 Leck-Effekt

Die Diskretisierung der Signale zu einer endlichen Zahl von Messpunkten führt grundsätzlich dazu, dass die Fourier-Transformation auch im Bereich zwischen  $t_1$

<sup>5</sup>In der Programmiersprache Python fängt man bei der Aufzählung immer mit 0 und nicht mit 1 an. Das heißt, die 32ste Spalte einer Matrix ist die 31ste Spalte in Python.

<sup>6</sup>Korrekterweise handelt es sich bei den verwendeten Numpy-Elementen um *Arrays*. Es lässt sich aber besser in Matrix-Form veranschaulichen.

und  $t_2$  diskretisiert ist. Die Zahl der Messwerte, um ein Spektrum zu berechnen, ist immer 1024 Punkte. Bei der Verwendung von DFT beziehungsweise FFT tritt häufig der sogenannte *Leck-Effekt* auf.

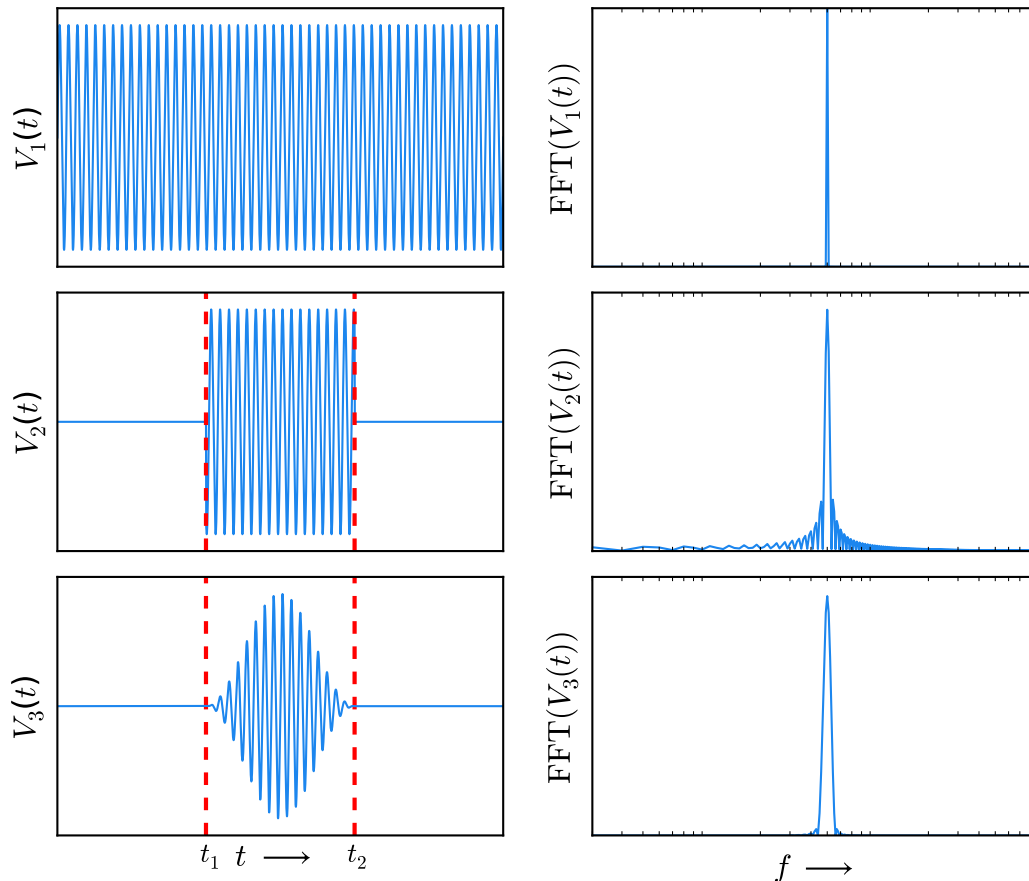


Abbildung 4.4.1:  $V_1(t)$  ist das kontinuierliche Signal.  $V_2(t)$  beschreibt daraus einen Ausschnitt zwischen  $t_1$  und  $t_2$ . Für  $V_3(t)$  gilt  $V_3(t) = V_2(t) \times f_{Hn}$ , wobei  $f_{Hn}$  eine Fenster-Funktion ist. Rechts sind die zugehörigen Fourier-transformierten Signale zu sehen.

Für ein kontinuierliches Signal beziehungsweise eine Sinus-Funktion  $V_1(t)$  (siehe Abbildung 4.4.1) erhält man eine  $\delta$ -artige Funktion als Antwort auf  $\text{FFT}(V_1(t))$ . Dagegen kommt es bei beschränkten Abtastsignalen (wie zum Beispiel  $V_2(t)$ ) aufgrund der Blocklängen, die kein ganzzahliges Vielfaches der Periode des abgetasteten Signals sind, zu einem breiten Antwortspektrum und einer harmonischen Schwingung in  $\text{FFT}(V_2(t))$ . Zur Reduzierung des Effektes werden Fensterfunktionen eingesetzt, und das abgetastete Signal wird zunächst mit der Fensterfunktion multipliziert, bevor die FFT ausgeführt wird<sup>7</sup>.

<sup>7</sup><http://de.wikipedia.org/wiki/Leck-Effekt>

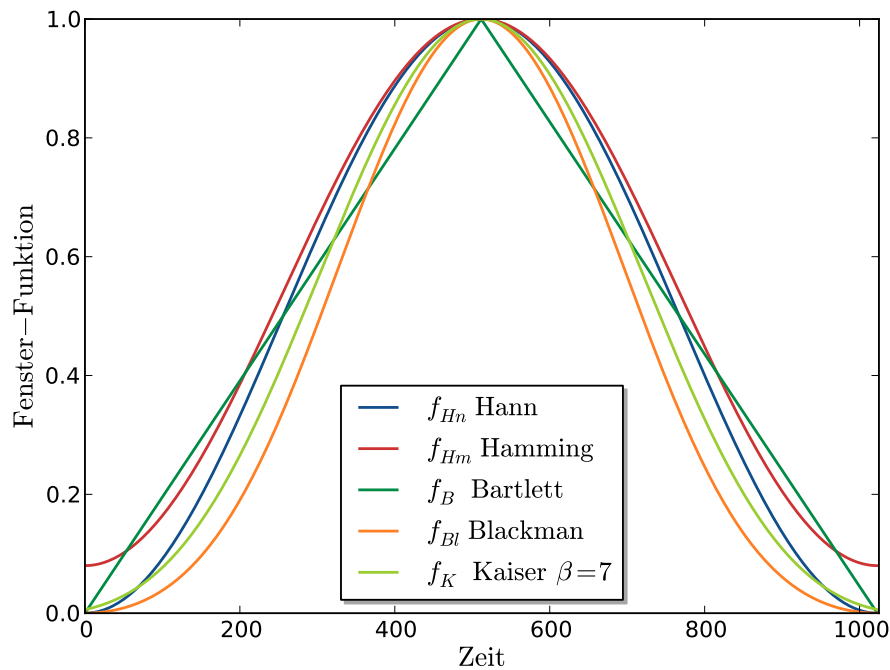


Abbildung 4.4.2: Verschiedene Fenster-Funktionen im Zeitbereich.

Abbildung 4.4.2 zeigt einige Fensterfunktionen, die für die Signalanalyse verwendet werden. In dieser Arbeit wird hauptsächlich das *von-Hann*-Fenster<sup>8</sup> verwendet:

$$f_{Hn}(k) = \begin{cases} \frac{1}{2} \left( 1 - \cos\left(\frac{2\pi}{m}k\right) \right) & \text{für } 0 \leq k \leq m \\ 0 & \text{sonst,} \end{cases} \quad (4.4.1)$$

wobei  $m$  die Zahl der Messpunkte (im Allgemeinen  $m = 1024$ ) ist.

Abbildung 4.4.1 zeigt die Funktion  $V_3(t) = V_2(t) \times f_{Hn}$  und ihre FFT ( $V_3(t)$ ). Die harmonische Schwingungen in der Fourier-Transformation von  $V_1(t)$  sind verschwunden. Allerdings ist das Signal immer noch verbreitert.

Im Normalfall wird der Mittelwert von mindestens 50 Spektren für eine Messung betrachtet. Der folgende Python-Code zeigt die Zerlegung der Spektren und die Anwendung des *von-Hann*-Fensters.

<sup>8</sup>Nach dem österreichischen Meteorologen JULIUS VON HANN

```

n_p = 1024          # number of points per spectrum
n_s = len(V_100Hz)/n_p  # number of spectra

f_Hann = np.hanning(n_p) # Hann window

V_100Hz = np.reshape(V_100Hz,(n_s, n_p))
V_100Hz = V_100Hz-np.median(V_100Hz)
V_100Hz = V_100Hz*f_Hann

```

Nach Gleichung 4.3.2 sind alle Punkte im Zeilenvektor  $V_{100\text{Hz}}$  richtig sortiert. Man kann diesen Vektor in eine Matrix mit  $1024 \times 16$  Punkten umwandeln.

$$V_{100\text{Hz}}^{(1)} = V_{out}[i, 32] \mapsto V_{100\text{Hz}}^{(2)} = \begin{bmatrix} V'_1 & V'_2 & \cdots & V'_{1024} \\ V'_{1025} & V'_{1026} & \cdots & V'_{2048} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ V'_{15361} & V'_{15362} & \cdots & V'_{16384} \end{bmatrix}, \quad (4.4.2)$$

Jede dieser 16 Zeilen steht zur Berechnung eines Spektrums zur Verfügung und besteht aus 1024 Punkten, die für einen Frequenzbereich von 100 Hz geeignet sind. Zuerst wird von jeder Zeile ihr Mittelwert abgezogen.

$$\begin{aligned}
V_{100\text{Hz}}^{(3)} &= V_{100\text{Hz}}^{(2)} - \overline{V_{100\text{Hz}}^{(2)}[i, 1 \dots 1024]} \\
&= \begin{bmatrix} V'_1 & V'_2 & \cdots & V'_{1024} \\ V'_{1025} & V'_{1026} & \cdots & V'_{2048} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ V'_{15361} & V'_{15362} & \cdots & V'_{16384} \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} \overline{V_{1, \dots, 1024}} \\ \overline{V_{1025, \dots, 2048}} \\ \vdots \\ \overline{V_{15361, \dots, 16384}} \end{bmatrix} \\
&= \begin{bmatrix} V''_1 & V''_2 & \cdots & V''_{1024} \\ V''_{1025} & V''_{1026} & \cdots & V''_{2048} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ V''_{15361} & V''_{15362} & \cdots & V''_{16384} \end{bmatrix}.
\end{aligned} \quad (4.4.3)$$

Danach wird jede Zeile mit der Fenster-Funktion  $f_{Hn}$  multipliziert.

$$\begin{aligned}
 V_{100\text{Hz}}^{(4)} &= V_{100\text{Hz}}^{(3)} \times f_{Hn} \\
 &= \begin{bmatrix} V_1'' & V_2'' & \cdots & V_{1024}'' \\ V_{1025}'' & V_{1026}'' & \cdots & V_{2048}'' \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ V_{15361}'' & V_{15362}'' & \cdots & V_{16384}'' \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_{1024} \end{bmatrix} \\
 &= \begin{bmatrix} V_1''' & V_2''' & \cdots & V_{1024}''' \\ V_{1025}''' & V_{1026}''' & \cdots & V_{2048}''' \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ V_{15361}''' & V_{15362}''' & \cdots & V_{16384}''' \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_{1024} \end{bmatrix}
 \end{aligned} \tag{4.4.4}$$

In Python-Code wird die Variable `V_100Hz` immer überschrieben, um sparsam mit dem verfügbaren Speicher umzugehen.

## 4.5 Fourier-Transformation

Im ersten Kapitel haben wir die Fourier-Transformation verwendet, um die spektrale Leistungsdichte zu berechnen. Bei realen Messungen sind alle Signale diskret und begrenzt. Daher verwendet man die *diskrete Fourier-Transformation* (DFT) und ihre optimierte Variante in Form der *schnellen Fourier-Transformation* (FFT).

### 4.5.1 DFT

Bei realen Messungen hat man aufgrund der Diskretisierung nur eine begrenzte Zahl an Messwerten und damit sind die berechneten Werte im Frequenzraum auch diskret und begrenzt.

Die Modifizierung der Gleichungen 1.3.2 und 1.3.3 für diskrete Werte ergibt:

$$Y(\Omega) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} y_n e^{-i\Omega n}. \tag{4.5.1}$$

Da man aber keine unendliche Anzahl von Werten, sondern nur  $N$  Werte hat, gilt dann für die gesamte Zeit:

$$T_0 = N \cdot T_A. \tag{4.5.2}$$

Daraus folgt die beobachtete Frequenz:

$$\Delta f = \frac{1}{T_0} = \frac{1}{N T_A} = \frac{f_A}{N}. \tag{4.5.3}$$

Der Index  $n$  läuft von 0 bis  $N - 1$ . Durch die normierte Kreisfrequenz  $f_k = k\Delta f$ , erhält man:

$$\Omega_k = \frac{2\pi f_k}{1/T_A} = \frac{2\pi k\Delta f}{1/T_A} = \frac{2\pi k T_A}{N T_A} = 2\pi k/N. \quad (4.5.4)$$

Damit erhält man die Hintransformation der DFT:

$$Y_k = \sum_{n=0}^{N-1} y_n e^{-i2\pi kn/N} = \sum_{n=0}^{N-1} y_n w_N^{kn}. \quad (4.5.5)$$

Die Rücktransformation lautet:

$$y_n = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} Y_k e^{i2\pi kn/N} = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} Y_k w_N^{-kn}, \quad (4.5.6)$$

wobei  $k = 0, \dots, N - 1$  und  $w_N = e^{-i2\pi/N}$  sind.

**Beispiel.** Für  $N = 6$  und  $y_0 = 1, y_1 = y_2 = y_3 = y_4 = 0$  und  $y_5 = 1$ :

Nach Gleichung 4.5.5 folgt [96]:

$$\begin{aligned} Y_k &= \sum_{n=0}^5 y_n e^{-i\pi kn/3} = 1 - e^{-i\pi k/3} + e^{-i\pi k 5/3} \\ &= 1 + e^{-i\pi k/3} + e^{i\pi k/3} \\ &= 1 - 2 \cos\left(\frac{\pi}{3}k\right). \end{aligned}$$

Die DFT-Formel (Gleichung 4.5.5) kann man in die Matrix-Darstellung umformen:

$$\underbrace{\begin{bmatrix} Y_0 \\ Y_1 \\ Y_2 \\ \vdots \\ Y_{N-1} \end{bmatrix}}_Y = \underbrace{\begin{bmatrix} w_0 & w_0 & w_0 & \cdots & w_0 \\ w_0 & w_1 & w_2 & \cdots & w_{N-1} \\ w_0 & w_2 & w_4 & \cdots & w_{2(N-1)} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ w_0 & w_{N-1} & w_{2(N-1)} & \cdots & w_{(N-1)^2} \end{bmatrix}}_F \cdot \underbrace{\begin{bmatrix} y_0 \\ y_1 \\ y_2 \\ \vdots \\ y_{N-1} \end{bmatrix}}_y. \quad (4.5.7)$$

$F$  ist die Fouriermatrix und besitzt die Eigenschaft, dass alle Spalten und Zeilen paarweise orthogonal zueinander sind. Für die Berechnung einer DFT mit der Länge  $N$  sind genau  $N^2$  komplexe Multiplikationen und  $N(N - 1)$  komplexe Additionen nötig. Insgesamt sind  $4N^2$  reelle Multiplikationen und Additionen erforderlich [95].

### 4.5.2 FFT

Eine schnelle Fourier-Transformation (englisch: Fast Fourier Transform, FFT) ist ein effizienter Algorithmus zur Berechnung der Werte der DFT. Bei solchen Algorithmen handelt es sich um Teile-und-Herrsche-Verfahren. Im Gegensatz zur DFT verwendet eine FFT die berechneten Zwischenergebnisse und spart Rechenoperationen ein. Das bekannteste Verfahren stammt von *James Cooley* und *John W. Tukey*. Der Gesamtaufwand reduziert sich für  $N$  Messwerte auf  $N \cdot \log_2 N$ .

Beispielsweise kann der Aufwand der DFT für  $N = 4$  reduziert werden. Hier wird die Periodizität des Drehvektors  $w_N$  verwendet, um den Rechenaufwand der Fouriermatrix durch die resultierende Symmetrie zu reduzieren:

$$\begin{bmatrix} w_0 & w_0 & w_0 & w_0 \\ w_0 & w_1 & w_2 & w_3 \\ w_0 & w_2 & w_4 & w_6 \\ w_0 & w_3 & w_6 & w_9 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} w_0 & w_0 \cdot w_0 & w_0 & w_0 \cdot w_0 \\ w_0 & w_1 \cdot w_0 & w_2 & w_1 \cdot w_2 \\ w_0 & w_2 \cdot w_0 & w_0 & w_2 \cdot w_0 \\ w_0 & w_3 \cdot w_0 & w_2 & w_3 \cdot w_3 \end{bmatrix} \quad (4.5.8)$$

In Gleichung 4.5.8 entspricht die linke Seite der Fouriermatrix  $F$  der DFT mit vier unterschiedlichen Spalten. Durch die Symmetrieeigenschaften kann  $F$  so umgeschrieben werden, wie es auf der rechten Seite der Gleichung zu sehen ist. Der Vorteil der rechten Seite ist, dass nur drei unterschiedliche Vektoren berechnet werden muss, um  $F$  zu bestimmen. Dagegen werden für die linke Seite vier Spalten benötigt. Das heißt, nur drei Vektoren werden benötigt, und die anderen lassen sich durch eine Kombination der drei Vektoren berechnen [95].

```
Sv = abs(np.fft.fft(V_100Hz, axis=1)/1024)**2
Sv = np.median(Sv, axis=0)
timestep = 4./1024
Freq100 = np.fft.fftfreq(len(Sv), d=timestep)
```

Jetzt kann man die FFT auf die Matrix  $V_{100\text{Hz}}^{(4)}$  anwenden. Der Code berechnet die PSD-Matrix  $S_V$  als Betragsquadrat der FFT jeder Zeile aus  $V_{100\text{Hz}}^{(4)}$ . Anschließend wird der Mittelwert von jeder Spalte bestimmt und daraus resultiert der Vektor  $S_V$  als Endergebnis.

Abbildung 4.5.1 zeigt eine Zusammenfassung der vorgestellten Rechenschritte. In (a) sind Rohdaten eines Spannungssignals visualisiert. Nach der Filterung des Signals und Abzug des Mittelwertes erhält man das Signal in (b). In (c) ist das Signal mit dem *von-Hann*-Fenster multipliziert. Nach der Berechnung der spektralen Leistungsdichte erhält man das Spektrum in (d).

Die letzten zwei Zeilen im Code berechnen die entsprechende Frequenzachse für den 100 Hz Frequenzbereich.



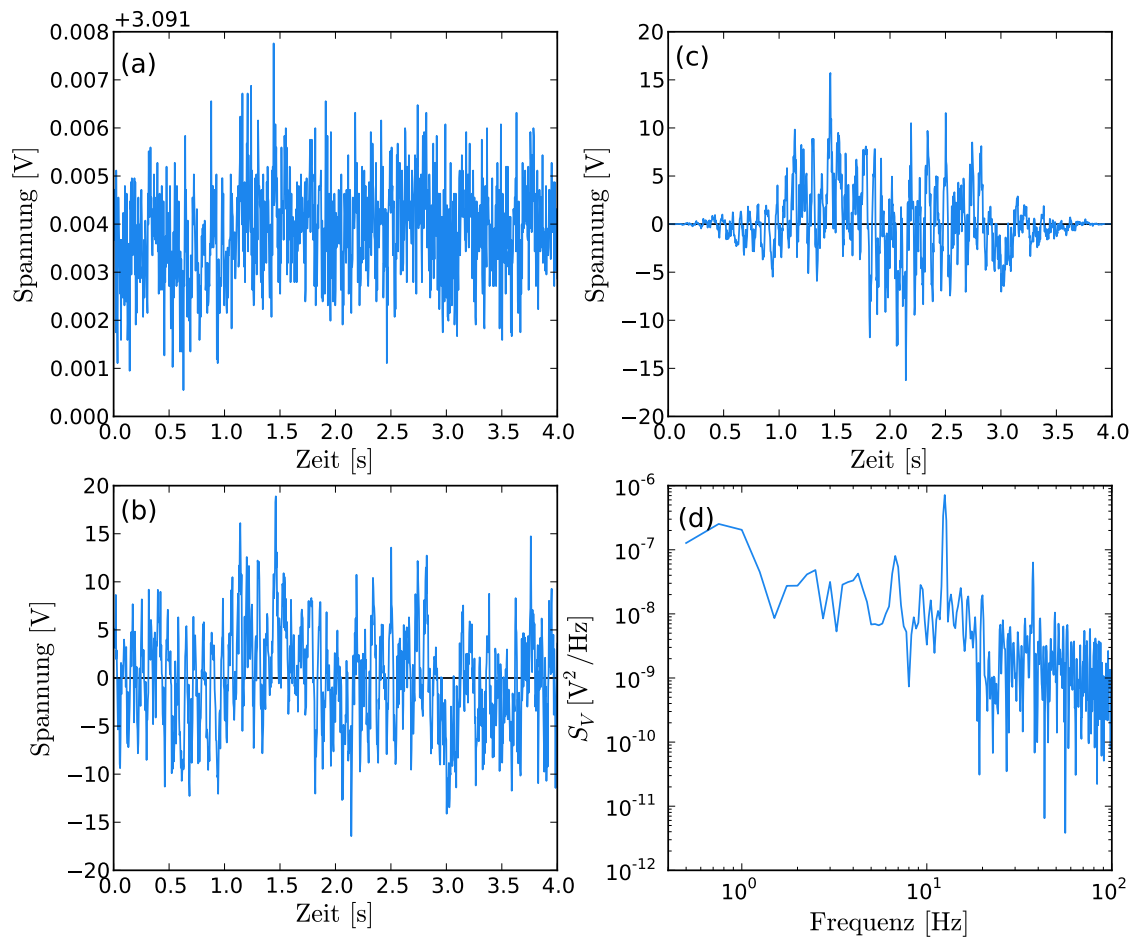


Abbildung 4.5.1: (a) Ein gemessenes Signal  $V_x$ . (b) Das Signal nach dem Tiefpass-Filter und dem Abzug des Mittelwertes. (c) Das Signal  $V_x$  multipliziert mit dem *von-Hann*-Fenster. (d) Die berechnete spektrale Leistungsdichte  $S_V$ .

Wie in Abschnitt 1.5.4 diskutiert, kann hier anhand der berechneten Spektren auch das Zweite Spektrum ausgewertet werden, bevor der Mittelwert berechnet wird. Jedem Spektrum wird ein Zeitpunkt zugeordnet und anschließend werden die Oktaven berechnet, um schließlich das Zweite Spektrum zu bestimmen.

## 4.6 Kalibrierung

Um die berechnete Spektrenamplitude mit der aus dem Signalanalysator zu vergleichen, haben wir weißes Rauschen für verschiedene Widerstände mit der Datenerfassungskarte gemessen und den Kalibrierungsfaktor berechnet.

Nach Gleichung 1.4.1 ist die spektrale Leistungsdichte proportional zum Wider-

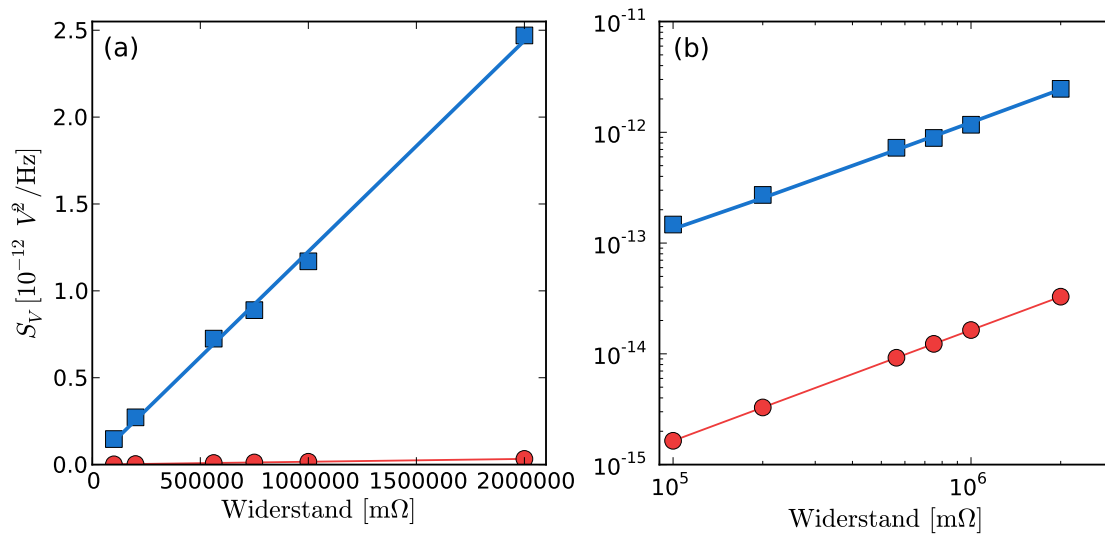


Abbildung 4.6.1: (a) Lineare Auftragung der PSD als Funktion des Widerstandes. (b) Doppelt logarithmische Auftragung. In Blau sind die gemessenen Spektren und in Rot die erwarteten theoretischen Werte aufgetragen.

stand. Es wurde das weiße Rauschen für die Widerstände  $100 \text{ k}\Omega$ ,  $200 \text{ k}\Omega$ ,  $562 \text{ k}\Omega$ ,  $750 \text{ k}\Omega$ ,  $1 \text{ M}\Omega$ ,  $2 \text{ M}\Omega$  gemessen und  $S_V$  wurde gegen den Widerstand aufgetragen. Die Steigung beträgt in diesem Fall  $m = 4k_B T K_F$ , wobei  $k_B$  Boltzmann-Konstante,  $T$  die (Raum-)Temperatur und  $K_F$  der Kalibrierungsfaktor sind.

Abbildung 4.6.1 (a) zeigt die gemessenen Spektren und die gefittete Gerade. In (b) sind die gleichen Daten zur besseren Übersicht doppelt logarithmisch aufgetragen. Ein Wert von  $K_F = 82.5$  erhalten wurde. Der Grund für einen Kalibrierungsfaktor stammt hauptsächlich von dem verwendeten *Butterworth*-Filter [99].

## 4.7 Weitere Möglichkeiten

### 4.7.1 Ein Spektrum

Die Anzahl der Punkte innerhalb eines Spektrums ist von der Zahl der Messwerte im Zeitraum abhängig. Für 1024 Punkte pro Messung im Zeitraum erhält man 400 Punkte pro Spektrum im Frequenzraum. Zum Beispiel ergibt sich für den Punkt mit der niedrigsten Frequenz bzw. den Abstand zwischen zwei benachbarten Punkten im  $100 \text{ Hz}$  Frequenzband folgende Frequenz:  $100 \text{ Hz}/400 = 0.25 \text{ Hz}$ . Wenn beispielsweise die Anzahl der Messwerte im Zeitraum um einen Faktor Acht vergrößert wird, verachtfacht dies auch die Zahl der Werte im Frequenzraum. Dadurch reduziert sich die niedrigste Frequenz ebenfalls um einen Faktor von Acht:

$100 \text{ Hz} / (400 \times 8) = 0.03125 \text{ Hz}$ . Diese Methode bietet die Möglichkeit tiefere Frequenzen auszuwerten; allerdings reduziert sich durch dieses Verfahren die Anzahl der ermittelten Spektren ebenfalls um einen Faktor von Acht. Um dem entgegen zu wirken, kann die im Folgenden beschriebene Code-Erweiterung (siehe 4.7.2) verwendet werden.

### 4.7.2 Code-Erweiterung

Aus der transformierten Matrix  $V_{\text{out}}[i, j]$  (siehe 4.3.1) wird nur die letzte Spalte  $V_{100\text{Hz}}$  (4.3.2) gewählt. Mathematisch gesehen kann jede Spalte zur Auswertung benutzt werden, da ihre Zahlenfolge mit dem gewählten Frequenzbereich übereinstimmt und somit alle Spalten die gleiche Information liefern. Im Allgemeinen kommt es nur im Bereich der hohen Frequenzen zu unterschiedlichen Verläufen. Dies liegt daran, dass der Hintergrund bei höheren Frequenzen dominanter ist. Durch eine Mittlung der Spektren, welche aus den verschiedenen Spalten der Matrix bestimmt werden, lässt sich dieser Effekt reduzieren.

Folgender Code schreibt die komplette Matrix  $V_{\text{out}}[i, j]$  in eine neue Matrix um:

```
# Number of all elements in matrix S1
S1_size = np.size(S1)

# convert the matrix into vector
S1 = np.reshape(S1, S1_size, order='F')

# Number of all elements in new vector S1
ZdS = len(S1)/point_Nr

# convert the vector into new matrix
S1 = np.reshape(S1, (ZdS, point_Nr))
```

Es können somit nun verschiedene Spektren ausgewertet werden, die jeweils eine Zeitverschiebung von  $T_A$  aufweisen. Je größer die Abtastrate  $f_A$  ist, umso mehr Spektren lassen sich auswerten. Nach Abbildung 4.3.1 sind im gemessenen Zeitsignal 16 Spektren für den 100 Hz Frequenzbereich und 8 Spektren für den 50 Hz Frequenzbereich enthalten. Mit der Abtastrate  $f_A = 8192 \text{ Hz}$  steigt die Anzahl der Spektren für jeden Frequenzbereich auf 512 Spektren an. Der in Abbildung 4.3.1 dargestellte Zusammenhang zwischen Frequenzbereich und Anzahl der Spektren ist somit nicht mehr gegeben, was anhand eines Beispiels kurz erläutert werden soll:

Die Messpunkte für den 100 Hz Frequenzbereich liegen in einem Abstand von  $T_A \approx 3.9 \text{ ms}$ , was gerade dem Abstand zwischen dem Matrixelement  $V_1$  und  $V_{33}$  der

#### 4 Software zur Signal-Analyse

Matrix  $V_{\text{out}} [i, j]$  entspricht und eine Anzahl von 32 Spalten für eine Auswertung zur Folge hat. Für den 50 Hz Frequenzbereich werden die Elemente mit einem Abstand von 64, d.h. beispielsweise  $V_1$  und  $V_{65}$  benutzt, wodurch sich zwar die Spaltenlänge halbiert, jedoch die Spaltenanzahl verdoppelt. Dies resultiert in einer gleichen Anzahl von Spektren für die jeweiligen Frequenzbereiche.

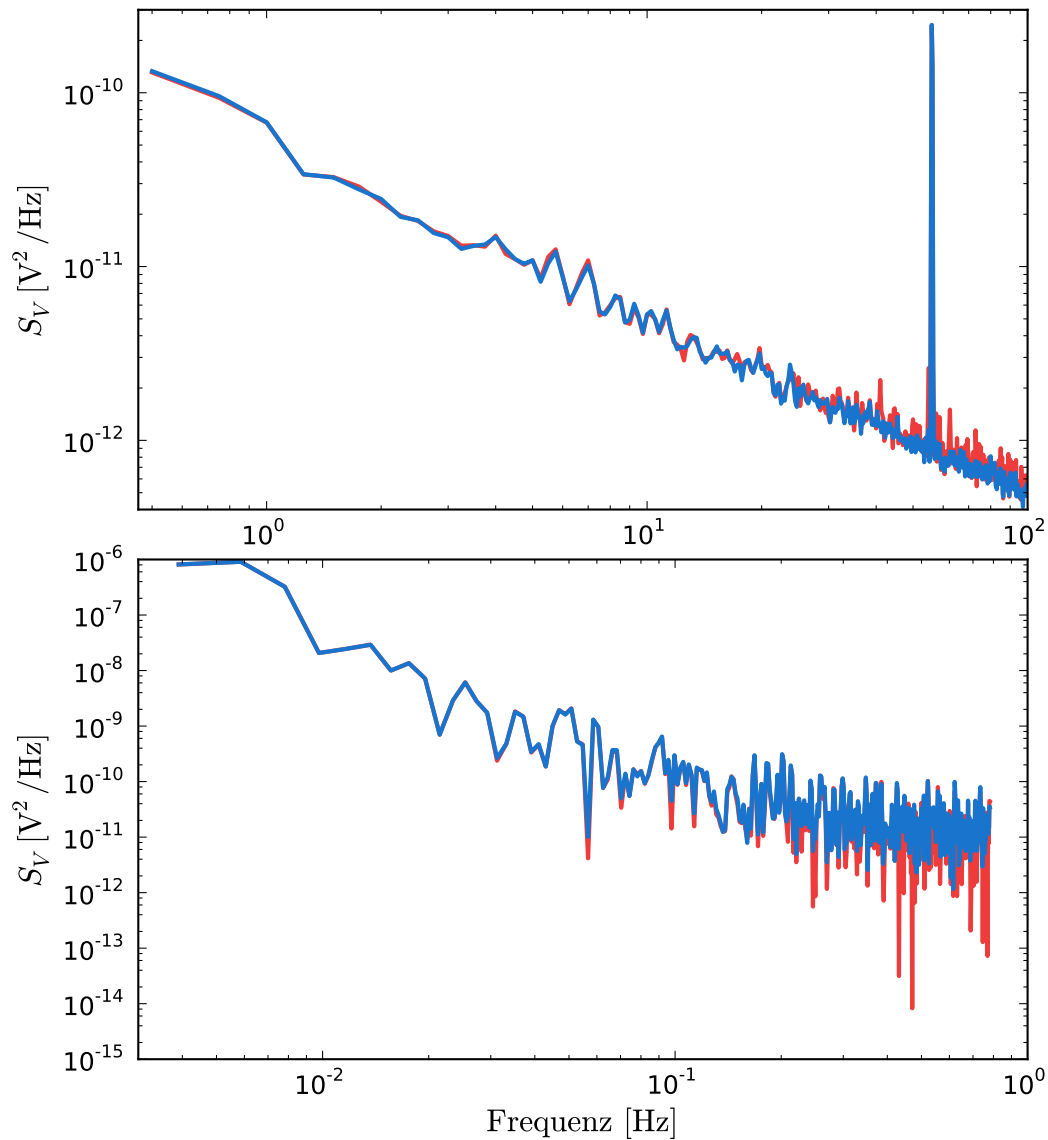


Abbildung 4.7.1: Die spektrale Leistungsdichte. Der rote Graph zeigt die in Analogie zum Signalanalysator berechnete PSD und der blaue Graph die nach dem erweiterten Code ausgewertete PSD für zwei Frequenzbereiche.

Der Code oben zeigt, wie die Matrix  $V_{\text{out}} [i, j]$  umgeschrieben werden kann, damit

die richtige Reihenfolge für die gewünschten Spektren entsteht. Die Idee ist, alle Spalten in einer Zeile hintereinander zu ordnen und diese Zeile erneut in eine weitere Matrix umzuwandeln. Dabei entspricht in dieser Matrix jede Zeile einem Spektrum (d.h. enthält normalerweise 1024 Punkte) und die Zahl der Zeilen demnach der Gesamtzahl aller Spektren.

Abbildung 4.7.1 zeigt in Rot ein nach der Methode des Analysators ausgewertetes Spektrum und in Blau das unter Verwendung des erweiterten Codes entstandene Spektrum der selben Daten. Die Auswirkung dieser modifizierten Analyse ist minimal für die niedrigen Frequenzbereiche, aber effektiv im Bereich der höheren Frequenzen. Die erhöhte Anzahl an Spektren erfordert eine erhöhte Rechenleistung, was jedoch für moderne Rechner kein Problem darstellt, weshalb eine generelle Anwendung dieser Methode zu empfehlen ist. Ausschließlich bei der Analyse des Zweiten Spektrums muss darauf geachtet werden, dass die benutzten (ersten) Spektren sich zeitlich nicht überschneiden und einen konstanten zeitlichen Abstand zueinander aufweisen.

### 4.7.3 Wavelet-Transformation

Eine relativ neue Transformation ist die Wavelet-Transformation, die zurzeit ein sehr wichtiges Werkzeug in der Technik und eine Alternative für Fourier-Transformationen darstellt.

Die diskrete Wavelet-Transformation wird in einer Vielzahl von Signalverarbeitungs-Anwendungen eingesetzt, wie beispielsweise in der Video-Kompression, Kompression in der Internetkommunikation, Objekterkennung und numerischen Analyse. Diese Transformation entstand aus verschiedenen Feldern wie der Mathematik, Physik und Bildverarbeitung. Die einfachste Form der Transformation stammt von *Alfréd Haar* (1909) und wurde in den 1950er-Jahren von *Jean Morlet* und *Alex Grossman* weiterentwickelt. Im Wesentlichen wurde die Transformation in verschiedenen Bereichen verwendet, aber mit unterschiedlicher Terminologie. In den späten 1980er Jahren vereinte *Stéphane Mallat* (1989) alle Arbeiten in einer Thematik. Die Wavelet-Transformation hat mit dem JPEG-2000-Standard stark an Popularität gewonnen. Eine detaillierte Beschreibung findet man in [94, 100, 101].

Die Wavelet-Transformation für ein kontinuierliches Signal  $x(t)$  lautet:

$$\mathcal{W}_x(b, a) = |a|^{-\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} x(t) \psi^* \left( \frac{t-b}{a} \right) dt, \quad (4.7.1)$$

wobei  $\psi_a(t) = \psi^* \left( \frac{t-b}{a} \right)$  eine Wellenfunktion darstellt und als Bandpass charakterisiert wird.

An verschiedenen Stellen wurde die Wavelet-Transformation bereits verwendet, zum Beispiel haben Berechnungen der spektralen Leistungsdichte unter Verwendung der *Morlet*-Wavelet-Transformation gezeigt, wie effektiv diese Transformation gegenüber der Fourier-Transformation ist [102]. Die Verwendung der Wavelet-Transformation wird auch für das  $1/f$ -Rauschen [103] oder als Werkzeug für die Charakterisierung von Spektren höherer Ordnung eingesetzt [104]. Die Wavelet-Transformation bietet viel Potential, was in Zukunft für die Fluktuationsspektroskopie getestet werden sollte.

### 4.8 Anwendungssystem: Nickelate

Wie schon zuvor erwähnt, bietet die Skript-Sprache Python eine Vielfalt an Möglichkeiten. Um einige davon zu demonstrieren, werden in diesem Abschnitt Messungen gezeigt, die mit Hilfe einer Datenerfassungskarte aufgenommen und mit Hilfe einer selbstentwickelten Software ausgewertet werden.

Die Messungen hierfür wurden automatisiert durchgeführt. Um dies zu ermöglichen, muss im Vorfeld geprüft werden, welche die passende Messmethodik ist (siehe Abschnitt 3.2) und wie sich die Probe innerhalb des gewünschten Temperaturbereichs verhält. Obwohl dies einige Vorarbeit erfordert, lohnt sich der Aufwand, da wir dadurch in der Lage sind „rund um die Uhr“ zu messen.

Zum Testen der neuen Messmethodik wurden Nickelat-Proben aus der Gruppe von *A. Loidl* und *S. Krohns*, Universität Augsburg untersucht. Die Ergebnisse dieser Messungen werden ausführlich in der Masterarbeit von *Sarah Ottersbach* behandelt (siehe [105]). Die Proben besitzen unterschiedliche Eigenschaften, die sie für unsere Tests ( $I$ - $V$ -Kennlinien und Fluktuationsspektroskopie) geeignet machen. Wir haben drei  $\text{La}_2\text{NiO}_4$ -Proben untersucht, die mit Ba, Ca oder Sr an der Stelle von La substituiert waren. Die Proben zeigen eine isolierende Widerstandscharakteristik. Sie haben bei Raumtemperatur einen Widerstand von einigen Ohm und bei tiefen Temperaturen ( $\sim 150$  K) erreicht der Widerstand einige  $\text{k}\Omega$ . Die Proben sind Polykristallin und zeigen außerdem einen Ladungsordnungsübergang unterhalb von 240 K. Damit sind die Proben ideal zum Testen der Software. Insbesondere vermuten wir einen Hinweis auf das Zweite Spektrum in diesem System zu finden. Das erlaubt uns künftig routinemäßig die Proben bezüglich des Zweiten Spektrums (siehe Abschnitt 1.5.4) und somit mögliche Korrelationseffekte höherer Ordnung (siehe Abbildung 1.5.1) bei tiefen Frequenzen zu untersuchen.

Abbildung 4.8.1 zeigt drei Messungen an  $\text{La}_{1.67}\text{Ba}_{0.33}\text{NiO}_4$  (LBNO) bei  $T = 270$  K,  $T = 220$  K und  $T = 182$  K. Die blauen Linien sind die mittels des Signalanalytators gemessenen Spektren und die gelben Kreise sind die berechneten Spektren basierend auf den Rohdaten der Datenerfassungskarte. Bis auf kleine minimale Abweichungen bei höheren Frequenzen liegen die Messungen aufeinander.

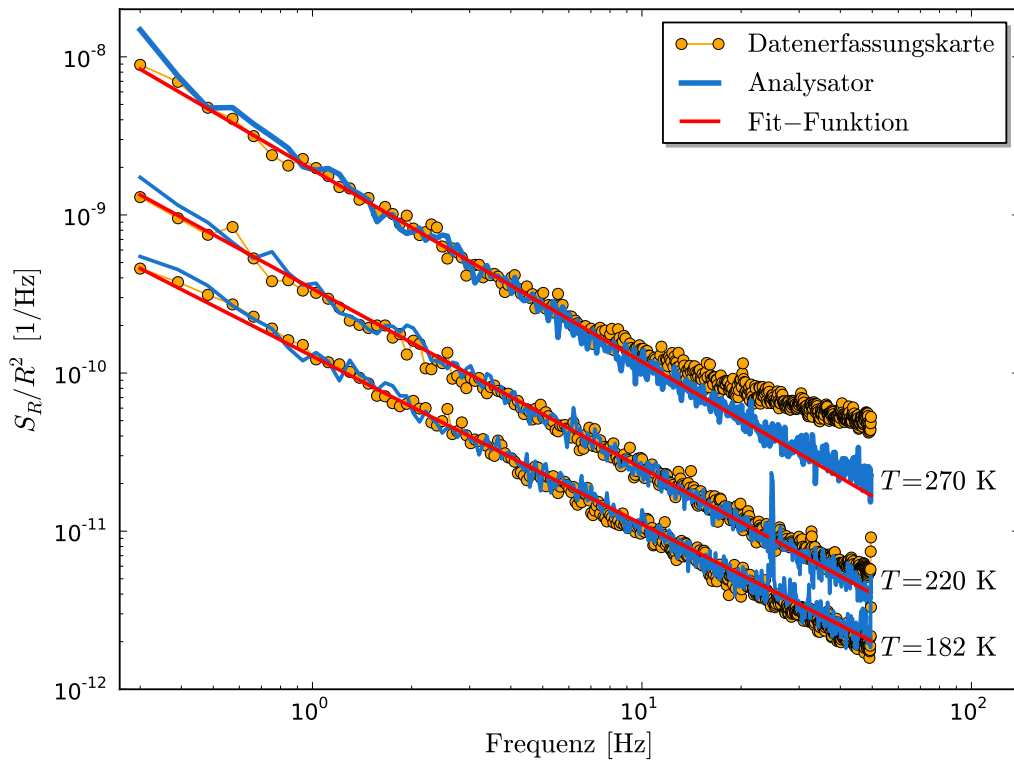


Abbildung 4.8.1: Beispiele für die normierte spektrale Leistungsdichte gemessen in LBNO.

Abbildung 4.8.2 zeigt beispielhaft die Analyse der Daten für  $\text{La}_{1.67}\text{Ca}_{0.33}\text{NiO}_4$  (LCNO) und  $\text{La}_{1.7}\text{Sr}_{0.3}\text{NiO}_4$  (LSNO) durch die beiden Messmethoden. Die Teilbilder (a) und (b) zeigen die Widerstandsverläufe der beiden Proben. Die Teilbilder (c) und (d) zeigen die normierte PSD als Funktion der Temperatur, gemessen mit dem Signalanalysator (rote Punkte) und mit Hilfe der Auswertungssoftware (blaue Punkte). Außerdem zeigen die Teilbilder (e) und (f) den Frequenz-Exponenten  $\alpha$  als Funktion der Temperatur, ebenfalls ermittelt durch den Signalanalysator (rote Punkte) und die Auswertungssoftware (blaue Punkte). Aufgrund der automatisierten Messungen kann eine sehr hohe Messpunktdichte erreicht werden. Dadurch sind die beiden Minima in der Nähe von 220 K der normierten PSD der beiden Proben deutlich zu erkennen. Ein möglicher Zusammenhang mit einer kommensurablen oder inkommensurablen Ladungsordnung und der damit verbundenen intrinsischen elektronischen Inhomogenitäten wird ausführlich in [105] diskutiert.

#### 4 Software zur Signal-Analyse

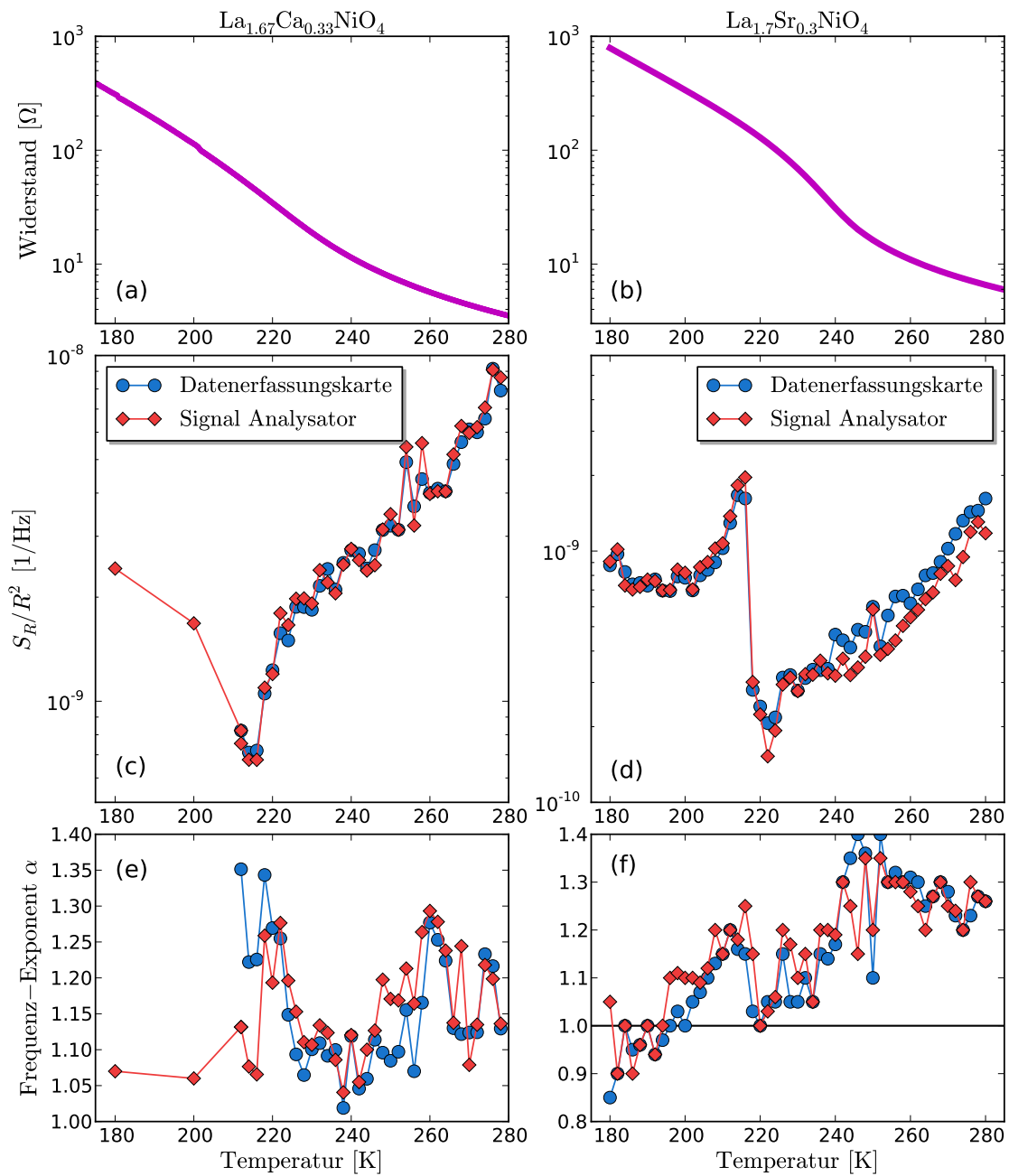


Abbildung 4.8.2: Die Messergebnisse für LCNO (links) und LSNO (rechts). (a) und (b) stellen den Widerstand dar. (c) und (d) zeigen die gemessene PSD durch den Analysator und die berechnete PSD durch die Software. In (e) und (f) sind die Frequenz-Exponenten  $\alpha$  aufgetragen.



## 5 Das System $\text{EuB}_6$

Die Tatsache, dass man durch Änderung des magnetischen Zustands eines Systems dessen elektronische Transporteigenschaften beeinflussen kann, ist eine wichtige Grundlage der „Spintronik“-Forschung. Die fundamentalen Effekte können anhand verschiedener komplexer Modellsysteme studiert werden, die einen großen negativen (oder sogar kolossalen) Magnetowiderstand (MR) zeigen, wie zum Beispiel magnetische Halbleiter und gemischtvalente Perowskite. Diese Materialien haben oft detailreiche Phasendiagramme. Es wird vermutet, dass nanoskalige Phasenseparation eine kritische Rolle bei der Entstehung des kolossalen MR (CMR) in solchen Materialien spielt [106]. Daher werden Systeme, die eine intrinsische elektronische Phasenseparation aufweisen, derzeit sowohl theoretisch als auch experimentell intensiv untersucht. Viele Systeme weisen keine räumliche Homogenität (magnetisch oder dielektrisch) in der Nähe des Phasenübergangs auf. Sie zeigen häufig verschiedene miteinander wechselwirkende Phänomene (Spin-, Ladungs-, Gittereffekte,...).

Aufgrund ihrer Komplexität können elektronisch korrelierte Systeme besonders relevant für zukünftige Anwendungen werden. In diesen Systemen sind nicht nur Ladung (Halbleiterelektronik) beziehungsweise Ladung und Spin (Spintronik) von Bedeutung, sondern darüber hinaus die Freiheitsgrade des Gitters und der Orbitale. Kleine Veränderungen in einem der Parameter können große Reaktionen in den Anderen verursachen. Miteinander konkurrierende metallische und isolierende Phasen bieten viel Potenzial für neuartiges Verhalten [107].

Seltene Erden Hexaboride  $\text{REB}_6$  (zum Beispiel  $\text{RE}=\text{Y}, \text{La}, \text{Ce}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Gd}, \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Eu}$ ) sind interessante Materialien, die einen sehr hohen Schmelzpunkt aufweisen. Außerdem sind ihre physikalischen Eigenschaften sehr vielfältig. Es treten verschiedene Phänomene wie Supraleitung [108], Kondo-Halbleiter [109], Metall-Isolator-Übergänge [110] oder exotische magnetische Vorgänge [111] auf. Aufgrund der Steifigkeit des oktaedrischen Bor-Käfiges ist die Struktur nahezu perfekt im gesamten Bereich der Materialien. Daher sehen Wissenschaftler in den  $\text{REB}_6$ -Nanomaterialien ein großes Potential für Neukonstruktionen von Hochtemperatur-Nanoelektronischen Geräten. Diese Nanomaterialien haben aufgrund ihrer großen Oberflächen besonders geeignete Eigenschaften (zum Beispiel, für den Elektroneneinfang und die Injektionseigenschaften) [112]. Man hat festge-

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

stellt, dass mit Hilfe der *vapor-liquid-solid growth*-Technik<sup>1</sup> erfolgreich Nanodrähte hergestellt werden können [113].

In der vorliegenden Arbeit wurde das ferromagnetische (FM) Metall  $\text{EuB}_6$  untersucht, das eine niedrige Ladungsträgerdichte aufweist und daher als Semimetall zu bezeichnen ist. Wir interessieren uns für die Phasenseparation und die Perkolationseffekte im elektrischen Widerstand bei tiefen Temperaturen.

$\text{EuB}_6$ -Einkristalle wurden aus einer Aluminium-Schmelze gewachsen, wie es in [114] beschrieben ist. Um die physikalischen Eigenschaften zu untersuchen, wurden Messungen des Widerstandes und des schwachen nichtlinearen elektrischen Transports durchgeführt. Außerdem wurde die Fluktuationsspektroskopie angewendet, die in einer Vier-Punkt-Konfiguration mit angelegtem Wechselstrom (AC) durchgeführt wird [91, 38] (siehe Kapitel 3).

### 5.1 Grundlagen

$\text{EuB}_6$  hat eine kubische Gittersymmetrie (Raumgruppe 221, Pm3m, CsCl-Typ). Abbildung 5.1.1 zeigt die  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen in Blau und die Bor-Oktaeder in Rot als  $(\text{B}_6)^{2-}$ . Eu hat die Elektronenkonfiguration  $[\text{Xe}] 4f^7 6s^2$ . Für  $\text{Eu}^{2+}$  sind die  $4f^7$ -Elektronen gemäß der *Hundschen* Regeln im Grundzustand  $^8S_{7/2}$ . Der *S*-Zustand ist magnetisch isotrop mit einem nominellen Wert von  $\mu_{\text{eff}} = g_J \mu_B \sqrt{J(J+1)} = 7.94 \mu_B$  für  $J = 7/2$ .

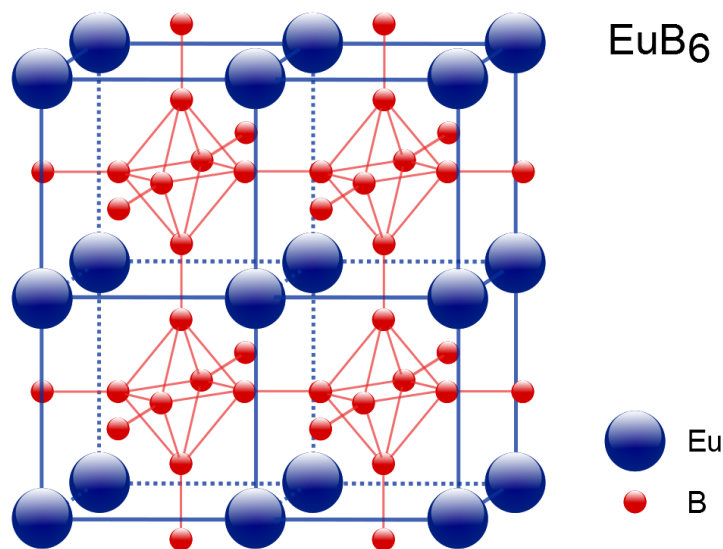


Abbildung 5.1.1: Die einfach kubische Struktur von  $\text{EuB}_6$ .

<sup>1</sup>Dampf-Flüssigkeit-Feststoff-Wachstums-Methode.

Obwohl  $\text{EuB}_6$  eine einfache Kristall- und magnetische Struktur besitzt, sind die Mechanismen der ferromagnetischen Ordnung und des kolossalen Magnetowiderstands bei tiefen Temperaturen bisher nicht vollständig verstanden.

Das System zeigt zwei Übergänge bei  $T_{\text{MI}} \approx 15.5$  K und  $T_{\text{C}} \approx 12.5$  K, die man durch Messungen des elektronischen Transports (siehe Abschnitt 5.2) oder der spezifischen Wärme einfach nachweisen kann [115, 116]. Messungen der Neutronenstreuung zeigen ein deutliches magnetisches Signal unterhalb von 13 K und nur ein undeutliches Signal zwischen 13 K und 16 K (siehe Abbildung 5.1.2) [117], was ein erster Hinweis auf eine magnetische Phasenseparation in diesem Bereich ist.

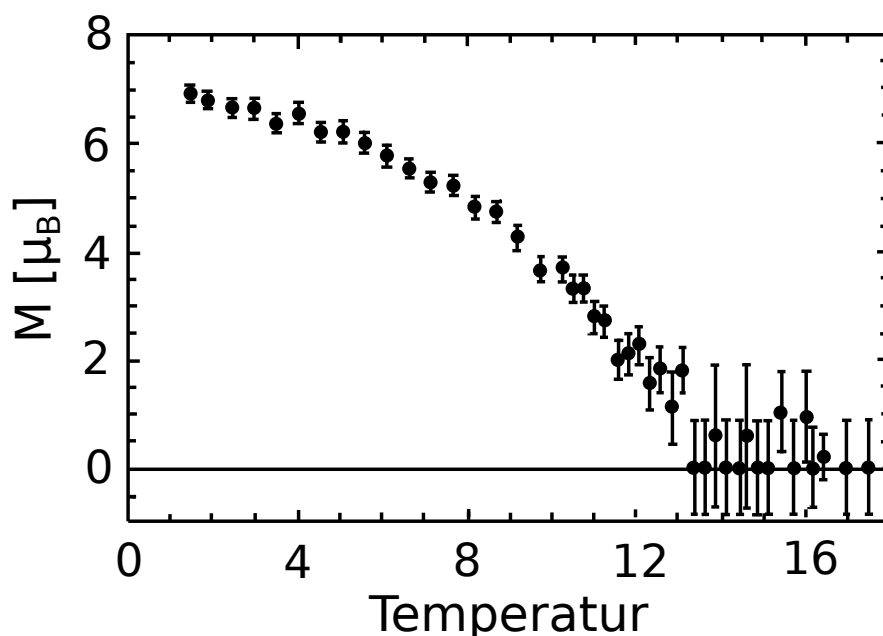


Abbildung 5.1.2: Das geordnete magnetische Moment von  $\text{EuB}_6$  als Funktion der Temperatur. Nach [117].

Abbildung 5.1.3 (a) zeigt die spezifische Wärme  $c_p(T)$  von  $\text{EuB}_6$ , die Größe  $c_p/T$  in (b) [118] und ihre Ableitung in (c) als Funktion der Temperatur. Die Ableitung zeigt die beiden Übergänge als Minima. Die Entropie bei 12.5 K beträgt ungefähr 85% der magnetischen Gesamtentropie von  $R \ln 8$ . Angenommen es handelt sich ausschließlich um magnetische Entropie, dann ordnen etwa 15% der Eu-Momente ferromagnetisch bereits bei der höheren Übergangstemperatur  $T_{\text{MI}} = 15.5$  K [11]. Daraus folgt, dass zwischen  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  eine magnetische Phasenseparation zu erwarten ist.

Oberhalb von  $T_{\text{MI}}$  ist das System paramagnetisch und unterhalb von  $T_{\text{C}}$  ferromagnetisch. Zwischen 12.5 K und 15.5 K vermutet man eine Anordnung von ferromagnetischen Clustern in einem paramagnetischen Hintergrund, die zu einer Phasenseparation und Perkulationsvorgängen führt. Der elektrische Widerstand bei  $T_{\text{MI}}$

lässt sich unter Anwendung von kleinen Magnetfeldern drastisch unterdrücken.

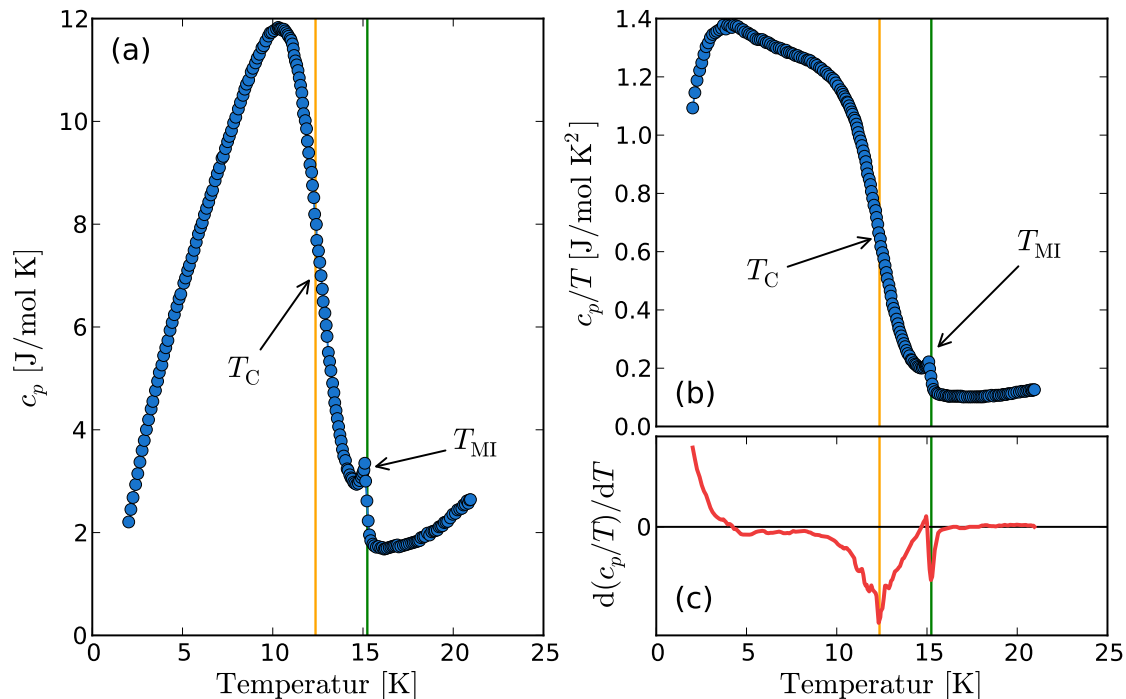


Abbildung 5.1.3: (a) Die spezifische Wärme  $c_p$  und (b) die Größe  $c_p/T$  nach [118] als Funktionen der Temperatur und ihre Ableitung in (c). Die orange Linie repräsentiert den magnetischen Übergang bei  $T_C$  und die grüne Linie stellt den Metall-Isolator-Übergang bei  $T_{MI}$  ( $\lambda$ -Übergang) dar.

Man findet in der Literatur verschiedene Erklärungen des CMR-Effektes: Zum Beispiel könnten die kritischen magnetischen Fluktuationen durch externe angelegte Magnetfelder unterdrückt werden [119], eine *Griffith*-Singularität [120, 121] auftreten oder die Ladungsträger könnten aufgrund der Überlappung von magnetischen Polaronen (MPen) delokalisiert werden [122, 123, 11].

Experimente an  $\text{EuB}_6$  mit Raman-Streuung [123] und Myon-Spin-Rotation [124] haben Hinweise auf die Bildung von MPen und auf magnetische Phasenseparation geliefert.

Allerdings fehlten in bisher durchgeführten Transportmessungen direkte Hinweise auf die vorgeschlagene elektronische Phasenseparation und die Perkolationsvorgänge.

### 5.1.1 Bandstruktur

Eine wichtige Frage ist, wie die Bandstruktur von  $\text{EuB}_6$  aussieht. In der Literatur findet man verschiedene Beschreibungen für  $\text{EuB}_6$ . Der folgende Abschnitt liefert eine Kurzfassung der wichtigsten Modelle, die in Frage kommen, um ein Metall zu beschreiben.

Im Bandstruktur-Modell verschiebt ein externes Magnetfeld  $H$  nur die Up- und Down-Spin-Bänder um  $\pm g\mu_B H$  ohne Veränderung des Netto-Spin-Moments, wobei  $g$  der Landé-Faktor und  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton sind. In einer stöchiometrischen Verbindung ist die Anzahl der Elektronen pro Einheitszelle  $n = n^\uparrow + n^\downarrow$  eine ganze Zahl. Die Differenz  $n^\uparrow - n^\downarrow$  ist auch eine ganze Zahl und entspricht dem Drehimpuls, der in Einheiten des Bohrschen Magnetons berechnet wird [125]. Die Abbildung 5.1.4 zeigt eine schematische Darstellung eines normalen Metalls in (a) und eines ferromagnetischen Metalls wie Fe, Co, oder Ni in (b). Außerdem sind die Zustandsdichten für ein Halbmetall wie  $\text{CrO}_2$  in (c) und ein Semimetall wie  $\text{EuB}_6$  in (d) gezeigt.

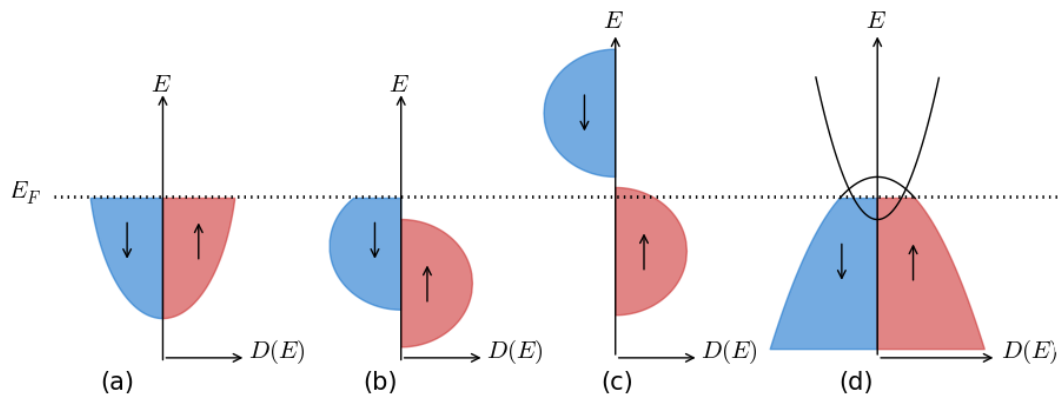


Abbildung 5.1.4: Schematische Darstellung der Zustandsdichte  $D(E)$  für (a) ein normales Metall, (b) ein ferromagnetisches Metall, (c) ein Halbmetall und (d) ein Semimetall. Nach [125].

Die Spinpolarisation ist ein Maß für das Verhältnis der Elektronendichte einer Spinsorte an der *Fermi*-Kante und wird durch folgenden Ausdruck gegeben:

$$P_0 = (D^\uparrow - D^\downarrow) / (D^\uparrow + D^\downarrow) , \quad (5.1.1)$$

wobei  $D^{\uparrow,\downarrow}$  die Zustandsdichten der Majorität ( $\uparrow$ ) oder der Minorität ( $\downarrow$ ) an der *Fermi*-Kante sind. Im Fall von ballistischem oder diffusivem Transport müssen die Zustandsdichten durch die *Fermi*-Geschwindigkeit  $v_F$  der Elektronen beziehungsweise ihr Quadrat gewichtet werden [126]:

$$P_n = \left( \langle D^\uparrow \nu_F^{\uparrow n} \rangle - \langle D^\downarrow \nu_F^{\downarrow n} \rangle \right) / \left( \langle D^\uparrow \nu_F^{\uparrow n} \rangle + \langle D^\downarrow \nu_F^{\downarrow n} \rangle \right). \quad (5.1.2)$$

Eine frühere theoretische Arbeit basierend auf der Berechnung der Bandstruktur für  $\text{EuB}_6$  mittels der lokalen Dichtenäherung (englisch: Local Density Approximation) zeigte eine schwache Überlappung von Leitungs- und Valenzband am  $X$ -Punkt [127]. Die Messungen der *Shubnikov–de Haas* [128] und *de Haas–van Alphen* Oszillationen [129, 128] haben dieses Modell bestätigt. Die qualitative Übereinstimmung mit der berechneten elektronischen Struktur zeigt, dass  $\text{EuB}_6$  ein Semimetall mit einer intrinsischen Ladungsträgerdichte von  $1.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  und kein dotierter Isolator ist. Außerdem bleiben die Fermi-Fläche und Ladungsträgermassen im Wesentlichen durch das Auftreten des Ferromagnetismus unbeeinflusst [128]. Die Löcherkonzentration beträgt ein Loch pro 185 Einheitszellen [11].

ARPES-Messungen (englisch: angle-resolved photoemission spectroscopy) zwischen 20 K und 30 K zeigen dagegen, dass dieses System ein *Halbleiter* mit einer Bandlücke von 1 eV am  $X$ -Punkt ist [130]. Moderne theoretische Arbeiten mit LDA+U und Kondo-Gitter-Modelle zeigen eine spontane Zeeman-Aufspaltung im ferromagnetischen Regime für das Leitungs- und das Valenzband. Das führt zu einer vollständigen Spin-Polarisation und damit zur Annahme, dass es sich bei  $\text{EuB}_6$  um ein *Halbmetall* handelt [131, 132].

Messungen mit *Andreev*-Reflexionsspektroskopie zeigen eine Spin-Polarisation  $P = 56\%$  ( $\pm 9\%$ ), was im Widerspruch zum Halbmetall-Bild steht. Die Messungen der Spin-Polarisation, des elektrischen Transports und der Fermifläche deuten auf ein vollständig spin-polarisiertes Valenzband im ferromagnetischen Regime und ein unpolarisiertes Elektronenband hin, was mit dem Bild des Semimetalls übereinstimmt [10].

### 5.1.2 Magnetische Polaronen (MPen)

Magnetische Polaronen wurden 1967 erstmals in einer experimentellen Studie am magnetischen Halbleiter  $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Se}$  vorgeschlagen [133]. Sie bilden sich, wenn es für die Löcher energetisch günstig ist, die lokalen Momente mit Grundzustand  $^8S_{7/2}$  in einem begrenzten Gebiet zu polarisieren [134]. Die Größe der MPen wird somit durch das Gleichgewicht zwischen der Zunahme an kinetischer Energie der Ladungsträger aufgrund ihrer Lokalisierung und der Verringerung der Austauschenergie durch das Ausrichten der lokalen Momente bestimmt [111].

In diesem Abschnitt wird das Modell der MPen vorgestellt, das sehr hilfreich bei der Erklärung der auftretenden Übergänge bei tiefen Temperaturen ist. Dieses Modell wird häufig für magnetische Halbleiter (Ga, Mn)As angewendet, siehe [135, 136].

Dieses Modell kann in allen magnetischen Systemen verwendet werden, die magnetische Cluster mit Gesamtspin  $\vec{S}$  enthalten. Dabei werden die Spins  $\vec{S}$  als lokalisiert betrachtet und wechselwirkend mit den Elektronenspins  $\vec{s}$ , wie zum Beispiel in Eu-Chalkogeniden. Ein typisches Beispiel sind verdünnte magnetische Halbleiter: Sie zeigen eine erhöhte *Zeeman*-Aufspaltung durch die Austauschkopplung, die man mit Hilfe der Molekularfeldnäherung folgendermaßen ausdrücken kann:

$$E = g^* \mu_B \vec{s} \cdot \vec{H} + 2J \vec{s} \cdot \langle \vec{S} \rangle, \quad (5.1.3)$$

wobei  $g^*$  der spektroskopische Aufspaltungsfaktor für Ladungsträger,  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton,  $\vec{H}$  das Magnetfeld,  $\langle \vec{S} \rangle$  der Mittelwert der lokalen Momente im Bereich der Band-Elektronen und  $J$  die Austauschkonstante sind. Der zweite Term ist für die enorme Aufspaltung in der Größenordnung von einem Bruchteil eines Elektronenvolts unterhalb des ferromagnetischen Übergangs und bis  $10 \text{ meV}^{-1}$  im paramagnetischen (oder antiferromagnetischen) Bereich verantwortlich [137, 138]. Diese Wechselwirkung verursacht innerhalb des ausgedehnten Gebiets eine lokale ferromagnetische Anordnung (magnetisches Polaron), die auch im paramagnetischen Zustand zu beobachten ist [134, 139, 140]. *Zener* [141] führte 1951 den spinabhängigen Elektronentransfer in der Leitfähigkeit ein und *de Gennes* [142] führte das magnetische „Spin“-Polaron zur Beschreibung des Ferromagnetismus in  $\text{LaMnO}_3$  ein. Die Annahmen in diesem Modell für die Stabilität des Polarons stammen von *Kasuya* [8, 143]. Demzufolge soll ein einzelnes Elektron oder ein Loch für die Entstehung des Polarons in einem antiferromagnetischen oder paramagnetischen Gitter verantwortlich sein. In Abwesenheit jeglicher Defekte oder Verunreinigungen kann man die freie Energie  $\Delta F_f$  eines sphärischen polarisierten Clusters wie folgt berechnen:

$$\Delta F_f = \frac{E_0}{\gamma^2} - \frac{J}{2\gamma^3}, \quad (5.1.4)$$

wobei  $E_0 = (\pi^2 \hbar^2 / 2ma^2)$ ,  $\gamma = R_p/a$  mit  $a = 1/\sqrt[3]{4\pi N_{\text{Eu}}}$ ,  $R_p$  der Polaronenradius und  $N_{\text{Eu}}$  die Zahl der  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen pro Einheitsvolumen sind. Probleme in Gleichung 5.1.4 bereiten die Grenzwerte für  $R_p \rightarrow 0$  und  $R_p \rightarrow \infty$ . Eine bessere Beschreibung liefert Gleichung 5.1.5, die durch die Coulomb-Anziehung eines Elektrons an ein entgegengesetzt geladenes Zentrum zustande kommt:

$$\Delta F = \Delta F_f - \frac{e^2}{\epsilon R_p}. \quad (5.1.5)$$

Dieser Fall tritt am häufigsten in (geringfügig dotierten) magnetischen Halbleitern auf, die man immer noch als Isolatoren betrachten kann. Dabei fungieren die Dotierungsatome als attraktives Zentrum, so wie es in jedem gewöhnlichen Halbleiter der Fall ist. Die Minimierung bezüglich  $R_p$  ergibt eine stabile Konfiguration,

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

die *Kasuya* als gebundenes magnetisches Polaron oder als magnetische Verunreinigungen bezeichnet [138]. Gleichung 5.1.5 enthält einen einfachen Term für die Coulomb-Anziehungskraft. Für endliche  $R_P$  führt die Gleichung auch für andere inverse  $R_P$ -Abhängigkeiten zu einer Lösung. Die Beschreibung wird schwieriger, wenn die Coulomb-Kraft schwach oder nicht vorhanden ist. Dies ist beispielsweise in  $(\text{Cd}, \text{Mn})\text{Te}$  der Fall [144].

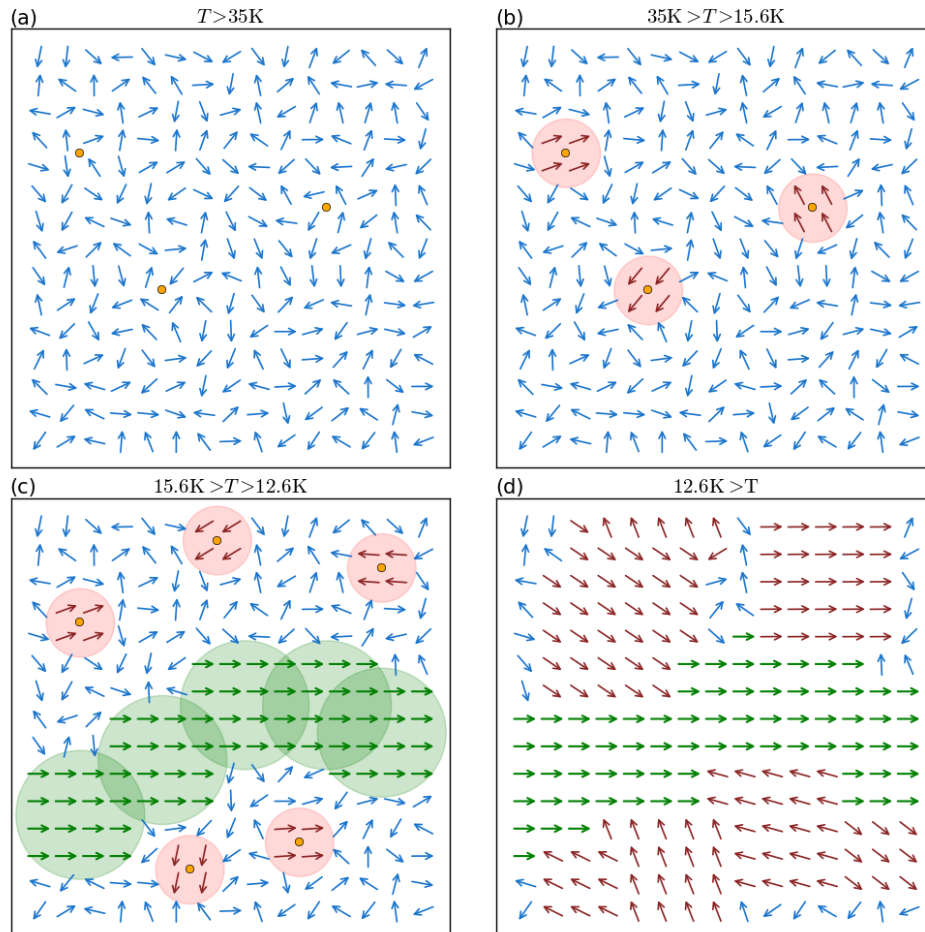


Abbildung 5.1.5: Die Entstehung von MPen in  $\text{EuB}_6$ : (a) Oberhalb von  $T \approx 35\text{K}$  sind die magnetischen Momente der  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen als blaue Pfeile und die der Löcher mit orangefenen Punkten dargestellt. (b) Zwischen  $T \approx 35\text{K}$  und  $T \approx 16\text{K}$  entstehen voneinander isolierte MPen, die in Rot markiert sind. (c) Bei  $T \approx 16\text{K}$  bildet sich der erste leitfähige Pfad aus MPen (in Grün). (d) Unterhalb von  $T \approx 12.6\text{K}$  ordnet sich das System ferromagnetisch an.

Ein ferromagnetisches Polaron kann sich nicht leicht in einer paramagnetischen (oder antiferromagnetischen) Umgebung in Anwesenheit eines elektrischen Feldes bewegen. Es sei denn, das Polaron führt seine polarisierte Wolke mit, was zu einer



großen effektiven Masse (diffusive Bewegung) [8, 145] oder zu einer Lokalisation führt [138]. Im Halbleiter geht man davon aus, dass die Zahl der magnetischen Defekte viel kleiner als die Zahl der Ladungsträger ist. Diese Idee kann auch zu großen Polaronen führen (siehe [146]). Abhängig von der Umgebung kommt es bei den MPen zu einer Lokalisierung beziehungsweise zu einer diffusiven Bewegung in einer paramagnetischen oder antiferromagnetischen Phase in Form von *Hopping*-Prozessen (Hüpf-Prozessen). Dieser Prozess ist im Allgemeinen abhängig vom externen Magnetfeld. Diese Überlegungen stellen eine Möglichkeit dar, den Magnetowiderstand zu verstehen.

Die Beschreibung des Transports wird immer noch durch die *Fermi*-Energie in Bezug auf die Mobilität charakterisiert. Dieses Konzept umfasst auch das physikalische Bild der magnetisch geordneten und leitenden perkolierenden Cluster im weniger magnetisch geordneten und schlechter leitenden Hintergrund [138]. Die Messungen an Manganaten von *De Teresa et al.* mittels Kleinwinkelneutronenstreuung zeigen die Existenz von solchen clusterartigen Phasen oberhalb von  $T_C$  [122]. Obwohl die Bildung von MPen für verschiedene magnetische Systeme diskutiert wurde, ist die zugrundeliegende mikroskopische Natur der elektrischen Transporteigenschaften in den MP-Phasen noch nicht genau verstanden und Gegenstand der aktuellen Forschung [119, 147, 148, 149].

Im Allgemeinen besteht  $\text{EuB}_6$  aus  $\text{Eu}^{2+}$  und  $(\text{B}_6)^{2-}$ . Abbildung 5.1.5 (a) zeigt  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen mit einem Gesamtspin  $S = 7/2$  (Pfeile) und Löcher (orangene Punkte). In einem einfachen Bild befindet sich die Ladungsdichteverteilung der Elektronen hauptsächlich in der Nähe der Eu-Ionen, während sich die Löcher in der Nähe der B-Atome befinden [147].

Abbildung 5.1.5 (b) zeigt die Entstehung von ferromagnetischen Clustern für den Bereich  $35 \text{ K} \gtrsim T \gtrsim 16 \text{ K}$ . Unsere Ergebnisse der Fluktuationsspektroskopie lassen vermuten, dass unterhalb von  $T = 35 \text{ K}$  genau das geschieht (siehe Kapitel 5.4). Ein Phasendiagramm für  $\text{EuB}_6$  mit Substitution durch La zeigt, dass die MPen nur in dem Bereich unterhalb von 30 K existieren sollen, wenn der La-Anteil gleich Null ist [150].

Bei tiefen Temperaturen kommt es durch eine höhere Dichte an MPen und/oder größere Polaronenradien zur Überlappung, was zu einer parallelen Ausrichtung der Spins der beteiligten MPen führt. Bei  $T \approx 16 \text{ K}$  entsteht der erste leitende Pfad durch sich überlappende MPen (siehe Abbildung 5.1.5 (c)) und die Löcher werden im leitenden Pfad delokalisiert. Dieser Effekt verursacht einen starken Abfall des Widerstands (siehe Abschnitt 5.2).

Beim Erreichen der Curie-Temperatur friert dieser Pfad in eine größere Domäne aus. Dabei sind die magnetischen Momente vermutlich aufgrund der Formanisotropie parallel zur langen Achse der Probe ausgerichtet. Alle anderen magnetischen Momente außerhalb dieses Pfades ordnen ebenfalls ferromagnetisch (siehe Abbil-

dung 5.1.5 (d)).

Im Gegensatz zu magnetischen Halbleitern, welche mit magnetischen Atomen dotiert werden müssen, werden die MPen in  $\text{EuB}_6$  auf natürliche Weise gebildet. Im Gleichgewicht bei konstanter Temperatur und konstantem Magnetfeld erwartet man eine Normalverteilung der Polaronengröße. Ihre Anzahl ist auf die maximale Zahl der Löcher begrenzt.

### 5.1.3 Hall-Effekt und Phasenseparation

Einen wichtigen Hinweis für die Phasenseparation in  $\text{EuB}_6$  liefern neuere Hall-Effekt-Messungen von *Zhang et al.*, die eine deutliche Veränderung in der Steigung des Hall-Widerstands in der paramagnetischen Phase als Knick zeigen. Ein Beispiel für einen gemessenen Hall-Widerstand ist in der eingebetteten Grafik in Abbildung 5.1.6 (a) in Grün bei 35 K zu sehen. Jede Messung konnte mit zwei Geraden beschrieben werden (in Rot). Die Schnittpunkte der beiden Geraden repräsentieren das sogenannte *Crossover*-Feld oder *Switching*-Feld.

Das *Switching*-Feld  $H_{\text{sw}}$  beim Hall-Effekt hängt linear von der Temperatur ab, wie es in (a) zu sehen ist. Überraschenderweise extrapolieren die Daten zur paramagnetischen *Curie*-Temperatur  $\theta = 15$  K bei  $\mu_0 H = B = 0$  T, wie ein Vergleich mit der inversen paramagnetischen Suszeptibilität  $\chi^{-1}(T)$  zeigt (siehe Abbildung 5.1.6 (a) und (b)). Mit Hilfe der paramagnetischen *Curie*-Temperatur  $\theta$  konnte die Messung neu skaliert werden. Die Skalierung der Hall-Daten und der Magnetfelder durch  $\theta$  ist in (c) zu sehen. Alle skalierten Kurven  $-\rho_{\text{Hall}}/(T - \theta)$  als Funktion von  $B/(T - \theta)$  liegen gemeinsam auf einer einzigen Kurve. Das erlaubt den Autoren dieses Verhalten als Funktion mit nur drei Parametern zu beschreiben; und zwar mit Hilfe der beiden Steigungen der an die Daten gefitteten Geraden (siehe die eingebettete Grafik in (a)) und der universellen kritischen Magnetisierung. Es gilt

$$\tilde{R}(B, T) = R_0 f(B, T) + R_1 [1 + f(B, T)] , \quad (5.1.6)$$

wobei  $\tilde{R}(B, T)$  die Steigung des Hall-Widerstandes bei Magnetfeld  $B$  und Temperatur  $T$ ,  $R_0$  die Anfangssteigung und  $R_1$  die zweite Steigung sind.  $f(B, T)$  ist eine Gewichtungsfunktion und wird durch eine *Fermi*-Funktion beschrieben. Das Ergebnis ist in der eingebetteten Grafik in (c) zu sehen. Das Gebiet mit der kleinen Steigung beschreibt die leitfähigere Phase, wohingegen das höhere Gebiet eine weniger leitfähige Phase darstellt. Die Autoren interpretieren das *Switching*-Feld bei einer einzigen kritischen Magnetisierung als Perkolationsübergang zwischen einer leitfähigeren sowie magnetisch geordneten Phase und einem PM-Hintergrund. Unter der Verwendung des MPen-Modells kann man verstehen, wie die beiden Phasen zustande kommen. In der paramagnetischen Phase existieren zwar MPen,

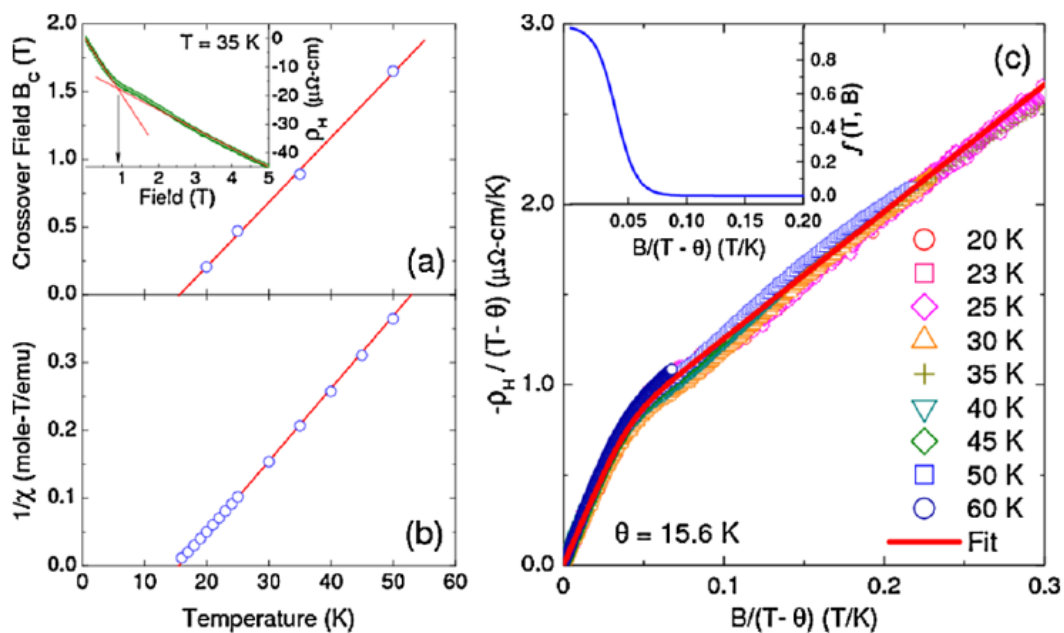


Abbildung 5.1.6: (a) Temperaturabhängigkeit des *Switching*-Feldes des Hall-Widerstandes. Ein Beispiel zur Bestimmung des *Switching*-Feldes bei  $T = 35$  K ist in der eingebetteten Grafik in Grün dargestellt. Die durchgezogenen roten Linien sind lineare Anpassungen an die Punkte. (b) Temperaturabhängigkeit der reziproken magnetischen Suszeptibilität bei 0.02 T gemessen. Die paramagnetische Curie-Temperatur ist 15.53 K. (c) Die verschiedenen Symbole repräsentieren die Hall-Widerstände, die bei unterschiedlichen Temperaturen von 20 K bis 60 K skaliert sind. Die horizontale Achse  $B / (T - \theta)$  ist proportional zur Magnetisierung in der paramagnetischen Phase. Die rote durchgezogene Kurve ist eine Anpassung an die Daten. Die eingebettete Grafik ist die verwendete Gewichtsfunktion, aus [12].

sind aber gebunden. Transport der Polaronen durch Hüpfprozesse bedeutet das Mitführen der magnetischen „Polarisationswolke“, was in einer paramagnetischen Umgebung nur als thermisch aktivierter Prozess stattfinden kann. Dagegen ist es einfacher, wenn die Umgebung polarisiert ist. Die Autoren glauben, dass eine Überlappung der MPen zu deren Delokalisierung beziehungsweise zur Delokalisierung der Löcher führt [12].

Motiviert durch diese Ergebnisse führten wir Fluktuationsspektroskopie und schwache nichtlineare Transportmessungen (Dritte Harmonische) durch, welche im Gegensatz zur herkömmlichen linearen Widerstandsmessung empfindlich für die Mikrogeometrie der Probe, d. h. intrinsische und extrinsische elektronische Inhomogenitäten, sind.

## 5.2 Linearer Widerstand

In dieser Arbeit werden die Messungen an vier verschiedenen  $\text{EuB}_6$ -Proben vorgestellt. Es wurden unterschiedliche Methoden der elektrischen Transportmessung durchgeführt, um die elektrischen Eigenschaften der Proben zu untersuchen. Die Tabelle 5.1 zeigt die Art der Messungen, die Ausrichtung der Probe in Bezug auf das Magnetfeld und die Maße der Probe.

Probe Nr.	Messung	Maße
1	Widerstand ( $1\omega$ ), ( $3\omega$ )	$550\mu\text{m} \times 300\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$
2	Fluktuationsspektroskopie	$1175\mu\text{m} \times 79\mu\text{m} \times 11.5\mu\text{m}$
3	Fluktuationsspektroskopie	$1175\mu\text{m} \times 80.4\mu\text{m} \times 11.5\mu\text{m}$
4	Widerstand ( $1\omega$ ), ( $3\omega$ )	$5600\mu\text{m} \times 660\mu\text{m} \times 300\mu\text{m}$

Tabelle 5.1: Übersicht der für die unterschiedlichen Messungen verwendeten Probengeometrien. Der Strom  $I$  sowie das externe Magnetfeld  $H$  wurden immer parallel zur langen Achse der Probe angelegt.

Ziel dieser Arbeit war es, zum ersten mal Messungen des Widerstandsrauschens sowie des dritten harmonischen Widerstands (DHW) durchzuführen um gezielt das Vorliegen einer Phasenseparation oder von Perkolation in  $\text{EuB}_6$  zu untersuchen. Die Fluktuationsspektroskopie wurde in Abwesenheit eines Magnetfeldes zwischen 5 K und 100 K und mit Magnetfeld in der paramagnetischen Phase zwischen 18 K und 32 K durchgeführt.

Der dritte harmonische Widerstand (DHW) ist sensitiv auf die Verteilung der Strompfade innerhalb der Probe und liefert Informationen über die Kopplung zwischen den magnetischen und elektrischen Eigenschaften. In den folgenden Abschnitten werden der lineare Widerstand und der DHW als Funktion der Stromdichte  $j$ , der Frequenz  $f$  und des Magnetfeldes  $H$  gezeigt. Dabei war das Magnetfeld parallel zur langen Achse der Probe angelegt.

### 5.2.1 Widerstand

Abbildung 5.2.1 (a) zeigt den Widerstand  $R$  bzw. den spezifischen Widerstand  $\rho$  einer  $\text{EuB}_6$ -Probe (Nr. 2, optimierte Form<sup>2</sup> für Fluktuationsspektroskopie-Messungen, siehe Abbildung 3.1.1). Beim Abkühlen von Raumtemperatur auf  $T^* \approx 35$  K verringert sich der Widerstand, wobei ein breites Minimum bei  $T^*$  beobachtet wird. Unterhalb dieser Temperatur steigt der Widerstand an und erreicht ein Maximum bei  $T_{\text{MI}} \approx 16$  K, bevor er rasch abnimmt. Der Restwiderstand beträgt bei

<sup>2</sup>Nach Gleichung 3.0.2 muss die Probe möglichst lang sein, um den Widerstand zu maximieren.

Weiterhin muss sie breit genug sein, damit sie kontaktiert werden kann. Die Dicke muss klein genug sein, um das Volumen zu minimieren.

$\rho(T \rightarrow 0) \approx 2.3 \mu\Omega\text{cm}$  und das Restwiderstandsverhältnis  $\rho(300\text{ K})/\rho(T \rightarrow 0)$  beträgt ca. 70 [151].

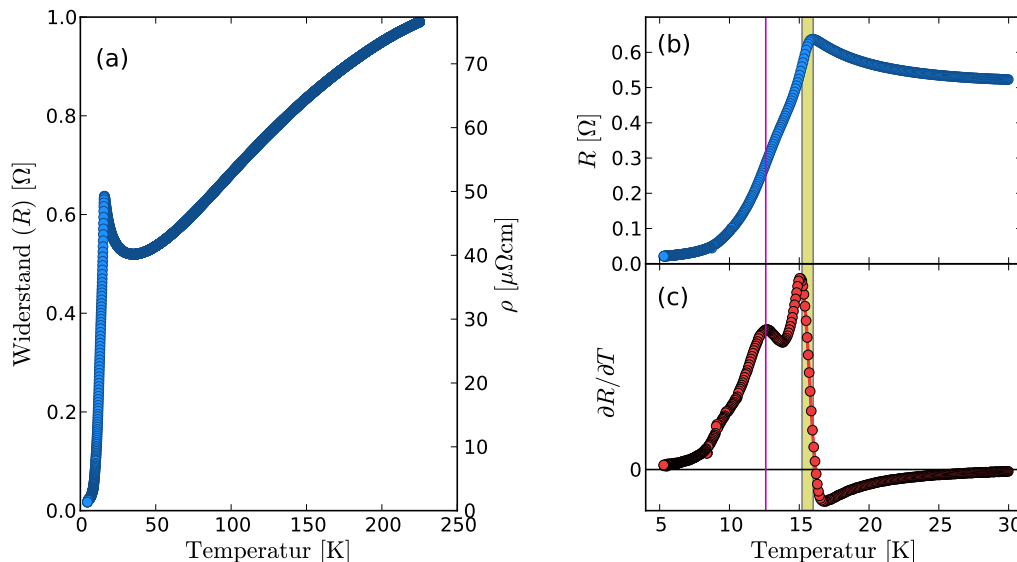


Abbildung 5.2.1: (a) Der Widerstand einer  $\text{EuB}_6$ -Probe (Nr. 2): Das Minimum im Widerstand wird mit  $T^*$  bezeichnet und tritt bei ca. 35 K auf. (b) Der Widerstand im Bereich zwischen 5 K und 30 K: Für diese Probe ist die *Curie*-Temperatur  $T_C = 12.6$  K in Magenta und der Metall-Isolator-Übergang bei  $T_{\text{MI}} = 15.2$  K in Gelb gezeigt.  $T_{\text{MI}}$  und  $T_C$  wurden nach den lokalen Maxima der Ableitung der Widerstandskurve in (c) definiert.

In Abbildung 5.2.1 (b) sehen wir die beiden Übergänge, die durch die beiden lokalen Maxima der Ableitung  $\partial R/\partial T$  in der Abbildung 5.2.1 (c) definiert sind. Der Metall-Isolator-Übergang findet bei  $T_{\text{MI}} \approx 15.2$  K und der magnetische Übergang bei  $T_C = 12.6$  K statt. Die beiden Übergänge sind nur bei Proben von hoher Qualität deutlich im Widerstand sichtbar [152, 151].

### 5.2.2 Magnetowiderstand (MR)

Der spezifische Widerstand eines Systems kann im Allgemeinen durch einen dreidimensionalen Tensor zweiter Stufe beschrieben werden. Beim Vorliegen von Zeitumkehrsymmetrie kann man eine Diagonalisierung des Tensors durchführen, welcher sich dann wie folgt ausdrücken lässt:

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \rho_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \rho_{zz} \end{pmatrix}. \quad (5.2.1)$$

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

Dies gilt nur für verschwindende Spin-Bahn-Kopplung in Abwesenheit eines Magnetfeldes. In isotropen und kubischen Systemen ist der spezifische Widerstand ein Skalar  $\rho = \rho_{xx} = \rho_{yy} = \rho_{zz}$ .

Ein externes Magnetfeld bricht diese Symmetrie. Die entstehende *Lorentz*-Kraft beeinflusst die diagonalen Elemente des Tensors und verursacht einen sogenannten *longitudinalen* und *transversalen* Magnetowiderstandseffekt.

Die relative Änderung des Widerstands (MR-Verhältnis) kann wie folgt charakterisiert werden:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(B) - R(B=0)}{R(B=0)} = \frac{\Delta \rho}{\rho}. \quad (5.2.2)$$

In magnetischen Systemen spielt die Magnetisierung die Rolle des externen Feldes und die Kristallanisotropie verursacht eine Magnetisierung entlang der leichten Achse (englisch: *easy axis*). Deshalb liefern Messungen parallel oder senkrecht zu der leichten Achse unterschiedliche Ergebnisse. Ein solches Verhalten bezeichnet man als *anisotropen Magnetowiderstand* [153].

In CMR-Systemen (zum Beispiel  $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$ ) verursacht die Wirkung eines externen Magnetfeldes einen Phasenübergang, der von einem Metall-Isolator-Übergang begleitet wird. Das *Hopping*-Modell von MPen ist als plausibles Modell geeignet, den elektrischen Transportmechanismus zu beschreiben [154].

$\text{EuB}_6$  ist eines der ersten Systeme, an dem der CMR-Effekt beobachtet wurde. Das Material zeigt bereits in kleinen Magnetfeldern (Größenordnung von mT) eine starke Verringerung des Widerstandes.

Abbildung 5.2.2 (a) zeigt den gemessenen Magnetowiderstand an Probe Nr. 4 und in 5.2.2 (b) die berechnete Größe  $\Delta R/R_0$  nach Gleichung 5.2.2. Diese Größe hat einen Vorzeichenwechsel bei  $\mu_0 H \approx 12$  mT. Ein zunehmendes Magnetfeld lässt die MPen größer werden. Das gilt für die Polaronen innerhalb des Polaronenpfades und der isolierten Cluster. Für den elektrischen Transport sind die Elektronen des Leitungsbandes und die Löcher innerhalb des Polaronenpfades zuständig. Ein aufgrund des Magnetfeldes verbreiteter Pfad sorgt nicht für eine bessere Löcherbeweglichkeit, sondern im besten Fall für eine höhere Löcherkonzentration innerhalb des Pfades. Das heißt, bis ungefähr 12 mT führt das Magnetfeld effektiv nur zu einer Vergrößerung der MPen aber nicht zu einer besseren Leitfähigkeit durch die Löcher. Abbildung 2.1.2 zeigt verschiedene Arten von entstehenden Clustern beziehungsweise Polaroneninseln. Alle MPen, die nicht an der Leitfähigkeit (Hauptsächlich: Isolierende Inseln und Polaronen des „*dead end*“-Gebiets) beteiligt sind, werden bei zunehmendem Magnetfeld stärker lokalisiert und haben einen größeren Streuungsquerschnitt mit den Leitungselektronen. Dies verursacht einen mit dem externen Magnetfeld ansteigenden Widerstand. Allerdings gilt dies nur solange die

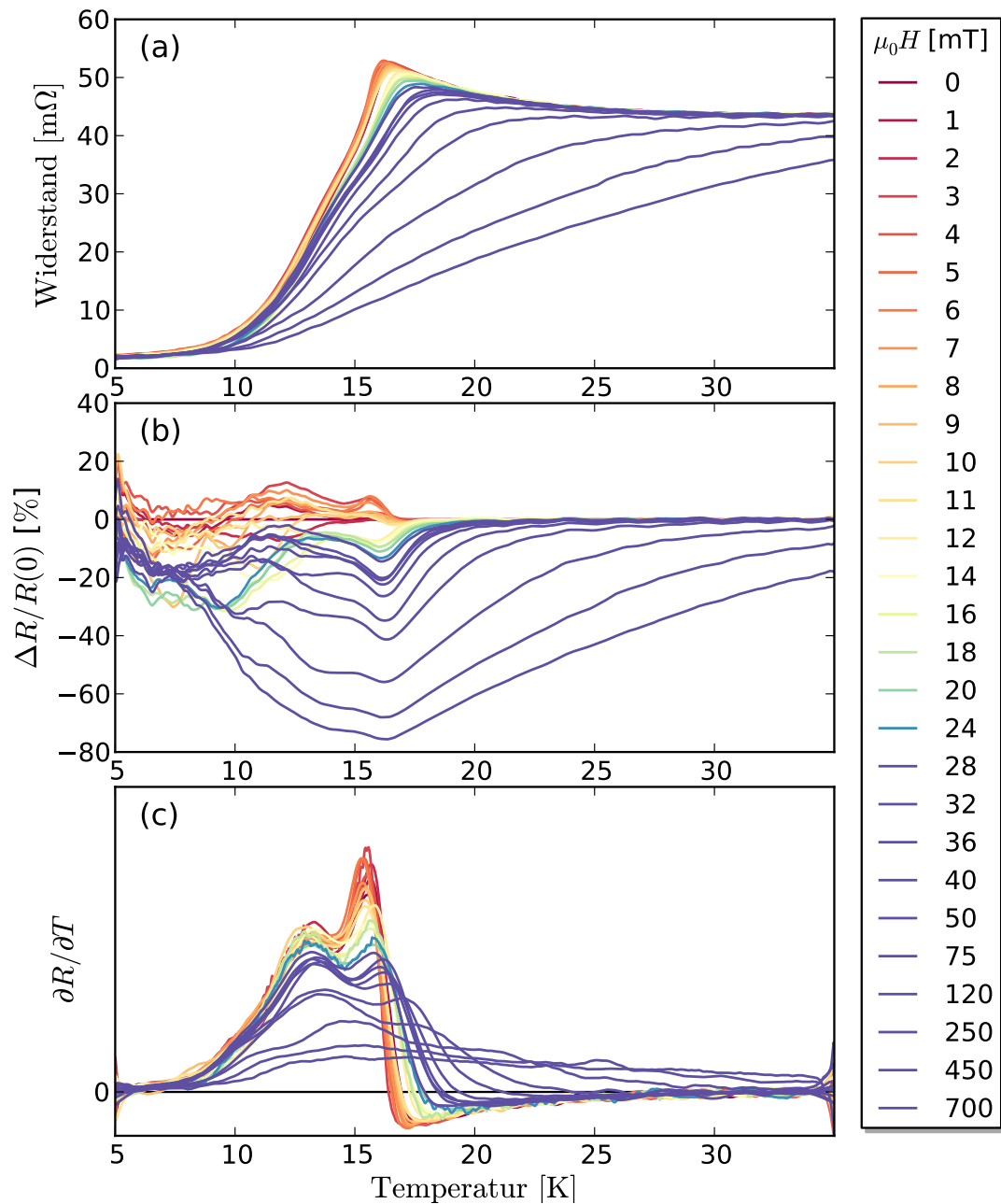


Abbildung 5.2.2: Gemessener Widerstand der Probe Nr. 4: (a) zeigt den Widerstand in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Magnetfelder. Dabei ist das Magnetfeld parallel zur langen Achse der Probe angelegt. (b) zeigt den Magnetowiderstand und (c) die Ableitung des Widerstandes aus (a).

Wirkung des Magnetfelds auf die Polaronen größer ist als auf die  $\text{Eu}^{2+}$ -Spins der paramagnetischen Phase. Wenn das Magnetfeld größer als 12 mT ist, werden die

magnetischen Momente der  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen in immer stärker Richtung des externen Felds ausgerichtet, was zu einer erhöhten Beweglichkeit der Polaronen (Löcher) und zur Verringerung des Widerstands führt. In einer neueren Veröffentlichung wurde im System  $\text{GdSi}$  in Abhängigkeit von der Kristallrichtung ein negativer beziehungsweise ein positiver MR gemessen. Die Autoren vermuten, dass dieses System auch magnetische Polaronen aufweist. Außerdem zeigen die MR-Messungen, dass eine starke Kopplung zwischen Spin, Gitter und Ladungsträgern vorliegt [155].

Bei zunehmendem Magnetfeld wird die Ausrichtung der magnetischen Cluster im System homogener und damit wird die Beweglichkeit der MPen erhöht. In 5.2.2 (c) sind die Ableitungen der Widerstände dargestellt. Bei niedrigen Magnetfeldern  $\mu_0 H \leq 100$  mT existiert ein Maximum am Metall-Isolator-Übergang und zeigt eine leichte Verschiebung zu höheren Temperaturen bei Erhöhung des externen Magnetfelds. Dieser Effekt ist auch im DHW zu sehen (siehe Abschnitt 5.3.1). Das spricht für eine Entstehung des Polaronenpfades (siehe Abbildung 5.1.5) bei höheren Temperaturen. Das heißt, bis zu externen Magnetfeldern von  $\mu_0 H \approx 100$  mT werden die Polaronenradien größer beziehungsweise die Anzahl der MPen höher. Damit kommt es innerhalb dieses Temperaturbereiches zu der Entstehung eines Polaronenpfades. In Abbildung 5.2.2 (a) ist dieses Verhalten auch zu beobachten. Erst ab einem Magnetfeld von  $\mu_0 H \approx 100$  mT verschwindet das Maximum des Widerstandes bei  $T_{\text{MI}}$  vollständig. Vermutlich ist die Polaronengrenze bei Magnetfeldern über  $\mu_0 H \approx 100$  mT keine relevante Größe mehr, die man für die Erklärung der Lokalisierung der Ladungsträger braucht. Die paramagnetische Umgebung ist jetzt auch so stark polarisiert, dass man davon ausgehen kann, dass die Grenze eines MP undefiniert ist. Durch das Verschwimmen der Grenzen verlieren die Polaronen ihre Rolle als einzelne ferromagnetische Einheiten in der Probe, da die gesamte Umgebung auch magnetisch polarisiert ist. Einen Hinweis auf einen solchen Effekt liefern Messungen mittels Mikro-Hall-Magnetometrie [156] (siehe 5.5).

### 5.2.3 Frequenzabhängigkeit

Abbildung 5.2.3 (a) zeigt den Widerstand unterhalb von 35 K für Frequenzen zwischen 7 Hz und 1.117 kHz. Bei linearen Widerständen erwartet man bis 1 kHz keine Abhängigkeit des Widerstands von der Frequenz. Das heißt, es reicht aus den Realteil des AC-Signals zu betrachten, da der Imaginärteil sehr klein ist. Im Allgemeinen ist die Impedanz eine komplexe Größe und kann durch den folgenden Ausdruck beschrieben werden:

$$Z = R_0 + i\omega \left( L - CR_0^2 \right), \quad (5.2.3)$$

wobei  $R_0$  der reelle Widerstand,  $L$  die Induktivität und  $C$  die Kapazität der Probe sind [157].



Gleichung 5.2.3 zeigt, dass der imaginäre Anteil für höhere Induktivitäten ansteigt. Das führt bei den hier durchgeführten AC-Messungen zu einem signifikanten Phasenanteil. Abbildung 5.2.3 (a) zeigt den reellen Widerstand als Funktion der Temperatur. Unterhalb von 16 K ist der Widerstand frequenzabhängig und bei  $T_C = 12.6$  K beobachtet man ein Maximum bei höheren Frequenzen. Beide Übergänge sind in der Frequenzabhängigkeit des linearen Widerstands deutlich zu sehen! Trägt man die Größe  $R_x(T, f) - R_x(T, f = 7 \text{ Hz})$  in Abhängigkeit von der Temperatur auf, sind die beiden Übergänge deutlicher zu erkennen (siehe (b)). Ebenfalls zeigt (c)  $R_y(\omega) = \omega(L - CR_0^2)$  ein Maximum bei  $T_C$  und einen mit der Frequenz ansteigenden Hintergrund im gesamten Temperaturbereich.

Man geht davon aus, dass sich bei  $T \approx 16$  K ein leitfähiger Pfad durch Überlappung von MPen bildet, in dem die Löcher mobiler sind, was zu einer starken Erniedrigung des Widerstandes führt. Mit weiter sinkender Temperatur wird der Pfad größer beziehungsweise es bilden sich weitere Pfade.

Wir vermuten, dass der erste Pfad, der durch MPen zustande kommt, hauptsächlich von den größten MPen gebildet wird. Denn in Analogie zum *Droplet*-Modell der Spin-Gläser (siehe Abschnitt 1.5.5.1) neigen solche MPen aufgrund ihrer größeren magnetischen Momente eher dazu, miteinander zu wechselwirken. Nach und nach beteiligen sich auch die kleineren MPen am Pfad.

Die Annahme, dass ein Polaron durch die Wechselwirkung zwischen einem Loch und der Umgebung ( $\text{Eu}^{2+}$ ) zustande kommt, bedeutet, dass ein Polaron bezüglich der Umgebung positiv geladen ist. Daher reagiert es auf elektrische Wechselströme. Kleine MPen können leichter den höheren Frequenzen folgen, während große MPen zu träge sind. Dieses Verhalten führt zu einer Schwächung der Leitfähigkeit des Pfades beziehungsweise eines teilweisen Abbruchs eines Pfades, indem durch die angelegte Frequenz die Beteiligung der kleinen MPen am Polaronenpfad erschwert wird.

Eine weiterführende Analyse ist in Abbildung 5.2.4 zu sehen. Viele Arbeiten haben sich mit der Abhängigkeit zwischen Widerstand und Frequenz in inhomogenen Materialien beschäftigt [158, 159, 160]. In der Perkolationstheorie gilt (siehe Kapitel 2):

$$\sigma \propto \omega^\vartheta \tag{5.2.4}$$

$$\epsilon \propto \omega^{-\varphi}, \tag{5.2.5}$$

wobei  $\sigma$  die Leitfähigkeit,  $\epsilon$  die dielektrische Konstante,  $\omega$  Frequenz und  $\vartheta$  sowie  $\varphi$  deren Exponenten sind [161, 162]. Außerdem erfüllen die beiden Potenzen die folgende Bedingung:

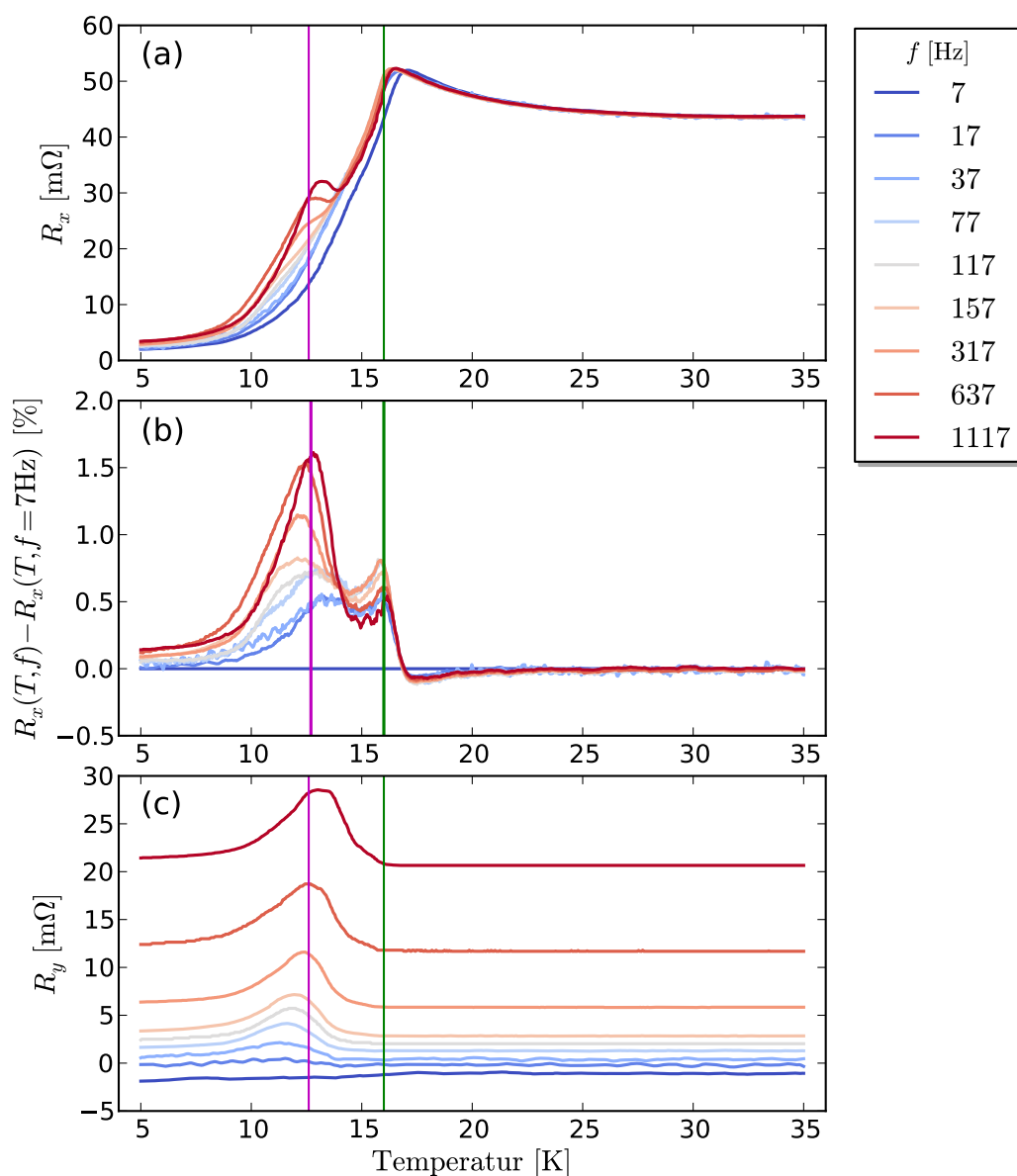


Abbildung 5.2.3: (a) Der Widerstand  $R_x$  (in Phase) als Funktion der Temperatur bei verschiedenen Frequenzen. (b)  $R_x(T, f) - R_x(T, f = 7\text{Hz})$  als Funktion der Temperatur. (c) Der Widerstand  $R_y$  (außer Phase) in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Frequenzen. Die Linie in Magenta entspricht der Temperatur  $T_C = 12.6$  K und die grüne Linie der Temperatur  $T_{MI} = 16$  K.

$$\vartheta + \varphi = 1. \quad (5.2.6)$$

Die kritischen Exponenten der Perkolationsstheorie sind universell und – für ein

gegebenes Modell – nur dimensionsabhängig (siehe Tabelle 2.1). In dieser Arbeit wurde nur der Widerstand gemessen, sowohl der reelle als auch der imaginäre Anteil, aber nicht die dielektrische Konstante. Durch Potenzgesetze kann man für den gemessenen Temperaturbereich die Widerstände  $R_x$  und  $R_y$  beschreiben:

$$R_x(T = \text{const.}) \propto f^X \quad (5.2.7)$$

$$R_y(T = \text{const.}) \propto f^Y. \quad (5.2.8)$$

Nach Tabelle 2.1 gilt in drei Dimensionen für die Perkolationsstheorie:  $\beta = 0.417$ ,  $t = 1.99$  und  $\nu = 0.875$ . Nach Referenz [163, 161] lassen sich die Potenzen  $X = -\vartheta$  wie folgt beschreiben:

$$X = -\vartheta = -\frac{t}{\nu(2 + \theta)}, \quad (5.2.9)$$

$$\varphi = \frac{2\nu - \beta}{\nu(2 + \theta)}, \quad (5.2.10)$$

wobei  $\theta = (t - \beta) / \nu \approx 1.8$  ist. Das ergibt  $X \approx -0.6$  und  $\varphi \approx 0.4$ .

In Abbildung 5.2.4 (a) und (d) sind  $R_x$  und  $R_y$  als Funktion der Frequenz bei  $T = 5$  K, 12.6 K und 23.7 K und in Abbildung 5.2.4 (b) und (e) sind die berechneten Potenzen nach Gleichungen 5.2.7 und 5.2.8 in Abhängigkeit von der Temperatur zu sehen.  $X(T)$  zeigt einen ähnlichen Verlauf wie die normierte dritte Harmonische (siehe Abbildung 5.3.3) oder die spezifische Wärme (siehe Abbildung 5.1.3). Der Metall-Isolator-Übergang bei  $T_{\text{MI}} \approx 16.4$  K und der magnetische Übergang bei  $T_{\text{C}} \approx 13.3$  K sind auch als Minima in der Ableitung (Abbildung 5.2.4 (c)) zu erkennen. Das Verhalten von  $Y(T)$  zeigt dagegen nur ein deutliches Maximum in der Ableitung bei  $T_{\text{C}}$ , wie es in (f) zu sehen ist.

Nach der Perkolationsstheorie erwartet man ein universelles Verhalten der Potenzen für  $T = \text{const.}$ , das aber hier nicht bestätigt werden kann, da  $X$  kleiner als 0.17 ist, was eigentlich für  $\varphi$  zu erwarten wäre. Dies weist darauf hin, dass man zusätzlich zur Perkolationsstheorie auch andere Aspekte berücksichtigen muss. Abbildung 5.2.4 zeigt das Ergebnis. Diese Abhängigkeit zeigt, dass die MPen auch geladen und frequenzabhängig sind. Es scheint so, als ob die MPen auch elektrisch polarisiert wären, was normalerweise bei der Deformierung eines Kristalls der Fall ist (*Jahn-Teller*-Polaronen, siehe [19]). Hinweise auf die Existenz einer tetragonalen Symmetrie der kristallinen Struktur mittels Raman-Streuung wurden auch schon gefunden [164]. Der Grund, warum  $X(T)$  diesen Effekt nur unterhalb von  $T_{\text{MI}}$  und nicht zwischen  $T_{\text{MI}}$  und  $T^* \approx 35$  K zeigt, liegt darin, dass die isolierenden

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

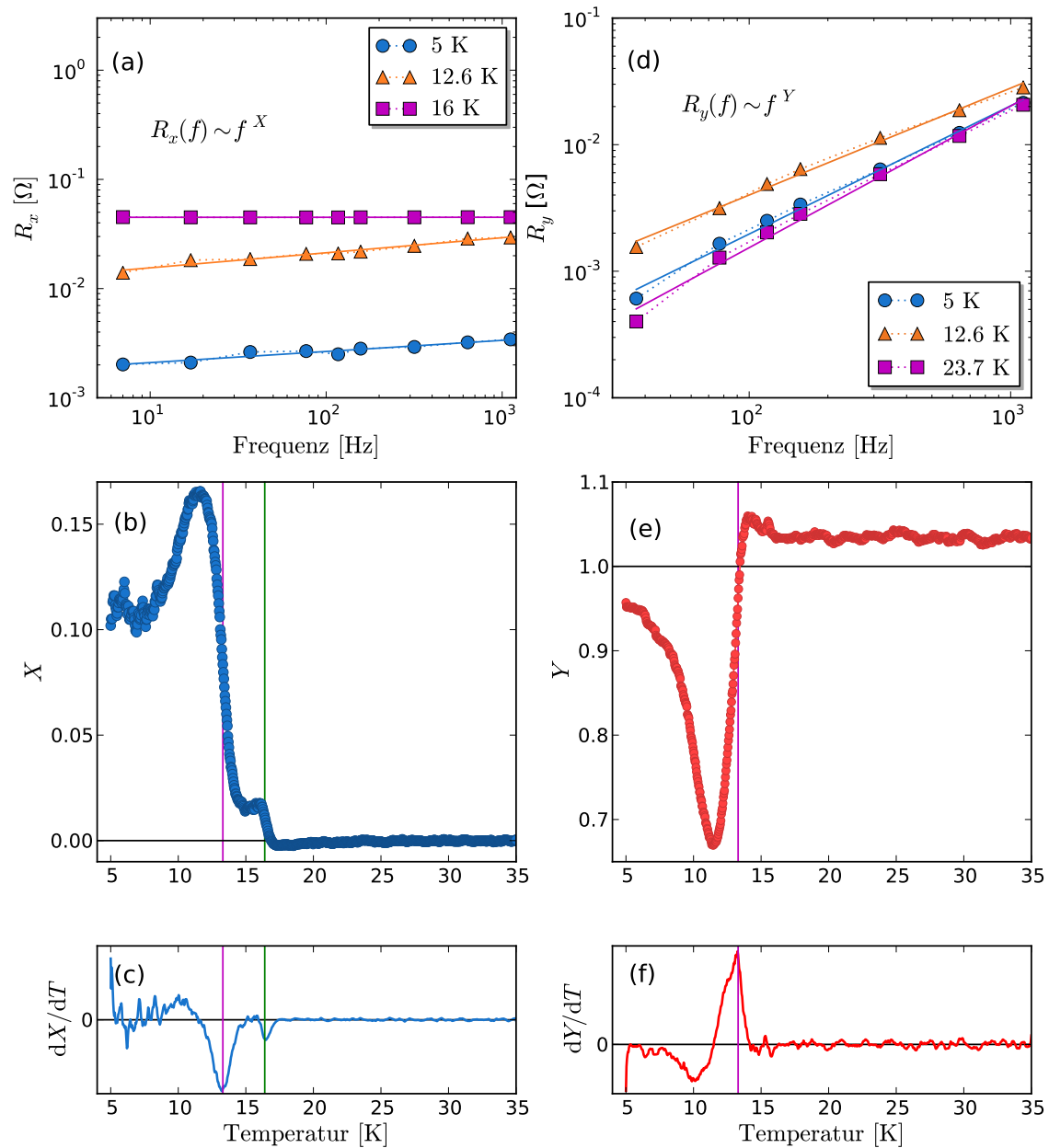


Abbildung 5.2.4: (a)  $R_x$  als Funktion der Frequenz bei  $T = 5$  K, 12.6 K und 16 K nach Abbildung 5.2.3 (a). (b) zeigt die Potenz  $X$  als Funktion der Temperatur zwischen 5 K und 35 K. In (c) ist  $dX/dT$  abgebildet. In Analogie zu (a), (b) und (c) ist in (d)  $R_y$  als Funktion der Frequenz bei  $T = 5$  K, 12.6 K und 16 K nach der Abbildung 5.2.3 (c) aufgetragen. Dabei wurden die Messungen bei 7 Hz und 17 Hz vernachlässigt. In (e) ist die Potenz  $Y$  in Abhängigkeit von der Temperatur gezeigt und in (f) ist  $dY/dT$  dargestellt.

MPen zu der Leitfähigkeit nicht direkt beitragen können. Damit wird erst bei der Entstehung des ersten Pfades dieser Vorgang im elektrischen Transport sichtbar.

Nach Gleichung 5.2.3 ist  $R_y = \omega(L - CR_0) \propto \omega^1 \propto f^1$  und man erwartet eine lineare Abhängigkeit zwischen  $R_y(T)$  und  $\omega$  beziehungsweise  $f$  oberhalb von 16.4 K. Das heißt, die Potenz  $Y$  sollte gleich Eins sein. Stattdessen zeigt  $Y$  ein Wert von circa 1.04. Das heißt, der Faktor  $(L - CR_0)$  ist auch frequenzabhängig. Da die Probe einen sehr kleinen Widerstand hat, kann man annehmen, dass  $C$  vernachlässigbar klein ist. Außerdem erwartet man eine Abhängigkeit von der Frequenz mit einer positiven Potenz von  $1.04 - 1 = 0.04$ . Daher ist es möglich, die Induktivität auch in Abhängigkeit von der Frequenz auszudrücken:  $L(f) \propto f^{0.04}$ . Im Allgemeinen ist  $L$  eine frequenzunabhängige Konstante. Wir sehen hier allerdings eine sehr schwache Potenzgesetz-Abhängigkeit, die auch durch den Messaufbau bedingt sein könnte und damit kein physikalischer Effekt der Probe wäre.

## 5.3 Der dritte harmonische Widerstand

Die (linearen und dritten Harmonischen) elektrischen Widerstandsmessungen wurden mit der Standard-Vier-Punkt-Methode und mit der AC-Lock-in-Technik bei Frequenzen von 17 Hz bis 1 kHz durchgeführt. Für schwach-nichtlinearen Transport besteht zwischen der Stromdichte und dem elektrischen Feld der Zusammenhang  $j = (\sigma + b|E|^2)E$ , wobei  $\sigma$  die ohmsche oder lineare spezifische Leitfähigkeit und  $b$  der nichtlineare Leitfähigkeitskoeffizient mit  $b|E|^2 \ll \sigma$  sind [165, 166]. Durch das dritte Harmonische Spannungssignal  $V_{3\omega}$  hat man Zugriff auf den kubischen nichtlinearen Term in AC-Transportmessungen, siehe [165, 23, 19]. Im Allgemeinen handelt es sich bei der Fluktuationsspektroskopie und nichtlinearen Transportmessungen ( $3\omega$ -Amplitude) um äquivalente Bestimmungen des vierten Moments der Stromverteilung [23] (siehe die Gleichungen 1.2.23 und 2.2.3). Damit hat man Zugriff auf die Mikrogeometrie des elektronischen Systems, die durch den linearen (ohmschen) Widerstand ( $1\omega$ -Term) nicht zugänglich ist, da diese vom zweiten Moment der Stromverteilung abhängig ist [87].

### 5.3.1 Temperaturabhängigkeit

Der einfachste Weg, den Widerstand zu messen ist mittels einer Gleichstrom (DC) Methode. Allerdings liefert die AC-Technik mehr Informationen über die Transportdynamik. Abbildung 5.3.1 zeigt den gemessenen DHW. (a) zeigt die mit einem Lock-In-Verstärker gemessene Spannung  $V_x$  und  $V_y$ , wobei  $V_x$  der Realteil (in Phase gemessene Spannungsamplitude) und  $V_y$  der Imaginärteil (außer Phase gemessene Spannungsamplitude) sind. Der berechnete Gesamtwiderstand ist in Abbildung (b) zu sehen, wobei  $R = \sqrt{R_x^2 + R_y^2}$  mit  $R_i = V_i/I$ .

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

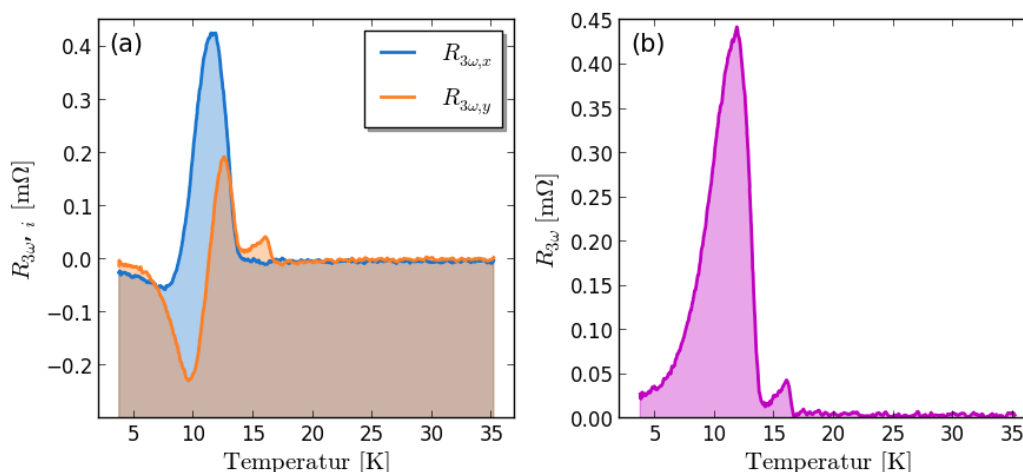


Abbildung 5.3.1: Der DHW: (a) Die gemessenen  $V_x$ - und  $V_y$ -Signale geteilt durch den Strom und (b) der berechnete Widerstand  $R_{3\omega} = V_R/I$  mit  $V_R = \sqrt{V_x^2 + V_y^2}$ .

Interessanterweise ist  $R_{3\omega} = 0$  bei Temperaturen oberhalb von ungefähr 17 K. Offensichtlich sind  $R_{3\omega, x}$  auf den magnetischen Übergang und  $R_{3\omega, y}$  auf den Metall-Isolator-Übergang sensitiv. In den kommenden Kontur-Plots wird jeweils  $R_{3\omega} = \sqrt{R_{3\omega, x}^2 + R_{3\omega, y}^2}$  gezeigt.

Dieser bemerkenswerte Effekt bietet durch einfache elektrische Transportmessungen neue Möglichkeiten. Insbesondere sieht man jetzt die beiden Übergänge als klare Peaks. Im nächsten Abschnitt wird klar, dass man in der Lage ist, auch ohne das Bilden der Ableitung sehr kleine Änderungen zu detektieren. Nach Gleichung 1.2.23 weiß man, dass es möglich ist, die Stromverteilung innerhalb der Probe nach dem Modell des zufälligen Netzwerkes zu betrachten (siehe Abschnitt 1.2.3 und Kapitel 2).

In einem ersten Schritt wurde der Einfluss des zur Messung verwendeten Stromes auf den Verlauf der DHW untersucht und optimiert. Die Kenntnis des genauen stromabhängigen Verlaufs des DHW ist Voraussetzung um die Abhängigkeit des DHW von der Frequenz und dem angelegten externen Magnetfeld systematisch zu untersuchen. Einerseits können höhere Ströme die Probe aufwärmen und unerwünschte Anomalien zeigen. Andererseits können kleine Ströme die Effekte nicht gut genug auflösen.

Abbildung 5.3.2 zeigt den gemessenen DHW (in  $\text{m}\Omega$ ) in Abhängigkeit von Stromdichte und Temperatur. Das Signal erreicht eine sehr hohe Amplitude bei  $T_C$  und zeigt ein stufenartiges Verhalten als Funktion der Stromdichte (Abbildung rechts). Zwischen  $0.6 \text{ A/cm}^2$  und  $2.22 \text{ A/cm}^2$  ist der DHW näherungsweise konstant. Im Kontur-Plot sieht man das breite Maximum des DHW in roter Farbe bei  $T_C$ . Das zeigt, dass eine Stromdichte von  $1 \text{ A/cm}^2$  reicht, um den magnetischen Übergang

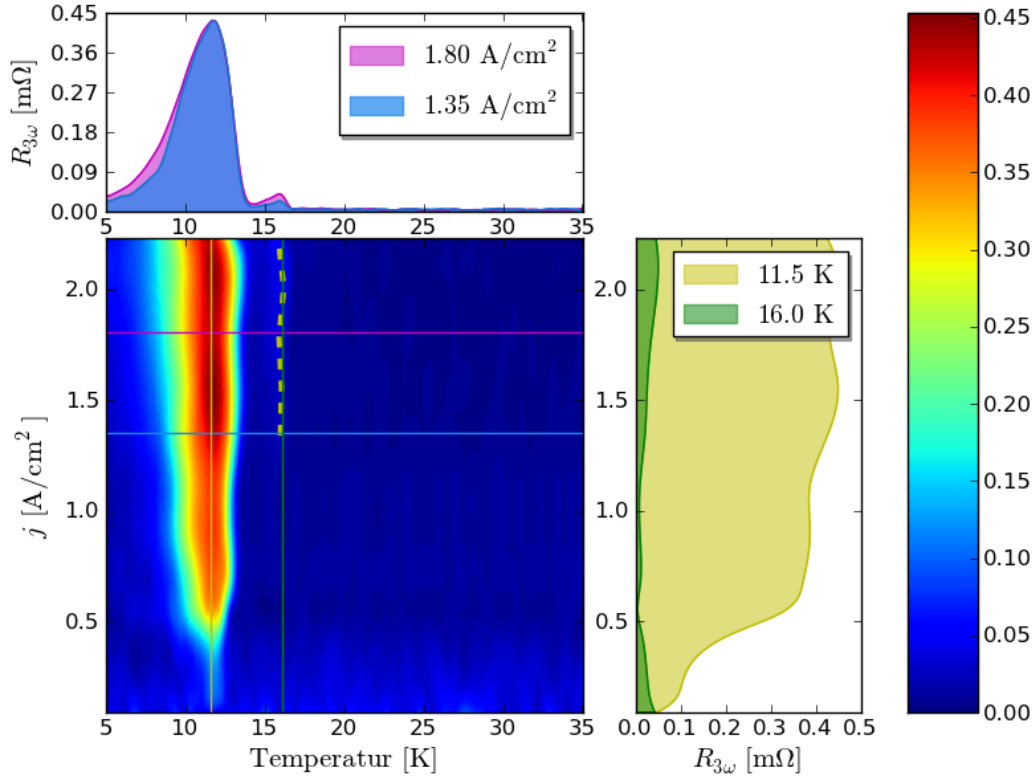


Abbildung 5.3.2: Im Kontur-Plot ist der DHW als Funktion der Stromdichte und der Temperatur dargestellt. Darüber ist  $R_{3\omega}$  als Funktion der Temperatur für  $j = 1.35 \text{ A/cm}^2$  (blau) und  $1.80 \text{ A/cm}^2$  (Magenta) gezeigt. In der Abbildung rechts ist  $R_{3\omega}$  als Funktion der Stromdichte bei  $T = 11.5 \text{ K}$  (gelb) und  $16.0 \text{ K}$  (grün) aufgetragen. Die Messungen mit kleinen Strömen wurden unterdrückt, da das Signal-Rausch-Verhältnis ungenügend ist.

in DHW deutlich hervorbringen.

Dagegen ist das Signal bei  $T_{\text{MI}}$  viel schwächer. Der DHW ist also nicht so empfindlich auf den Metall-Isolator-Übergang. Erst bei höheren Strömen (mehr als  $1.4 \text{ A/cm}^2$ ) wird das Signal stärker. Im Allgemeinen kann man sagen, dass der schwach-nichtlineare Transport ab einer Schwellenstromstärke von  $j_{\text{Schwelle}}$  stark ausgeprägt ist.

Abbildung 5.3.2 (oben) zeigt zwei gemessene DHW für  $j = 1.8 \text{ A/cm}^2$  und  $j = 1.35 \text{ A/cm}^2$ . Aus den Positionen der Maxima beider Kurven können die Übergangstemperaturen präzise bestimmt werden. Die Signalamplitude bei  $T_{\text{MI}}$  beträgt nur etwa 10% des Signals bei  $T_{\text{C}}$  und das Signal ist nicht sehr breit. Für die folgenden Messungen wurde immer ein Strom von  $4 \text{ mA} \hat{=} 1.78 \text{ A/cm}^2$  verwendet, da man damit die beiden Übergänge gut hervorbringen kann.

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

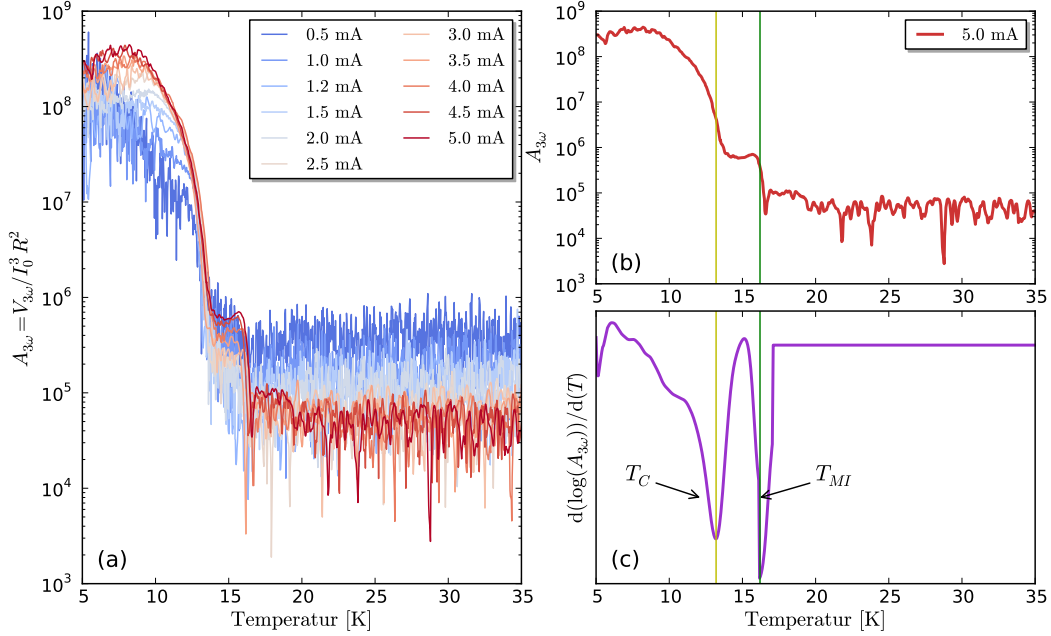


Abbildung 5.3.3: (a) Das normierte dritte harmonische Signal  $A_{3\omega} = V_{3\omega}/I_0^3 R^2$  als Funktion der Temperatur für verschiedene Ströme aufgetragen. Die Messung in (b) ist die Kurve von (a) bei  $I = 5$  mA. (c) zeigt die Ableitung des logarithmischen Signals  $A_{3\omega}$ . In Grün ist der Metall-Isolator-Übergang und in Gelb ist der magnetische Übergang eingetragen.

Allgemein wird angenommen, dass der DHW sensitiv auf die Inhomogenität des elektrischen Transports ist und wichtige Informationen über die Dynamik der Ladungsträger liefern kann (z.B. vgl. Gleichung 1.2.23).

Der Transport wird im Allgemeinen durch zwei Kanäle oder anders ausgedrückt zwei elektrische Leitungsnetzwerke (Elektronen- und Löcherkanal) geführt. Die abnehmende Temperatur sorgt dafür, dass die Löcher unterhalb von 16 K immer mobiler werden und damit verdrängt dieser Kanal die Elektronen immer stärker. Diese Verdrängung spiegelt sich in der Verteilung der lokalen Stromdichten und damit in dem gemessenen DHW wider (zum Vergleich siehe Abschnitt 5.4). In diesem Zusammenhang wollen wir die Inhomogenitäten des elektrischen Transportes direkt in Abhängigkeit von der Frequenz und vom Magnetfeld untersuchen.

Das normierte dritte harmonische Signal  $A_{3\omega} = V_{3\omega}/I_0^3 R^2 \propto \frac{\sum_{\alpha} i_{\alpha}^4}{\left(\sum_{\alpha} i_{\alpha}^2\right)^2}$  nach Gleichung 1.2.23 ist in Abbildung 5.3.3 (a) als Funktion der Temperatur für alle gemessenen Ströme aufgetragen und in (b) ist die Messung bei  $I = 5$  mA zu sehen. Alle Kurven zeigen den gleichen Verlauf, aber je größer der Strom ist, umso deutlicher tritt das Signal hervor. Es ist insbesondere unterhalb von 16 K deutlich zu sehen. Im Gegensatz zum DHW ist der Metall-Isolator-Übergang deutlich



### 5.3 Der dritte harmonische Widerstand

sichtbar, was an der logarithmischen y-Achse liegt. Die Amplitude von  $A_{3\omega}$  in der paramagnetischen Phase ist kleiner als  $6 \times 10^4 \text{ V}^{-1}\text{A}^{-1}$ . Erst unterhalb von 16 K steigt die Amplitude des Signals auf  $7 \times 10^5 \text{ V}^{-1}\text{A}^{-1}$  an und zeigt eine Stufe bis 14 K. Danach steigt die Amplitude wieder an und erreicht bei 8 K ein Maximum von etwa  $5 \times 10^8 \text{ V}^{-1}\text{A}^{-1}$ . Betrachtet man die Amplitude  $A_{3\omega}$ , so ist der magnetische Übergang nur schwach ausgeprägt. In (c) ist die Ableitung der aus (b) bearbeiteten Kurve  $d(\log(A_{3\omega}))/dT$  dargestellt. Dabei wurde vor der Bildung der Ableitung der Hintergrund oberhalb von 16 K als konstant angenommen. Die beiden Übergänge sind deutlich sichtbar als zwei Minima bei  $T_C = 13.2 \text{ K}$  und  $T_{\text{MI}} = 16.2 \text{ K}$ . Ein späterer direkter Vergleich mit der Fluktuationsspektroskopie kann wichtige Informationen über die Gültigkeit der Perkolationsstheorie basierend auf den Gleichungen 1.2.23 und 2.2.3 liefern.

Ein weiterer wichtiger zu optimierender Parameter ist die Frequenz. Abbildung 5.3.4 (links) zeigt den DHW als Funktion der Temperatur und der Frequenz gemessen mit  $I = 4 \text{ mA}$ . Die Messung zeigt eine Art von „Resonanz“, deren Maximum bei 12.5 K und 250 Hz liegt, was dem magnetischen Übergang bei  $T_C \approx 12.5 \text{ K}$  entspricht. Bei höheren Frequenzen ist der DHW schärfer und verschiebt sich leicht zu höheren Temperaturen. Ein weiteres Maximum liegt am Metall-Isolator-Übergang bei  $T_{\text{MI}} \approx 16 \text{ K}$  vor, das allerdings schnell bei höheren Frequenzen verschwindet.

Nach Gleichung 1.2.22 erwartet man ein Potenzgesetz für die Abhängigkeit der Frequenz mit  $R_{3\omega} \propto V_{3\omega} \propto f^n$  mit  $n = -0.5$ . Das Ergebnis der Messungen ist in Abbildung 5.3.4 (rechts) gezeigt. Man kann die Kurve mit zwei Potenzgesetzen beschreiben und zwar mit der Potenz  $n = 0.64$  für tiefere und  $n = -0.74$  für höhere Frequenzen. Auch hier weichen die Potenzen von den gemessenen Werten aus der Literatur ab. Die Messungen zeigen, dass bei  $f \approx 250 \text{ Hz}$  der DHW seinen maximalen Wert erreicht. Aus Abschnitt 5.2.3 weiß man, dass der Widerstand auch frequenzabhängig ist, insbesondere bei  $T_C$ .

Da  $\text{EuB}_6$  einen CMR-Effekt aufweist, ist es wichtig, die Abhängigkeit zwischen dem DHW und dem Magnetfeld zu betrachten. Simultan zu der Widerstandsmessung (Abbildung 5.2.2 (a)) wurde der DHW mitgemessen, wobei das Magnetfeld parallel zur langen Achse der Probe und dem Strom ausgerichtet wurde. Abbildung 5.3.5 zeigt den DHW in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Magnetfeld, gemessen mit 4 mA und 17 Hz-Wechselstrom. Man erkennt ein ausgeprägtes Maximum bei  $T_C \approx 12.6 \text{ K}$  und ein kleines Maximum bei  $T_{\text{MI}} = 16 \text{ K}$ . Der Metall-Isolator-Übergang  $T_{\text{MI}}$  verschiebt sich zu höheren Temperaturen mit steigendem Magnetfeld und verschwindet bei  $\mu_0 H \approx 90 \text{ mT}$ . Bei dieser Temperatur erwartet man, dass der erste Polaronenpfad entsteht. Dieser erlaubt eine höhere Leitfähigkeit aufgrund der Delokalisierung der MPen beziehungsweise der Löcher. Obwohl die Anzahl der delokalisierten Löcher im Vergleich zu den Elektronen sehr klein ist, sorgt die höhere Beweglichkeit der Löcher innerhalb dieses Pfades für einen schnellen Abfall des Widerstandes. Wir haben in Abschnitt 5.2.2 den Verlauf des

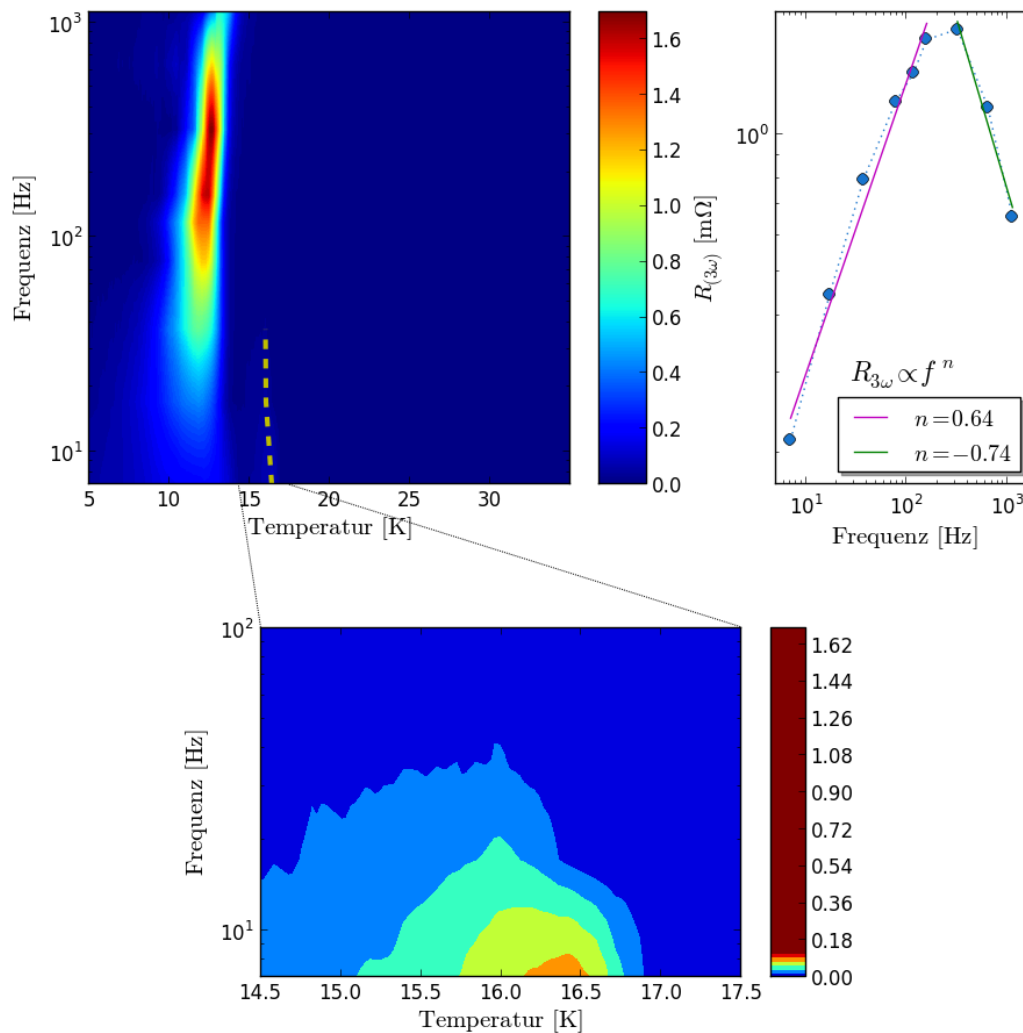


Abbildung 5.3.4: Links ist in dem Kontur-Plot der DHW in  $\text{m}\Omega$  als Funktion der Temperatur und der Frequenz mit  $I = 4 \text{ mA} \hat{=} j = 1.78 \text{ A/cm}^2$  aufgetragen. Rechts ist das Maximum der gemessenen Kurven als Funktion der Frequenz gezeigt.

Widerstandes in der Anwesenheit eines Magnetfeldes diskutiert und festgestellt, dass bei höheren Magnetfeldern der Metall-Isolator-Übergang  $T_{\text{MI}}$  sich zu höheren Temperaturen verschiebt und bei einem Magnetfeld von etwa 90 mT kein Widerstandsmaximum mehr aufweist. Diese Beobachtung sehen wir hier auch. Der Kontour-Plot in Abbildung 5.3.5 zeigt, wie sich der Übergang bei  $T_{\text{MI}}$  leicht zu höheren Temperaturen verschiebt und bei circa 90 mT verschwindet. Da der DHW ein Zeichen für Inhomogenitäten im elektrischen Transport ist, kann man vermuten, dass oberhalb dieses Magnetfeldes keine Inhomogenitäten auftreten. Wenn die Polarisation der paramagnetischen Phase durch ein externes Magnetfeld stark ge-

### 5.3 Der dritte harmonische Widerstand

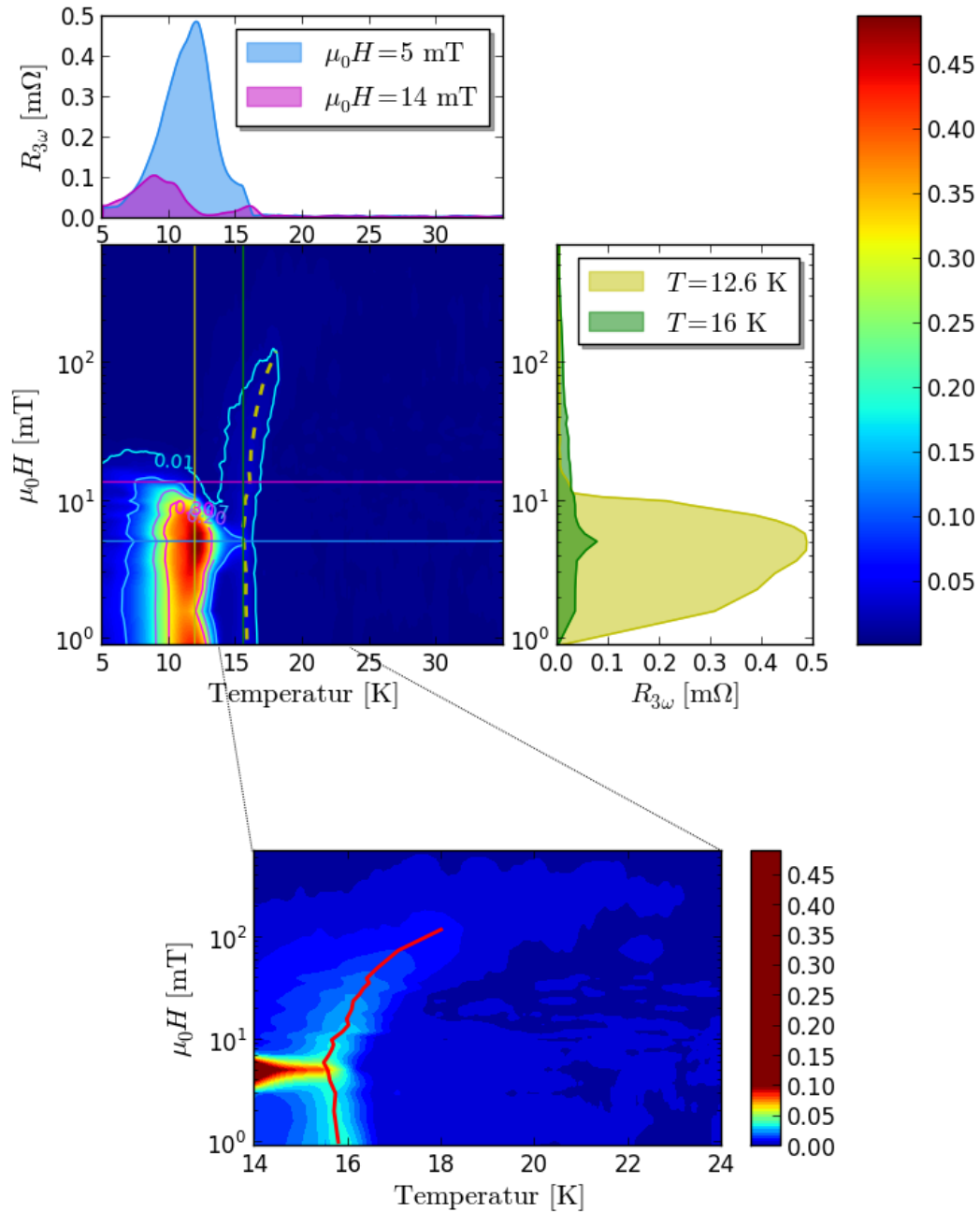


Abbildung 5.3.5: Der DHW als Funktion von Magnetfeld und Temperatur gemessen mit einem Strom  $I = 5$  mA und der Frequenz  $f = 17$  Hz. Oben ist der DHW als Funktion der Temperatur bei  $\mu_0 H = 5$  mT in Blau und 14 mT in Magenta und rechts als Funktion des Magnetfeldes bei  $T = 12.6$  K in Gelb und 16 K in Grün dargestellt. Unten ist der Zoombereich des Kontors zwischen 14 K und 24 K.

nug ist, verlieren die MPen ihre Rolle als die einzigen ferromagnetisch geordneten Einheiten in der Probe. Damit kann die Beweglichkeit der MPen erhöht werden, auch ohne die Notwendigkeit einen Polaronenpfad zu erzeugen. Messungen mittels Mikro-Hall-Magnetometrie oberhalb von 90 mT liefern unter Verwendung des Rechenmodelles von [167] Hinweise darauf, dass die magnetische Clustergröße mit zunehmendem Magnetfeld in der Tat abnimmt (siehe Abbildung 5.5.2) [156].

Der leitfähige Polaronenpfad, der durch Überlappung von vielen MPen zustande kommt, entsteht erst unterhalb der Perkolationschwelle bei  $T_{\text{MI}}$ . Das Überlappungsgebiet ist ferromagnetisch geordnet und besteht aus einer Phase. Das heißt, die energetisch günstigste Ausrichtung der Spins in diesem Gebietes ist parallel zur langen Achse der Probe. In dieser Phase sind die Löcher delokalisiert und verfügen über eine große Beweglichkeit. Wir glauben, dass unterhalb von  $T_{\text{MI}}$  dieser Pfad verstärkt wird, indem neue Pfade parallel entstehen oder durch die Zunahme der Breite des Pfades. Unterhalb von  $T_{\text{C}} \approx 12.6 \text{ K}$  friert dieser Pfad aus und ist damit die größte ferromagnetische Domäne in der Probe.

In Abbildung 5.3.5 verschwindet der magnetische Übergang bei  $T_{\text{C}}$  schlagartig bei  $\mu_0 H \approx 14 \text{ mT}$ . Dies ist genau dort zu sehen, wo der Vorzeichenwechsel des CMR-Effektes stattfindet (siehe Abbildung 5.2.2 (b)). Sehr kleine Magnetfelder verursachen einen positiven magnetoresistiven Effekt, der bei  $T = 12 \text{ K}$  einen Wert von 12% erreicht. Erst oberhalb von ungefähr 14 mT wirkt der negative CMR-Effekt und erreicht bei  $T = 16 \text{ K}$  einen Wert von  $-76\%$  bei  $\mu_0 H = 700 \text{ mT}$  aufgrund der magnetisch höheren Homogenität der Probe. Wie wir in Abschnitt 5.2.2 erwähnt haben, wir glauben, dass bei zunehmenden Magnetfeld kommt zu ein Art Gleichgewichtszustand zwischen die Polaronen die für mehr Ladungslokalisierung sorgen und die MPen die an der Leitfähigkeit innerhalb dem Polaronenpfad aktiv sich beteiligen. Solange der Beitrag für die Ladungslokalisierung und den größere Streuungsquerschnitt mit der Leitungselektronen größer als der Beitrag von der leitfähigen MPen ist, wirkt eine positive oder negative CMR-Effekt als Folge der Gesamtlage entsprechend.

### 5.3.2 Magnetfeldabhängigkeit in der PM-Phase

Wie vorher gezeigt wurde, ist das dritte harmonische Signal in der PM-Phase, das heißt für  $T > T_{\text{MI}}$  klein und verschwindet für  $B = 0$ . Eine genauere Messung bei konstanten Temperaturen in Anwesenheit eines Magnetfeldes ergibt jedoch einen sehr interessanten Verlauf. Für diese Messung wurde Probe Nr. 1 verwendet, die einen größeren Durchmesser als die anderen Proben aufweist (siehe Tabelle 5.1).

Abbildung 5.3.6 (a) zeigt den Magnetowiderstand  $MR = \Delta R/R_0$  als Funktion des Magnetfeldes bei konstanten Temperaturen oberhalb von 16 K und in (b) sind die Ableitungen der Kurven. Teilbild (c) zeigt die gemessenen Daten der dritten

### 5.3 Der dritte harmonische Widerstand

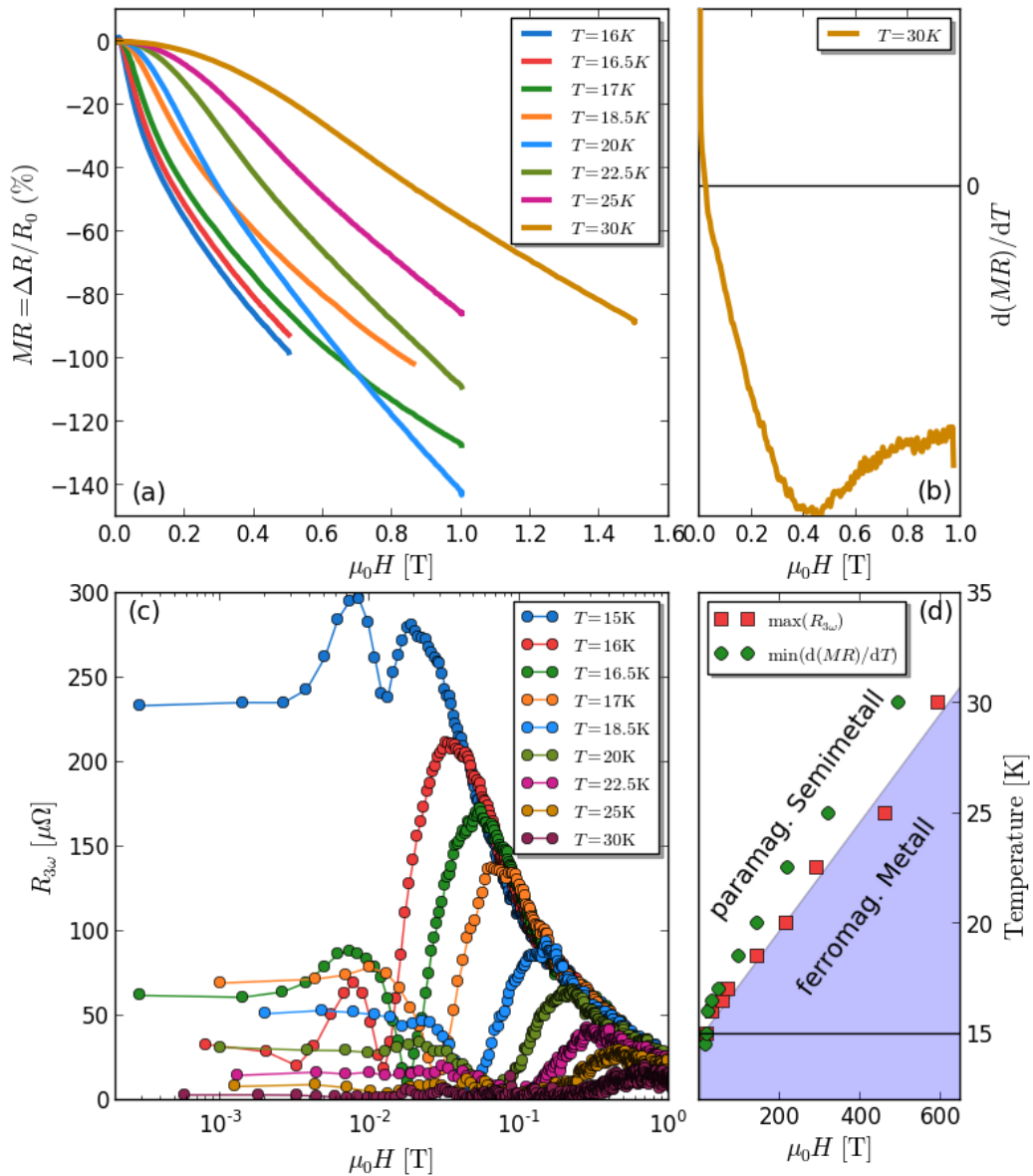


Abbildung 5.3.6: (a) Der Magnetowiderstand  $MR = \Delta R/R_0$  als Funktion des Magnetfeldes und deren Ableitungen in (b). (c) Der dritte harmonische Widerstand als Funktion des Magnetfeldes für Temperaturen von 15 K bis 30 K. In (d) ist das Phasendiagramm in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Magnetfeld zu sehen. Die roten Punkte entsprechen der Temperatur und dem Magnetfeld der Maxima des Widerstands in (c). Das blaue Gebiet stellt die ferromagnetische metallische Phase dar und das weiße Gebiet zeigt die paramagnetische semimetallische Phase.

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

Harmonischen in der paramagnetischen Phase. Das Verhalten der Kurven zeigt eine Anomalie in Abhängigkeit vom Magnetfeld, was auf einen durch das Magnetfeld induzierten inhomogenen Transport hindeutet. Wichtige Merkmale sind die Maxima und Minima jeder Kurve. Abbildung 5.3.6 (d) zeigt das Phasendiagramm der Maxima als Funktion der Temperatur sowie die Minima der Ableitung des Magnetowiderstandes als grüne Punkte. Es zeigt ein lineares Verhalten und erstaunlicherweise eine sehr ähnliche Steigung wie die Hall-Effekt-Messungen in [12] (siehe Abbildung 5.1.6).

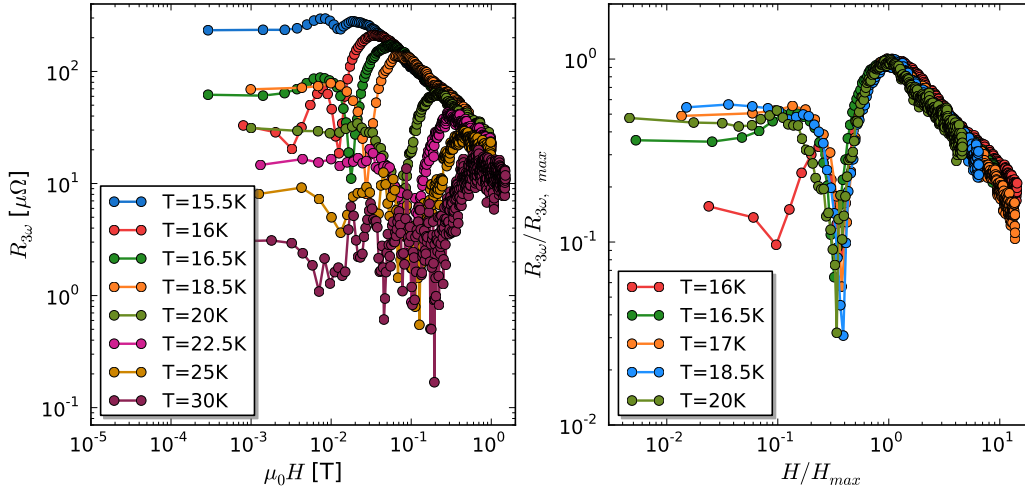


Abbildung 5.3.7: Der dritte harmonische Widerstand als Funktion des Magnetfelds im PM-Bereich für Temperaturen von 15 K bis 30 K in doppelt logarithmischer Auftragung (links). Der DHW  $R_{3\omega}$  normiert auf  $R_{3\omega, max}$  und  $H$  normiert auf  $H_{max}$ .

Abbildung 5.3.7 (a) zeigt die gleiche Messung auf einer doppelt logarithmischen Skala. Alle Kurven weisen ein lineares Verhalten bei hohen Magnetfeldern auf. Durch Normieren auf die Maxima der Kurven und ihre entsprechenden Magnetfelder liegen alle Kurven aufeinander. Das heißt  $DHW(T)$  ist beschreibbar durch universelle Funktion (siehe Abbildung 5.3.7 (b) und [151]). Bei einem Feld-Verhältnis  $H/H_{max}$  von 0.35 tritt ein Minimum für die kritische Magnetisierung auf, was auf ein Verschwinden der Inhomogenität im Transport hindeutet.

Es wurde vermutet, dass hier eine Phasenseparation existiert und dieser Übergang eine perkolative Natur besitzt [12]. Allerdings zeigen die Fluktuationsspektroskopie-Messungen im Magnetfeld keine Maxima in diesem Bereich (siehe Abschnitt 5.4.2). Im Gegensatz dazu wird ein schwaches Minimum im normierten Rauschen beobachtet.

In der Literatur [123, 11] wird vermutet, dass die MPen mit zunehmendem Magnetfeld größer werden. Es ist aber auch möglich, dass sich eine größere Anzahl

von MPen ausbilden. Es stellt sich nun die Frage, wie sich der lineare Widerstand verhalten soll? Es ist klar, dass es bei größeren MPen oder mehr MPen zu einer Überlappung bereits bei höheren Temperaturen kommt. Aber warum nimmt der Widerstand schon vor dem Auftreten der Überlappung der MPen drastisch ab? Zwei Effekte sollten auftreten: Mehr und/oder größere MPen werden einerseits mehr Elektronen stärker lokalisieren und andererseits für einen größeren Streuungsquerschnitt mit den Leitungselektronen sorgen. Das sollte eigentlich nur für eine Verschiebung des Übergangs  $T_{\text{MI}}$  zu höheren Temperaturen, aber nicht für eine Absenkung des Absolutwerts des Widerstandes sorgen.

Der DHW zeigt allerdings einen anderen Verlauf als man erwartet im Vergleich zum Eintritt in die FM-Phase bei  $B = 0$  (siehe Abbildungen 5.3.1 und 5.3.2). Ein perkolativer Übergang zeigt normalerweise ein Maximum, was dagegen in unseren Messungen von zusätzlichen, charakteristischen Minima begleitet wird (siehe Abbildung 5.3.7). Wir glauben, es handelt sich hier nur um einen Semimetall-Metall-Übergang ohne Perkolationseffekt. Zum Vergleich mit den Daten der Fluktuationsspektroskopie siehe Abschnitt 5.4.2. Der DHW in der PM-Phase zeigt keinen ähnlichen Verlauf zu dem DHW aus der FM-Phase. Abbildung 5.3.7 (rechts) zeigt ein starkes Minimum, bevor das gesamte Signal sein Maximum bei 1 erreicht. Wir sehen hier nicht das erwartete Zeichen für einen perkolativen Übergang (reines Maximum).

Aus der nichtlinearen Optik ist bekannt [168], dass eine Quadrupolmoment  $Q$  mit dem externen elektrischen Wechselfeld über  $Q = \chi E^2$  koppelt, wobei  $\chi$  die Quadrupol-Suszeptibilität und  $E$  das elektrische Feld sind. Es wurde berichtet, dass der DHW ( $R_{3\omega}$ ) bei korrelierte Jahn-Teller-Polaronen in Manganaten proportional zu der Polaronendichte  $D_{\text{P}}$  sind: ( $R_{3\omega} \propto Q \propto D_{\text{P}}$ ) [19]. Wir sehen in der Frequenzabhängigkeit des Widerstandes allerdings nur eine Änderung unterhalb von 16 K. Verhalten sich die MPen ebenso wie in ähnlichen Systeme (Manganate) wie normale Polaronen, dann kann man davon ausgehen, dass die Polaronendichte mit zunehmendem Magnetfeld kleiner wird. (zum Vergleich siehe Abbildung 5.5.2).

## 5.4 Fluktuationsspektroskopie

Wie bisher beschrieben wurde, ist Perkolation von MPen ein wichtiger Punkt für die Erklärung vieler Beobachtungen in  $\text{EuB}_6$ . Mit Hilfe der Fluktuationsspektroskopie sollen Anzeichen für Perkolation detektiert werden. Die erste Vermutung besteht darin, dass der Übergang bei  $T_{\text{MI}}$  eine Folge der Perkolation ist [11]. Das heißt, die Perkolationsschwelle im Widerstand soll erst bei  $T_{\text{MI}}$  entstehen. Damit sind erst dort die Polaronen delokalisiert und können zur Leitfähigkeit beitragen. Man wird in diesem Fall eine erhöhte Rauschamplitude oder ein Maximum in der spektralen Leistungsdichte erwarten. Der zweite Perkolationseffekt soll ent-

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

lang des Semimetall-Metall-Überganges oberhalb von 15 K und in der Anwesenheit eines Magnetfeldes auftreten [12]. Stimmt die Aussage, dass der Polaronenradius mit zunehmendem Magnetfeld größer wird, so erwartet man ein Anzeichen für Perkolation in Form eines Maximums in der spektralen Leistungsdichte.

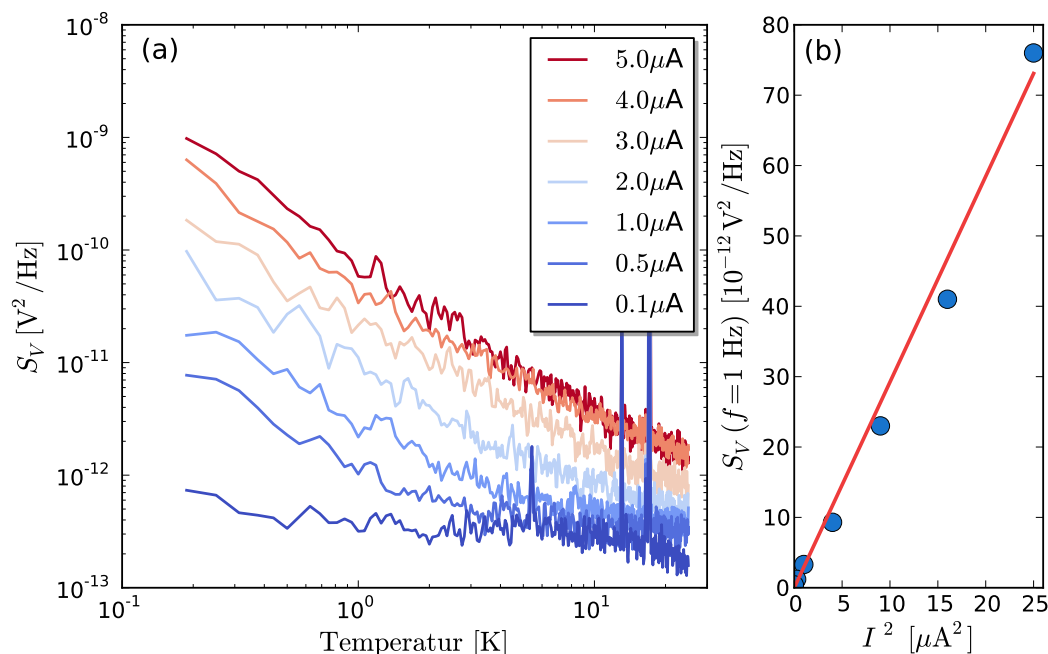


Abbildung 5.4.1: (a) Ein Beispiel für die Rauschspektren von  $\text{EuB}_6$  bei verschiedenen Strömen. (b) Lineares Verhalten der Rauschamplituden bei 1 Hz in Abhängigkeit von  $I^2$  nach Gleichung 1.4.5.

Fluktuationsspektroskopie an Proben mit sehr kleinen Widerständen ist eine schwierige Aufgabe. Nach Gleichung 1.4.5 nimmt die PSD quadratisch mit dem Widerstand ab. Die einfachste Lösung besteht darin, diesen Verlust durch höhere Ströme zu kompensieren. Dieser Ansatz ist bei Widerständen, die von der Größenordnung einiger  $\text{m}\Omega$  sind, nicht machbar, da die erforderlichen Ströme sehr hohe Temperaturen an der Probe verursachen und man damit die Temperaturkontrolle nicht mehr garantieren kann. Die üblichen verwendeten Ströme sind normalerweise in der Größenordnung zwischen  $1 \mu\text{A}$  bis  $1 \text{ mA}$ .

Der erste Schritt war die Optimierung der Probengeometrie. Der Widerstand der Probe ist sehr niedrig, sodass eine Probe mit ausreichender Länge, aber dennoch sehr kleinem Volumen verwendet werden muss. Nach Gleichung 3.0.2 erfüllen die Proben Nr. 2 und Nr. 3 aus Tabelle 5.1 diese Anforderungen am besten. Wir konnten die Widerstände der Proben von einigen  $\text{m}\Omega$  auf  $1 \Omega$  vergrößern. Aufgrund der Impedanzanpassung an dem Vorverstärker (Noise-Figure) haben wir damit eine viel bessere Auflösung für das Probenrauschen erzielt. Ein wichtiger Punkt ist die Qualität der Kontakte. Obwohl in Vier-Punkt-Spannungsmessungen die Kontakte



keine Rolle spielen sollten, findet man in der Praxis, dass es am besten ist, wenn die Kontaktwiderstände möglichst klein sind.

Abbildung 3.1.1 zeigt Probe Nr. 2 mit fünf Kontakten. Für die Messungen wurde der Strom durch die Kontakte 1 und 5 geschickt und die Rauschspektren an den Kontakten 2 und 4 aufgenommen. Probe Nr. 2 wurde mittels der AC-Spannungsteilermethode (Abschnitt 3.2.1) und Probe Nr. 3 mit AC-Spannung mit Hilfe der Kreuzmethode (Abschnitt 3.2.1) gemessen. Um festzustellen, ob die Rauschspektren von der Probe stammen, misst man zunächst die Spektren in Abhängigkeit vom Strom (siehe Abschnitt 1.4.2.2). Nach Gleichung 1.4.5 erwartet man einen linearen Zusammenhang zwischen der spektralen Leistungsdichte und dem Quadrat des Stromes. Abbildung 5.4.1 (a) zeigt die gemessenen Spektren für verschiedene Ströme und in (b) ist die Rauschamplitude der verschiedenen Spektren bei 1 Hz gegen das Quadrat des Stromes aufgetragen. Wie erwartet, sieht man ein lineares Verhalten und ein weißes Spektrum für  $I \rightarrow 0$ . Damit ist man sicher, dass das Rauschen von der Probe stammt und nicht von den Messgeräten. Unterhalb von 10 K erschwert sich die Messung deutlich, da sich der Widerstand der Probe wieder im  $m\Omega$ -Bereich befindet (siehe Abbildung 5.2.1).

### 5.4.1 Temperaturabhängigkeit bei $H = 0$

Abbildung 5.4.2 (a) zeigt drei gemessene Spektren  $S_V$  bei  $T = 11.7$  K, 14.6 K und 18 K. Die rote Linie stellt die  $1/f$ -Funktion dar. Wie man sieht, sind alle Spektren  $1/f$ -artig. Für die Analyse der Daten muss man zuerst die Wirkung des Stromes eliminieren, indem man durch das Quadrat des Stromes dividiert und schließlich  $S_R = S_V/I^2$  erhält. Diese Größe hat die Einheit  $[\Omega^2/\text{Hz}]$  und zeigt normalerweise den gleichen Verlauf wie der Widerstand. Aussagekräftiger ist daher die normierte spektrale Leistungsdichte  $S_R/R^2 = S_V/V^2$ , die in (b) für  $T = 13$  K zu sehen ist. Die normierte PSD hat die Einheit  $[1/\text{Hz}]$  und stellt die reine Rauschamplitude unabhängig vom Widerstand und vom Strom dar. Für die Analyse der Daten werden der Wert von  $S_R/R^2$  bei  $f = 1$  Hz und die Steigung der gefitteten Gerade  $-\alpha$  bestimmt.

Die Amplitude des Rauschens  $S_V$  ist von der Größenordnung ( $\sim 10^{-14} \text{ V}^2\text{Hz}^{-1}$ ), was im Vergleich mit anderen gemessenen Systemen wie den Nickelaten und den molekularen Metallen ( $\sim 10^{-9} \text{ V}^2\text{Hz}^{-1}$ ) sehr niedrig ist. Kleine Rauschamplituden deuten auf höhere Kristallqualität der Proben, da höhere Amplituden nur durch Granularität der Proben verursacht werden [40]. Der sich ergebende Hooge-Parameter beträgt ungefähr  $\gamma_H = \frac{S_V}{V^2} n \Omega f = 3 \times 10^4$  (siehe Gleichung 1.4.5 und [88]). Dieser Wert wiederum ist im Vergleich zu anderen metallischen Systemen relativ groß.

Wir betrachten die  $1/f$ -Rauschspektren im Temperaturbereich zwischen 5 K und

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

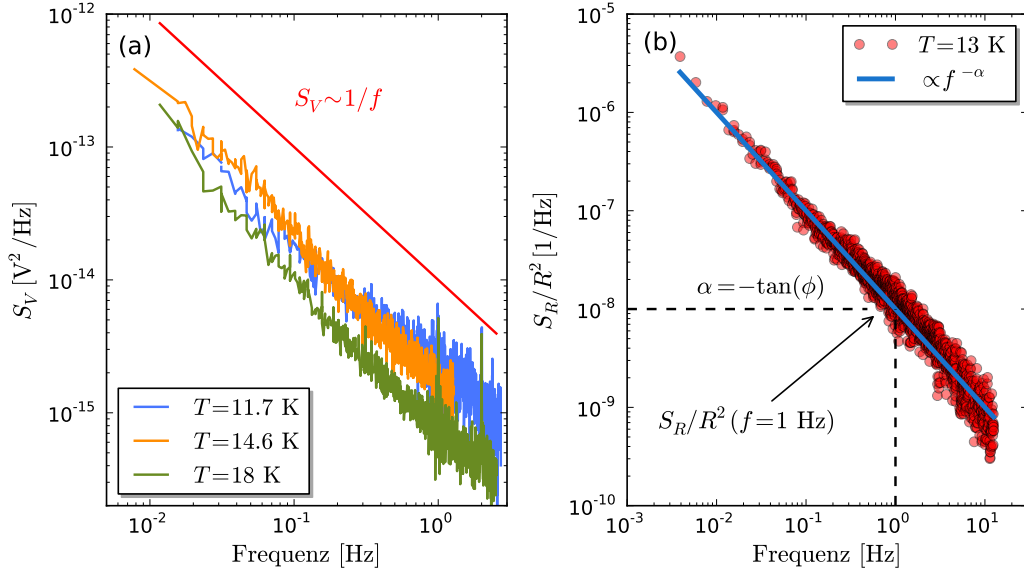


Abbildung 5.4.2: (a) Drei Rauschspektren  $S_V$  in  $[\text{V}^2/\text{Hz}]$  bei  $T = 11.7 \text{ K}$  in Blau,  $T = 14.6 \text{ K}$  in Orange,  $T = 18 \text{ K}$  in Grün und die  $1/f$ -Funktion in Rot. (b) Die normierte spektrale Leistungsdichte in  $[1/\text{Hz}]$  bei  $T = 13 \text{ K}$ . Die blaue Linie stellt die Fit-Funktion dar.

100 K. Abbildung 5.4.3 (a) zeigt die normierte spektrale Leistungsdichte des Widerstandsrauschens  $S_R/R^2$  als Funktion der Temperatur bei einer Frequenz von 1 Hz. Oberhalb von circa 35 K hat man eine konstante Amplitude, die ungefähr  $8 \times 10^{-10} \text{ Hz}^{-1}$  beträgt.

Erst unterhalb von 35 K kommt es zu einem Anstieg auf eine Amplitude von  $5 \times 10^{-9} \text{ Hz}^{-1}$ . Diese Temperatur entspricht auch dem Minimum im Widerstand. Unterhalb von 18 K kommt es zu einem starken Anstieg und einem scharfen Peak bei  $T_C$ . Offensichtlich hat die normierte PSD ihr Maximum bei  $T_C$  und nicht wie erwartet bei der Perkolationschwelle bei  $T_{\text{MI}}$ . Das war auch der Fall bei den Messungen des dritten harmonischen Widerstandes. Da die Widerstandsmessungen darauf hindeuten, dass die Perkolationschwelle bei  $T_{\text{MI}}$  liegt, weist diese Beobachtung auf einen noch komplizierteren Mechanismus im elektrischen Transport hin. Die rote Linie entspricht einer Lorentz-Fit-Kurve mit einem Maximum bei  $T = 12.4 \text{ K}$  und einer Breite von  $\Delta T = 2.4 \text{ K}$ .

Abbildung 5.4.3 (b) zeigt den gemessenen Frequenz-Exponent  $\alpha$  in Abhängigkeit von der Temperatur. Es gilt  $\alpha = 0.96 \pm 0.19$ . Die bei 5 K und 10.8 K gemessenen Spektren waren sehr schwer zu analysieren, da der Widerstand einen sehr kleinen Wert annimmt. In beiden Fällen ergibt die Analyse niedrige Werte für  $\alpha$ . Da  $\alpha$  bei 5 K einen Wert von ca. 0.2 annimmt, kann das Spektrum nicht als  $1/f$ -Spektrum beschrieben werden. Nach Gleichung 1.4.14 kann man prüfen, ob das DDH-Modell

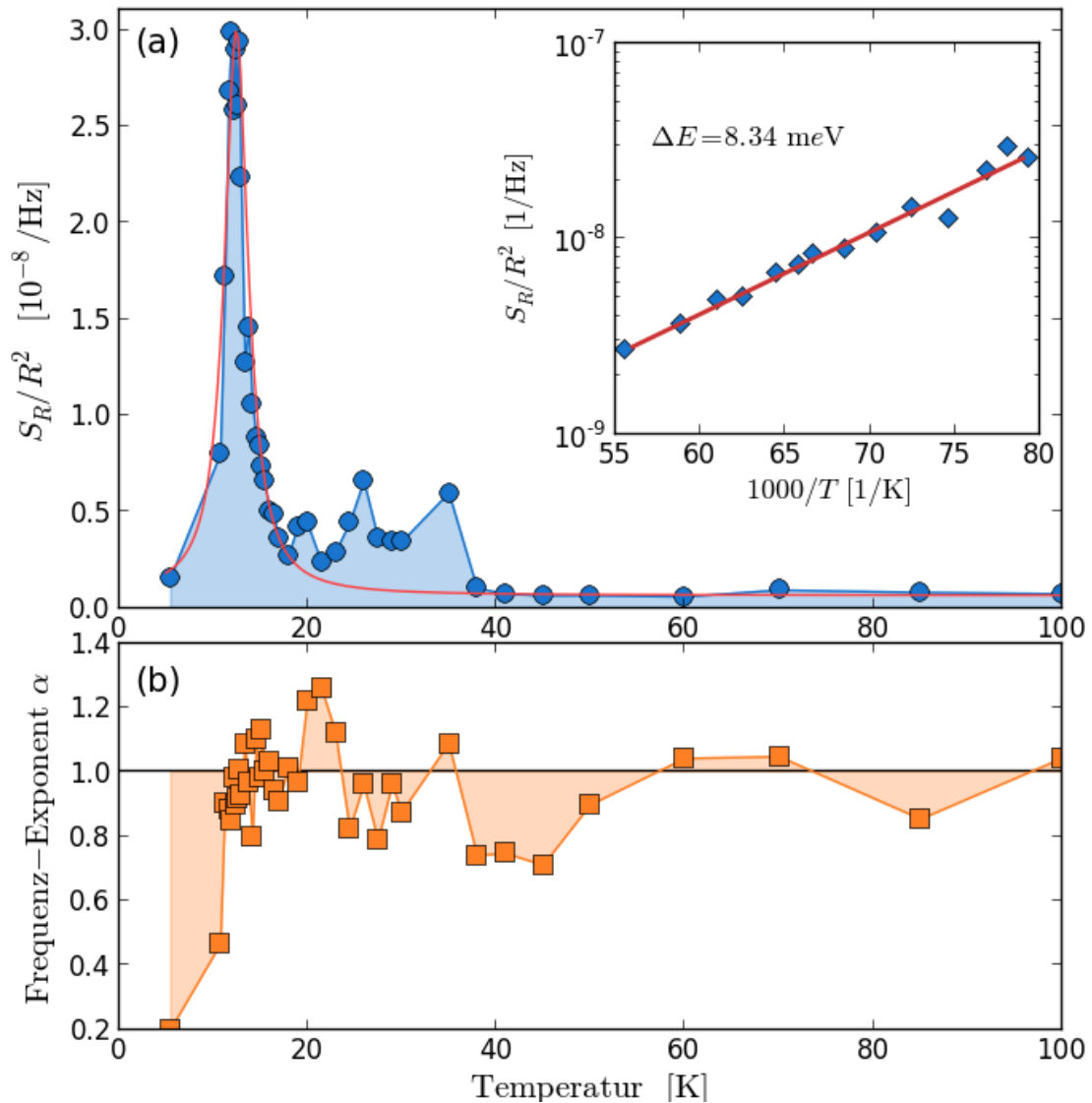


Abbildung 5.4.3: (a) Die normierte spektrale Leistungsdichte des Widerstandsrauschens  $S_R/R^2(T, f = 1 \text{ Hz})$  ist in blau und der Lorentz-Fit in Rot, angepasst an die Daten mit einem Peak bei  $T = 12.4 \text{ K}$  und einer Breite von  $\Delta T = 2.4 \text{ K}$ . Eingebettet: Die normierte spektrale Leistungsdichte zwischen 18 K und 12 K in logarithmischer Darstellung als Funktion der inversen Temperatur. (b) Der dazugehörige Frequenz Exponent  $\alpha$  in  $S_R/R^2 \propto 1/f^\alpha$  in Orange als Funktion der Temperatur.

für dieses System anwendbar ist. Wie erwartet, stimmt der berechnete Verlauf von  $\alpha$  als Funktion der Temperatur nicht mit dem Gemessenen überein. Was in diesem Fall auch für die Perkolationstheorie spricht. Das heißt, die Rauschamplitude ist hauptsächlich durch das temperaturabhängige vierte Moment der Stromverteilung

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

bestimmt:  $S_R/R^2 \propto \sum_s i_s^4 / \left( \sum_s i_s^2 \right)^2$  (siehe Kapitel 2 und [40]).

Ein anderes Verhalten ist im *Arrhenius*-Plot (eingebettet in Abbildung 5.4.3) zu sehen. Zwischen 18 K und 12 K lässt sich die normierte PSD in Abhängigkeit von der Temperatur und einer Aktivierungsenergie beschreiben. Es gilt  $S_R/R^2 \propto \exp(\Delta E/k_B T)$  mit  $\Delta E = 8.34$  meV. Außerdem skaliert  $S_R/R^2$  mit  $T^\beta$ , wobei  $\beta \approx -6.5 \pm 0.6$  (siehe Abbildung 5.4.4 (a)). Dieses Verhalten wurde bereits in *P*-dotiertem Si beobachtet und als Hinweis für einen Metall-Isolator-Übergang interpretiert [69], welcher vermutlich auch in unserem Fall vorliegt. Eine theoretische Arbeit von *Burin et al.* [169] zeigte, dass ein solches Verhalten in einem „Hüpf“-Regime zu erwarten ist. Somit konnten die Autoren die Experimente von *Kar et al.* [69] und *Deville et al.* [170] gut theoretisch beschreiben.

Im Allgemeinen divergiert Widerstandsrauschen vom  $1/f$ -Typ für Metall-Isolator-Übergänge in perkolativen Systemen [85, 40]. In einem klassischen Perkolations-Szenario sind der Widerstand  $R \propto (p - p_c)^{-t}$  und das Widerstandsrauschen  $S_R/R^2 \propto (p - p_c)^{-\kappa}$  (siehe Tabelle 2.1). Die Exponenten  $t$  und  $\kappa$  sind eine Konsequenz der zufälligen Widerstandsnetzwerk-Theorie und  $p_c$  ist die Perkolationschwelle (siehe Kapitel 2).

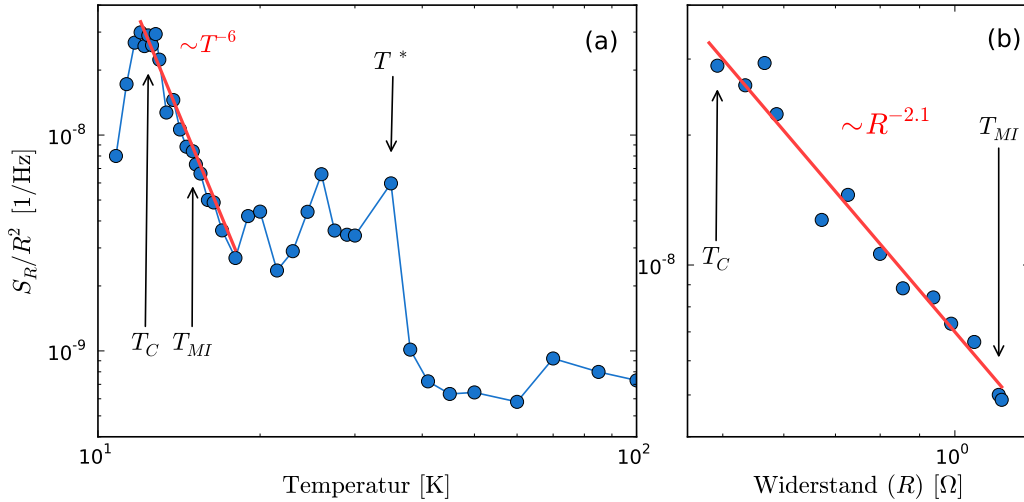


Abbildung 5.4.4: (a) Die normierte PSD des Widerstandsrauschens  $S_R/R^2(T, f = 1\text{Hz})$  ist in Blau zu sehen, mit der Curie-Temperatur  $T_C = 12.6$  K, der Metall-Isolator-Übergangstemperatur  $T_{MI} = 15.2$  K und  $T^* = 35$  K. In Rot ist ein Fit mit  $T^{-6}$  dargestellt. (b)  $S_R/R^2$  als Funktion des Widerstands zwischen  $T_C$  und  $T_{MI}$ . In Rot ist ein Fit  $S_R/R^2 \propto R^w$  mit  $w = -2.1$  eingezeichnet.

Die mikroskopischen Details, die  $p_c$  bestimmen, sind in den meisten Fällen nicht

zugänglich. Allerdings ist nach Gleichung 2.2.5 das normierte Rauschen proportional zum Widerstand, das heißt  $S_R/R^2 \propto R^w$ , mit  $w = \kappa/t$  [24]. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.4.4 (b) zu sehen. Die Exponenten  $t$ ,  $\kappa$  und  $w$  hängen von der Art des Systems und der Dimensionalität der Perkolation ab und können durch Computersimulationen bestimmt werden [171]. In unserem Fall bekommen wir einen negativen Exponenten  $w = |-2.1 \pm 0.3|$ . In der Nähe der Schwelle haben die dreidimensionalen Kontinuums-Modelle „random void“ und „inverted random void“ Exponenten von  $w = 2.1$  beziehungsweise 2.4 ergeben [172]. In Messungen an Manganaten wurde ein Exponent von  $w = 2.9 \pm 0.5$  gefunden [173]. Der im Rahmen dieser Arbeit bestimmte Wert bestätigt das perkolative Verhalten der Ladungsträger in  $\text{EuB}_6$ .

Unterhalb der Perkolationsschwelle konnten die Exponenten aufgrund der begrenzten Anzahl an Datenpunkten nicht verifiziert werden, weil das Rauschen unterhalb von 10 K wegen extrem kleiner Widerstände sehr schwer zu messen ist.

Die Divergenz des Rauschens in der Nähe von  $p_c$  wird normalerweise durch die reduzierte Anzahl der effektiven Strompfade erklärt, die zur Unterdrückung der unkorrelierten Widerstandsfluktuationen entlang verschiedener Wegen führt. Dieser Effekt ist vergleichbar mit der inversen Abhängigkeit zwischen der spektralen Leistungsdichte PSD des Rauschens und dem Volumen der Probe (siehe Gleichung 1.4.5) [39]. In einem perkolativen System nahe des Schwellenwerts können die lokalen Stromdichten und elektrischen Felder sehr viel größer sein als ihre Mittelwerte.

In aus zwei Komponenten zusammengesetzten Systemen (englisch: composite systems) bezeichnet  $p$  die metallische Phase in einem weniger leitfähigen Hintergrund, welchen wir mit  $q$  beschreiben werden. In manchen Fällen kann die Perkolationsschwelle  $p_c$  dieser metallischen Phase verschieden von der Perkolationsschwelle  $q_c$  der weniger leitenden oder isolierenden Phase sein [166, 174]. In  $\text{EuB}_6$  betrachten wir das MP als Cluster einer besser leitenden und magnetisch geordneten Phase in einem paramagnetischen und „schlecht leitenden“ Hintergrund [11, 12]. Die Perkolationsschwelle  $p_c$  entsteht, wenn ein kontinuierlicher Leitungsweg durch die Probe ausgebildet wird, was zu einer Delokalisierung der Löcher und damit zu einer besseren Leitfähigkeit führt. *Sülow et al.* haben  $T_{\text{MI}}$  einem Metall-Isolator-Übergang zugeschrieben, der durch Überlappung der MPen zu Stande kommt. Die Separation der Ladungsdelokalisierung und der magnetischen Ordnung im Volumen bei  $T_C$  entspricht einer elektronischen und magnetischen Phasenseparation [11]. Die Messungen der Fluktuationsspektroskopie zeigen eindeutig eine Perkolationsschwelle  $q_c$  bei  $T_C$ , was bedeutet, dass der Widerstand und dessen Fluktuationen sensitiv auf die unterschiedlich leitenden Anteile des Netzwerks sind. Diese klare Separation wurde auch in Manganaten beobachtet [173]. In diesem Bild stellen wir uns vor, dass die Leitung durch die Elektronen hauptsächlich in der PM-Phase und die Leitung durch die Löcher vornehmlich innerhalb der Polaronenpfade stattfindet. Die damit einhergehende elektrische Polarisierung (di-oder quadropolar) der MPen

könnte die beobachteten Anomalien im DHW erklären.

### 5.4.2 Im PM Bereich und $H \geq 0$

Durch die Messung des nichtlinearen Hall-Effekts konnte man feststellen, dass auch durch das Magnetfeld eine Phasenseparation erreicht werden kann. Die Grenze zwischen der metallischen und der semimetallischen Phase soll durch einen perkolierenden Übergang zustande kommen [12]. Diese Grenze ist als blaue Linie in Abbildung 5.4.5 eingezeichnet.

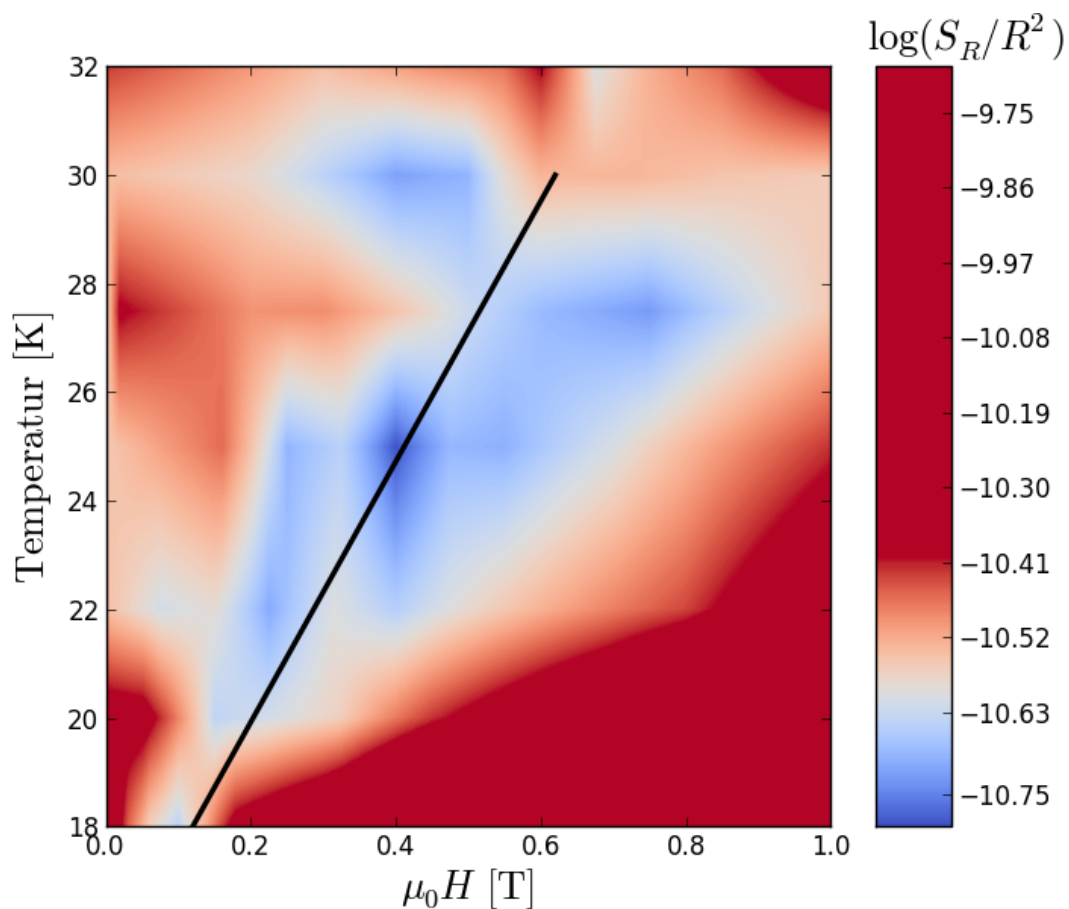


Abbildung 5.4.5: Die normierte spektrale Leistungsdichte (logarithmisch) als Funktion der Temperatur und des Magnetfeldes im paramagnetischen Bereich.

Abbildung 5.4.5 zeigt auch die normierte spektrale Leistungsdichte des Rauschens als Funktion der Temperatur zwischen 18 K und 32 K und des Magnetfelds bis 1 T als Konturplot. Für einen magnetfeldinduzierten Perkolationsübergang wäre, ähnlich beim temperaturgetriebenen Übergang bei  $H = 0$  (Abbildung 5.4.3) ein

scharfer Peak bei der Perkolationsschwelle zu erwarten. Unsere Messungen zeigen dagegen ein schwaches Minimum. Ungeordnete Systeme [175] und organische Ladungstransfersalze [89] zeigten auch ein Minimum bei Metall-Isolator-Übergängen, und damit könnte dieses schwache Minimum als Zeichen für einen Semimetall-Metall-Übergang interpretiert werden.

In Abschnitt 5.4.2 wurde erwähnt, dass es nicht leicht ist, zu verstehen, warum der Widerstand vor dem Perkolationsübergang in Anwesenheit eines Magnetfeldes stark abnimmt und nicht das gleiche Maximum erreicht. Unsere Erklärung ist, dass eine polarisierte Umgebung dafür sorgt, dass die Beweglichkeit der Löcher (entspricht in diesem Fall den MPen) ansteigt. Ein MP in einer polarisierten ferromagnetischen Umgebung kann die polarisierte Wolke leichter mitziehen und sich damit an der Leitfähigkeit beteiligen. Das heißt, die polarisierte Wolke eines magnetischen Polarons in eine polarisierten Umgebung verliert mit steigendem Magnetfeld ihre definierte Grenze. Die Messungen des temperaturabhängigen DHWs in einem Magnetfeld oberhalb von 15 K zeigen auch ein starkes Minimum und später eine abfallende Amplitude bei ansteigendem Magnetfeld, was auf eine homogenere magnetische Umgebung schließen lässt. Auf jeden Fall scheinen die Messungen der Fluktuationsspektroskopie ein einfaches universales Verhalten für temperatur- und magnetfeldgetriebene Perkolation zu widersprechen.

## 5.5 Weiterführende Messungen

### 5.5.1 Thermische Ausdehnung

Neben der Untersuchung der elektrischen und magnetischen Freiheitsgraden ist deren Kopplung an das Gitter von hohem Interesse [155]. Daher wurden am Physikalischen Institut der Goethe-Universität (*AG Prof. Lang*) weiterführende Messungen der thermischen Ausdehnung durchgeführt.

Bei dieser Messung wurde festgestellt, dass der thermische Ausdehnungskoeffizient  $\alpha(T)$  einen sehr großen positiven Betrag bei niedrigen Temperaturen zeigt (Abbildung 5.5.1 (a)). Dies führt zu einem plötzlichen Zusammenziehen des Gitters beim Abkühlen durch den ferromagnetischen Übergang [176]. In (b) sind die beiden Übergänge deutlich als Minima bei  $T_{\text{MI}} = 15.2$  K und  $T_{\text{C}} = 13$  K in der Ableitung zu sehen.

Der Ausdehnungskoeffizient  $\alpha(T)/T$  zeigt eine deutliche Änderung der Gitterkonstante unterhalb  $T_{\text{MI}}$ . Der Vergleich mit der spezifischen Wärme (Abbildung ) und die Bestimmung des Grüneisen-Parameters zeigt eine extrem starke Kopplung der magnetischen (polaronischen) Freiheitsgraden an das Kristallgitter, wie man es auch bei anderen polaronischen Systeme beobachtet hat [122, 155]. Derzeit wird noch untersucht, inwieweit dieses Verhalten mit der Delokalisierung der

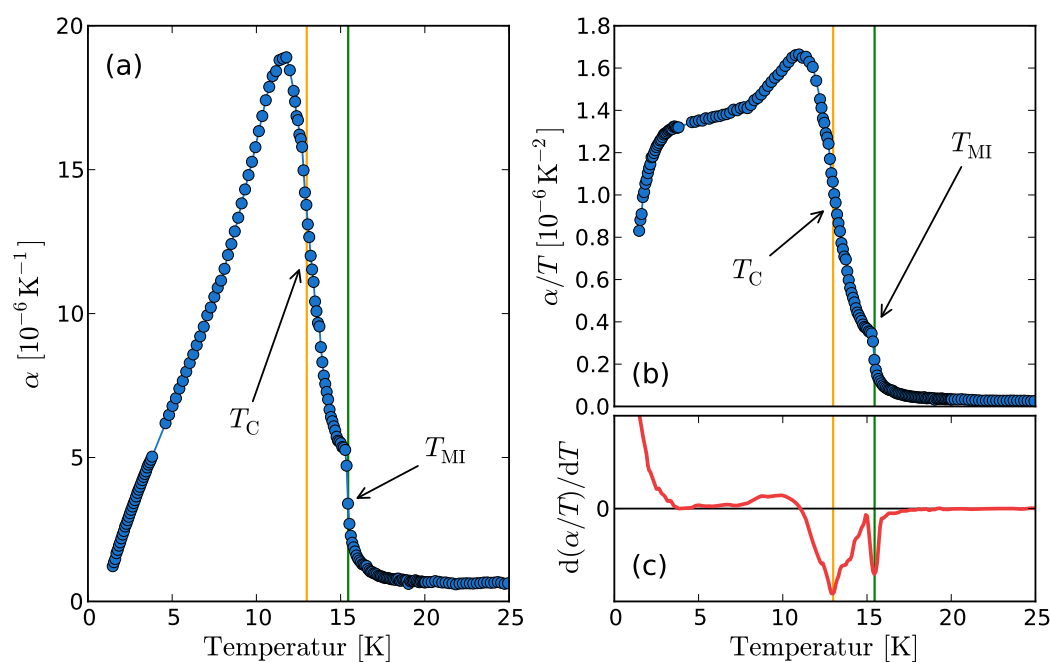


Abbildung 5.5.1: In (a) ist der thermische Ausdehnungskoeffizient  $\alpha$  und in (b) ist  $\alpha/T$  geplottet (nach [176]). Die Ableitung ist in (c) gezeigt. Die grüne Linie markiert den Metall-Isolator-Übergang  $T_{\text{MI}}$  ( $\lambda$ -Übergang) und die orangene Linie steht für den magnetischen Übergang  $T_{\text{C}}$ . Zum Vergleich siehe spezifische Wärme (Abbildung 5.1.3).

Ladungsträger durch den Perkulationsübergang verknüpft ist [177, 176]. Eine Messung der Raman-Streuung hat sogar eine Symmetriebrechung gezeigt, in der am magnetischen Übergang die Struktur von kubisch zu tetragonal übergeht [164].

## 5.5.2 Mikro-Hall-Magnetometrie

Außerdem wurden lokale Streufeldmessungen mit Hilfe von Mikro-Hall-Magnetometern durchgeführt (siehe [156]). Dazu wird eine kleine  $\text{EuB}_6$ -Probe auf einem Kreuz des Mikro-Hall-Sensors positioniert. Aus der Messung der senkrechten Komponente des Probenstreufelds können Rückschlüsse auf die magnetischen Eigenschaften gezogen werden.

Um die Magnetisierungsdaten der Hall-Magnetometrie zu analysieren, wurde eine einfache Bezeichnung der Molekularfeldtheorie verwendet [179]:

$$\frac{M}{M_{\text{S}}} = L(\alpha) \quad (5.5.1)$$



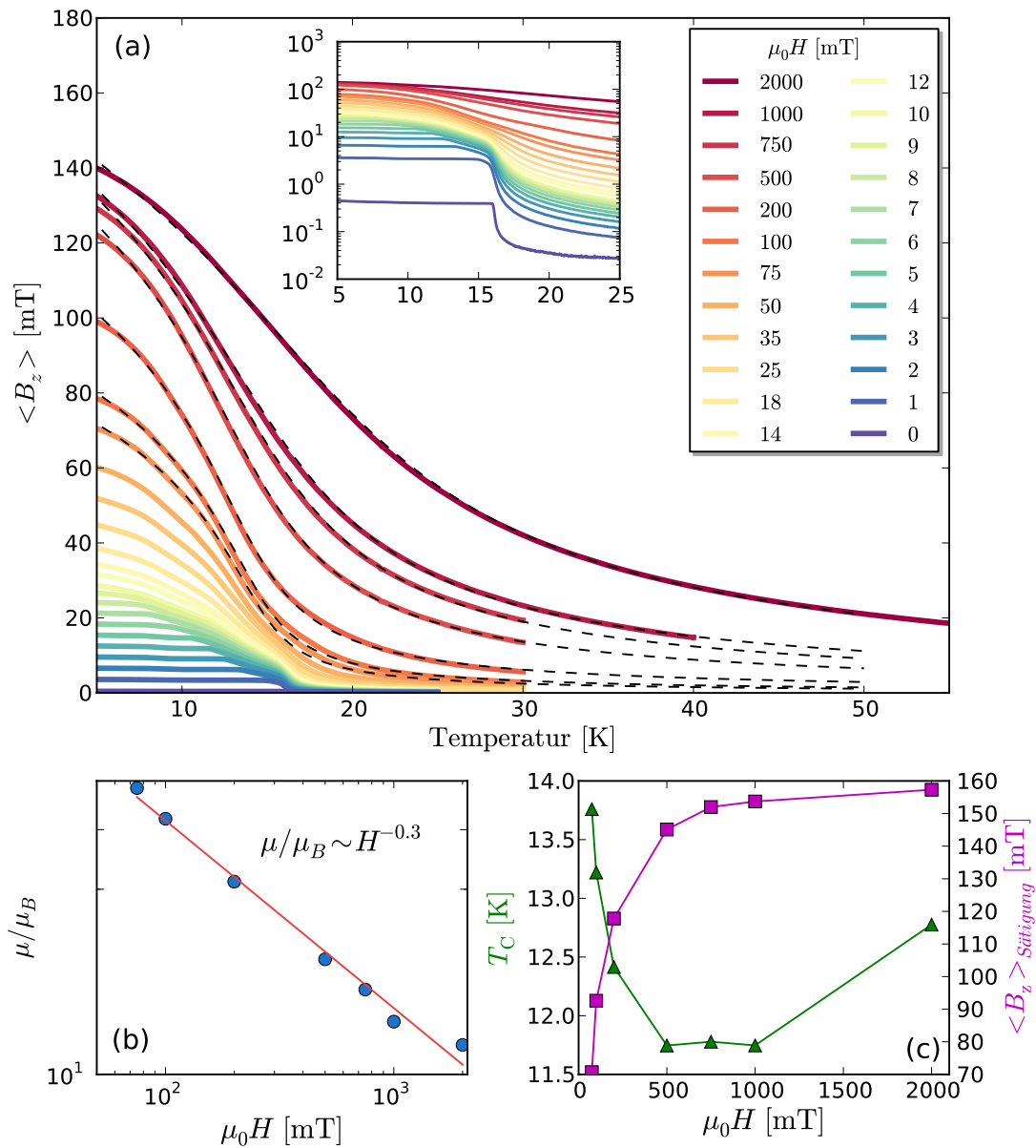


Abbildung 5.5.2: Mikro-Hall-Magnetometrie: (a) Die gemessene mittlere senkrechte Streufeldkomponente (farbig) sowie die nach Gleichung 5.5.1 berechnete mittlere senkrechte Streufeldkomponente (schwarz) im aktiven Bereich des Hall-Sensors  $\langle B_z \rangle$  als Funktion der Temperatur für verschiedene Magnetfelder. In (b) ist die berechnete Größe  $\mu/\mu_B$  als Funktion des Magnetfeldes dargestellt. In (c) ist die berechnete Curie-Temperatur  $T_C$  in Grün und die berechnete Sättigungsmagnetisierung  $M_S$  in Magenta gezeigt. Nach [156, 178].

## 5 Das System $\text{EuB}_6$

mit

$$L(\alpha) = \coth(\alpha) - 1/\alpha \quad (5.5.2)$$

und

$$\alpha = \frac{\mu H}{k_B T} + 3 \frac{T_C}{T} \frac{M}{M_S}. \quad (5.5.3)$$

Es werden drei Parameter benötigt, um das mathematische Konstrukt des Modells an die Messung anzupassen: Die Sättigungsmagnetisierung  $M_S$ , die *Curie*-Temperatur  $T_C$  und die Größe  $\mu/\mu_B$ . Das magnetische Moment  $\mu$  wird mit der Stärke der einzelnen magnetischen Cluster assoziiert, deren innere Freiheitsgraden als eingefroren angesehen werden. Die Hoch-Temperatur *Curie-Weiss*-Suszeptibilität  $\chi = C/(T - T_C)$  kann aus dem folgenden Ausdruck abgeleitet werden:  $C = \mu M_S / 3k_B$  [167]. Da  $M$  nur implizit bestimmt ist, ist die Lösung nur graphisch beziehungsweise numerisch zu bestimmen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Software entwickelt, die eine Funktion mit mehreren Parametern numerisch bestmöglich an vorgegebene Messdaten anpasst.

Die Messungen zeigen, dass die mittlere Anzahl der magnetischen Momente innerhalb eines Clusters bei zunehmendem externen Magnetfeld geringer wird (siehe Abbildung 5.5.2 (b)) [178]. Außerdem ist es aufgrund des abrupten Anstiegs der magnetischen Suszeptibilität bei  $T_{MI}$  nur oberhalb von ungefähr 75 mT möglich, die Daten nach dem verwendeten Modell zu berechnen.

Abbildung 5.5.2 zeigt in (a) neben den nach Gleichung 5.5.1 Messdaten die berechnete mittlere Streufeldkomponente im aktiven Bereich eines Hall-Kreuzes  $\langle B_z \rangle$  als Funktion des Magnetfeldes und der Temperatur. Bei niedrigen Magnetfeldern ist das Signal der Hall-Spannung von einer Stufe bei 16 K geprägt, deren Ursprung möglicherweise in dem ersten entstehenden Polaronenpfad liegt. Aus der Messung bei  $H = 0$  T lässt sich schließen, dass dieser Polaronenpfad unterhalb der *Curie*-Temperatur bei  $T_C = 12.6$  K eingefroren bleibt (siehe den eingebetteten Graphen in Abbildung 5.5.2 (a)). Es ist plausibel anzunehmen, dass die magnetischen Momente innerhalb des Pfades parallel zur langen Seite der Probe ausgerichtet werden.

Allgemein wird angenommen, dass die Polaronengröße mit zunehmendem Magnetfeld und/oder ihre Anzahl zunimmt. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zeigen allerdings ein komplexeres Verhalten bei  $\text{EuB}_6$ . In zunehmenden Magnetfeldern bis 12 mT können die Messdaten wie folgt interpretiert werden:

Die Polaronen, die sich innerhalb des leitfähigen Pfades befinden, bestimmen maßgeblich die Leitfähigkeit der Probe aufgrund der Delokalisierung der Löcher. Polaronen, die sich im Randbereich des Polaronennetzwerks (in sogenannten *dead-end*-Gebieten) oder die sich in einer vom Pfad isolierten Insel befinden, tragen

nicht direkt zur Leitfähigkeit bei. Sie verringern die Gesamtleitfähigkeit aufgrund der Lokalisierung von Löchern und indirekt aufgrund einer Erhöhung des Streuquerschnittes zwischen den Leitungselektronen und den MPen in der PM Phase.

Anhand der DHW im Magnetfeld sowie der Hall-Magnetometriemessung lässt sich  $T_{\text{MI}}$  bis etwa 90 mT nachweisen. Bevor der  $T_{\text{MI}}$  durch höhere externe Magnetfelder unterdrückt wird, lässt sich eine Verschiebung der  $T_{\text{MI}}$  zu höheren Temperaturen beobachten. Offenbar beginnt der Polaronenpfad sowie das gesamte Polaronenmodell mit zunehmendem Magnetfeld an Bedeutung zu verlieren, da die Probe magnetisch homogener wird. Das heißt, die zunehmende Polarisierung der Umgebung führt zunächst zu einem Aufweichen der Polaronengrenzen und schließlich dazu, dass das Polaron als einzelne ferromagnetische Einheit nicht mehr von der polarisierten Umgebung abzugrenzen ist. Insbesondere daher lassen sich die Magnetometriedaten nur in höheren externen Magnetfeldern mit der klassischen Molekularfeldformel (siehe Gleichung 5.5.1) beschreiben. In sehr großen Magnetfeldern erfolgt der Übergang von paramagnetischer zur ferromagnetischer Ordnung in einem homogenen System, während das mittlere magnetische Moment (assoziiert mit der Clustergröße) abnimmt (siehe Abbildung 5.5.2 (b)). Im Teilbild (c) sind die berechneten Werte für  $T_C$  und das Sättigungstreufeld (analog zur Sättigungsmagnetisierung) dargestellt.

## 5.6 Phasendiagramm

Zum Abschluss der Diskussion wird versucht die Ergebnisse der bisher verwendeten Methoden (DHW, Fluktuationsspektroskopie) und die der Mikro-Hall-Magnetometrie-Messungen [156] in einem Phasendiagramm darzustellen (siehe Abbildung 5.6.1).

**Metall-Isolator-Übergang** Die Linie in Violett repräsentiert den Metall-Isolator-Übergang beziehungsweise Semimetall-Metall-Übergang, die aus folgenden Messungen entnommen ist: Die DHW-Messungen zeigen in einem Magnetfeld ein Maximum (siehe Abbildung 5.3.5). Außerdem hat die Ableitung des Widerstandes bei konstanten Temperaturen in Abhängigkeit vom Magnetfeld Minima, wo der Übergang erwartet wird [175? ]. Aus dem nichtlinearen Hall-Effekt erhält man den gleichen, bei nicht zu kleinen Magnetfeldern linearen Verlauf im Temperatur-Magnetfeld-Phasendiagramm [12] (siehe Abschnitt 5.1.3 und Abbildung 5.3.6 (d)).

**Magnetischer Übergang** Die Linie in Orange zeigt den magnetischen Übergang bei  $T_C = 12.6$  K basierend auf den Messungen des DHWs in kleinen Magnetfeldern und der berechneten  $T_C$  im Modell vom Abschnitt 5.5 aus den Mikro-Hall-Magnetometrie-Messungen (siehe [156, 178]).

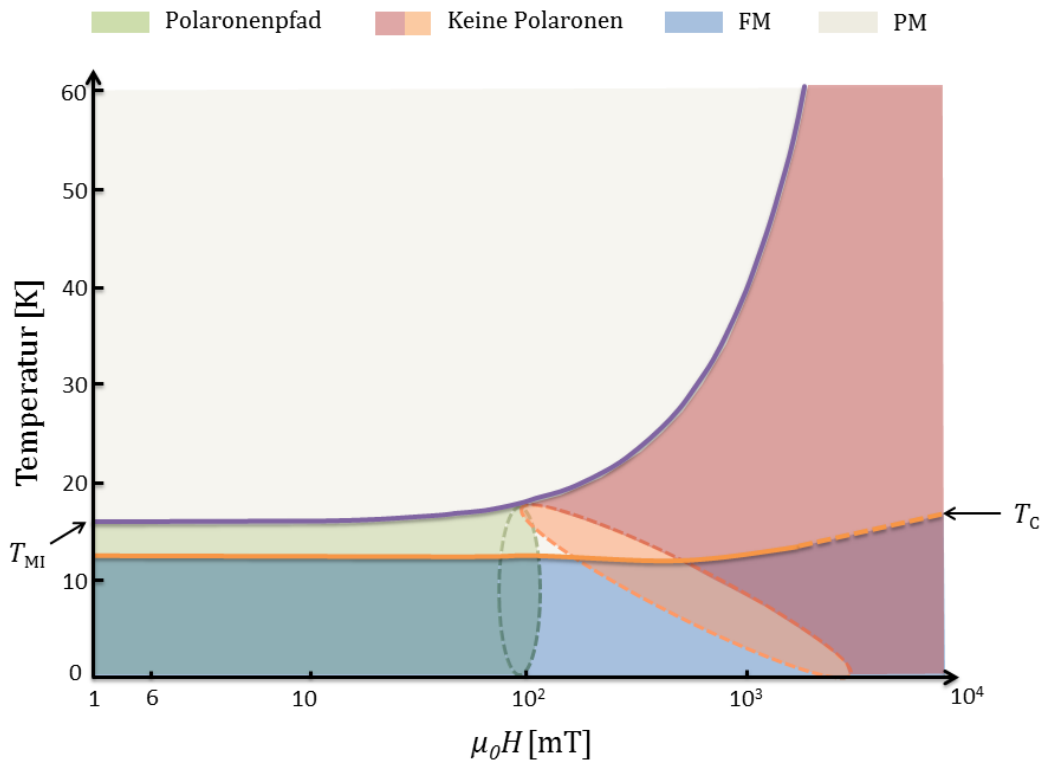


Abbildung 5.6.1: Phasendiagramm nach den Messungen von DHW, Fluktuationsspektroskopie, Hall-Effekt und Mikro-Hall-Magnetometrie.

**Polaronenpfad** Der grüne Bereich zeigt das Gebiet, wo der Polaronenpfad auftritt. Die Grenze wurde nach den Messungen des DHW im Magnetfeld und den Messungen durch Mikro-Hall-Magnetometrie [156, 178] abgebildet. Aus den Daten der DHW-Messungen im Magnetfeld schließt man, dass der Polaronenpfad zu höheren Temperaturen hin verschiebt, bevor er ungefähr bei 90 mT verschwindet. Außerdem zeigt der Magnetowiderstand bei derselben Temperatur kein Maximum mehr. Das deutet auf eine Abwesenheit des Polaronenpfads oberhalb von 90 mT hin.

**Weiche Polaronen** Im roten Bereich vermutet man, dass die Anwesenheit von MPen vernachlässigbar ist, da die Probe magnetisch stark polarisiert ist. Mit sinkender Temperatur werden die MPen größer. Ein steigendes Magnetfeld verursacht vermutlich eine Vergrößerung der MPen aber auch eine Verschmierung der Grenzen (weiche MP). Das Ergebnis von Abbildung 5.5.2 zeigt deutlich, dass bei ungefähr 3 T ein Polaron von der Größe einer Einheitszelle zu erwarten ist, da, wie vorher erwähnt, höhere Magnetfelder die Umgebung magnetisch stark polarisieren.

## 5.6 Phasendiagramm

Außerdem beobachten wir kein Maximum in der spektralen Leistungsdichte im Magnetfeld, was bedeutet, dass dort keine Perkolation auftritt, und es damit zu keinem Überlapp zwischen den MPen kommt.



## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Die Schwerpunkte dieser Arbeit sind elektrische, stationäre und zeitaufgelöste Transportmessungen an  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  als Modellsystem, um die dem stark negativen MR-Effekt zugrunde liegenden Mechanis-

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

men zu untersuchen.

Der Widerstand von  $\text{EuB}_6$  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  $\text{EuB}_6$  unterhalb von  $T_{\text{C}}$  ferromagnetisch geordnet ist. Zwischen  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  zeigen die Neutronendaten allerdings kein klares magnetisches Signal. In diesem Bereich wird vermutet, dass es in  $\text{EuB}_6$  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  $T_{\text{MI}}$  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  $T_{\text{MI}}$  zu einem Überlapp der MPen kommt. D.h. bei  $T_{\text{MI}}$  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  $T_{\text{MI}}$ . Das Modell ist schematisch in Abbildung 6.0.1 dargestellt.

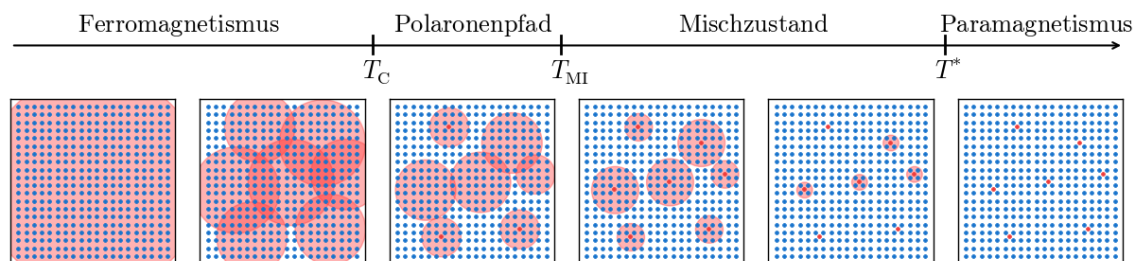


Abbildung 6.0.1: Schematische Darstellung der Entstehung von MPen bei verschiedenen Temperaturen in  $\text{EuB}_6$ . Die Punkte stellen die Gitterpositionen der Eu-Ionen dar. Die rote Punkte markieren die Spins der unterhalb von  $T^*$  lokalisierten Löcher, während die blauen Punkte für die Spins der  $\text{Eu}^{2+}$ -Ionen stehen. Im Bereich der roten Kreise erfolgt unterhalb von  $T^*$  eine ferromagnetische Polarisierung der lokalen Spins aufgrund der Lokalisierung der Löcher. Unterhalb von  $T_{\text{MI}}$  erfolgt durch Überlappung der MPen eine Delokalisierung der Löcher innerhalb des Polaronenpfads. Bei tiefen Temperaturen unterhalb von  $T_{\text{C}}$  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  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  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  $\text{EuB}_6$  zwischen  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  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  $\text{EuB}_6$ . 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  $\text{EuB}_6$  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  $1 \times 10^{-9}$  1/Hz auf  $4 \times 10^{-9}$  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  $T_{\text{MI}}$  einen Wert von  $7 \times 10^{-9}$  1/Hz. Bei  $T_C$  ist ein scharfer Peak mit einer Amplitude von  $27 \times 10^{-9}$  1/Hz zu beobachten. Offensichtlich hat die normierte PSD ihr Maximum bei  $T_C$  und nicht wie erwartet bei der Perkolationschwelle bei  $T_{\text{MI}}$ . 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  $\text{EuB}_6$  liegen die Perkolationschwellen  $q_c$  bei  $T_C$  und  $p_c$  bei  $T_{\text{MI}}$ , 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  $\text{EuB}_6$  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  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  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  $T_{\text{MI}}$  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  $\text{EuB}_6$  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  $T_{\text{MI}}$  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  $\text{EuB}_6$  im Bereich der Phasenseparation zwischen  $T_{\text{MI}}$  und  $T_{\text{C}}$  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  $\text{EuB}_6$ -Proben, Manganate und magnetische Halbleiter.



# Literaturverzeichnis

- [1] G. C. Xiong, Q. Li, H. L. Ju, S. N. Mao, L. Senapati, X. X. Xi, R. L. Greene, and T. Venkatesan. Giant magnetoresistance in epitaxial  $\text{Nd}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$  thin films . *Applied Physics Letters*, 66:1427, 1995. doi: 10.1063/1.113267. URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.113267>.
- [2] R. Xu, A. Husmann, T. F. Rosenbaum, M.-L. Saboungi, J. E. Enderby, and P. B. Littlewood. Large magnetoresistance in non-magnetic silver chalcogenides. *Nature*, 390:57–60, 1997. doi: 10.1038/36306.
- [3] S. A. Solin, T. Thio, D. R. Hines, and J. J. Heremans. Enhanced Room-Temperature Geometric Magnetoresistance in Inhomogeneous Narrow-Gap Semiconductors. *Science*, 289:1530–1532, September 2000. doi: 10.1126/science.289.5484.1530.
- [4] M. P. Delmo, S. Yamamoto, S. Kasai, T. Ono, and K. Kobayashi. Large positive magnetoresistive effect in silicon induced by the space-charge effect. *Nature*, 457:1112–1115, 2009. doi: 10.1038/nature07711.
- [5] C. Wan, X. Zhang, X. Gao, J. Wang, and X. Tan. Geometrical enhancement of low-field magnetoresistance in silicon. *Nature Letter*, 477:304–307, September 2011. doi: 10.1038/nature10375.
- [6] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer. Giant negative magnetoresistance in perovskitelike  $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$  ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, 71:2331–2333, 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.71.2331. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.71.2331>.
- [7] B. T. Matthias, R. M. Bozorth, and J. H. Van Vleck. Ferromagnetic Interaction in EuO. *Physical Review Letter*, 7(5):160 – 161, Sep. 1961. doi: 10.1103/PhysRevLett.7.160. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.7.160>.
- [8] T. Kasuya. Mobility of the Antiferromagnetic Large Polaron. *Solid State Communications*, 8:1635 – 1638, 1970.
- [9] F. Holtzberg, T. R. McGuire, S. Methfessel, and J. C. Suits. Effect of Electron Concentration on Magnetic Exchange Interactions in Rare Earth Chalcogenides. *Physical Review Letter*, 13(1):18 – 21, Jul. 1964. doi:

- 10.1103/PhysRevLett.13.18. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.13.18>.
- [10] X. Zhang, S. von Molnár, Z. Fisk, and P. Xiong. Spin-Dependent Electronic States of the Ferromagnetic Semimetal  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review Letters*, 100(16):167001, April 2008. doi: 10.1103/PhysRevLett.100.167001.
- [11] S. Süllo, I. Prasad, M. C. Aronson, S. Bogdanovich, J. L. Sarrao, and Z. Fisk. Metallization and magnetic order in  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 62:11626 – 11632, November 2000. doi: 10.1103/PhysRevB.62.11626.
- [12] X. Zhang, L. Yu, S. von Molnár, Z. Fisk, and P. Xiong. Nonlinear Hall Effect as a Signature of Electronic Phase Separation in the Semimetallic Ferromagnet  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review Letters*, 103(10):106602, September 2009. doi: 10.1103/PhysRevLett.103.106602.
- [13] E. Schmutzer. *Grundlage der theoretischen Physik*, volume 2. WILEY-VCH, 2005.
- [14] W. C. van Etten. *Introduction to Random Signals and Noise*. John Wiley & Sons, Ltd, 2005.
- [15] Fritz Riehle. *Frequency Standards*. WILWY-VCH, 2004.
- [16] J. Sólyom. *Fundamentals of the Physics of Solids*, volume 2. Springer, 2009.
- [17] J. D. Patterson and B. C. Bailey. *Solide State Physics*. Springer, 2007.
- [18] Kai Gehrke. *Magnetoelektrische Eigenschaften von Manganat-Titanat-Übergittern*. PhD thesis, Georg-August-Universität Göttingen, 2009.
- [19] V. Moshnyaga, K. Gehrke, O. I. Lebedev, L. Sudheendra, A. Belenchuk, S. Raabe, O. Shapoval, J. Verbeeck, G. Van Tendeloo, and K. Samwer. Electrical nonlinearity in colossal magnetoresistance manganite films: Relevance of correlated polarons. *Physical Review B*, 79(13):134413, Apr 2009. doi: 10.1103/PhysRevB.79.134413.
- [20] N. Chénne, T. Mishonov, and J.O. Indekeu. Observation of a sharp lambda peak in the third harmonic voltage response of high-T superconductor thin films. *European Physical Journal B: Condensed Matter and Complex Systems*, 32(4):437–444, April 2003. URL <http://dx.doi.org/10.1140/epjb/e2003-00125-4>.
- [21] J. G. Ossandon, S. Sergeenkov, P. Esquinazi, and H. Kempa. Higher harmonics of ac voltage response in narrow strips of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  thin films: evidence for strong thermal fluctuations. *Superconductor Science and Technology*, 18(3):325, 2005. URL <http://stacks.iop.org/0953-2048/18/i=3/a=020>.



- [22] R. Rommel, B. Hartmann, J. Brandenburg, J. A. Schlueter and J. Müller. Nonlinear electronic transport in the anomalous metallic state of quasi-2D organic superconductors  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X. *physica status solidi*, 250(3): 568 – 574, Mar. 2013.
- [23] M. A. Dubson, Y. C. Hui, M. B. Weissman, and J. C. Garland. Measurement of the fourth moment of the current distribution in two-dimensional random resistor networks. *Physical Review B*, 39:6807–6815, April 1989. doi: 10.1103/PhysRevB.39.6807.
- [24] Y. Yagil and G. Deutscher. Third-harmonic generation in semicontinuous metal films. *Physical Review B*, 46:16115–16121, December 1992. doi: 10.1103/PhysRevB.46.16115.
- [25] Qingzhe Wen and D. R. Clarke. Electrical harmonic generation from notched narrow metal lines. *Journal of Applied Physics*, 83:1132, 1998. doi: 10.1063/1.366805. URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.366805>.
- [26] Rudolf Müller. *Halbleiter-Elektronik 15*. Springer Verlag Berlin, Heidelberg, 2 edition, 1990.
- [27] B. J. Gross. *1/f noise in MOSFETs with ultrathin gate dielectrics*. PhD thesis, Dept. of Electrical Engineering and Computer Science, Massachusetts Institute of Technology, 1992. URL <http://hdl.handle.net/1721.1/13192>.
- [28] J. Müller, Y. Li, St. von Molnár, Y. Ohno, and H. Ohno. Single-electron switching in Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs Hall devices. *Physical Review B*, 74(12): 125310, Sep 2006. doi: 10.1103/PhysRevB.74.125310.
- [29] J. B. Johnson. Thermal Agitation of Electricity in Conductors. *Nature*, 119: 50, 1927.
- [30] H. Nyquist. Thermal agitation of electric charge in conductors. *Physical Review*, 32:110, 1928. doi: 10.1103/PhysRev.32.110.
- [31] F. N. Hooge, T. G. M. Kleinpenning, and L. K. J. Vandamme. Experimental studies on 1/f noise. *Reports on Progress in Physics*, 44(5):479–532, 1981. URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/44/479>.
- [32] W. Schottky. Über spontane Stromschwankungen in verschiedenen Elektrizitätsleitern. *Annalen der Physik*, 57:541, 1918. doi: 10.1002/andp.19183622304.
- [33] J. M. D. Coey. *Magnetism and Magnetic Materials*. Cambridge University Press, 2010.
- [34] B. Raquet. *Spin Electronics*, chapter 11: Electronic Noise in Magnetic Materials and Devices, pages 232–273. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2000. URL <http://www.springerlink.com/content/x327258110497121>.

- [35] S. Machlup. Proc. 6th Int. Conf. on Noise in Physical Systems, Gaithersburg, MD, USA, 157. volume 6, Gaithersburg, MD, USA, 1981.
- [36] R. F. Voss and J. Clarke.  $1/f$ -noise in music and speech. *Nature*, 258(5533): 317–318, November 1975. URL <http://dx.doi.org/10.1038/258317a0>.
- [37] W. H. Press. Flicker Noise in Astronomy and Elsewhere. *Comments Astrophysics and Space Physics*, 7:103, 1978. URL [http://www.nr.com/whp/Flicker\\_Noise\\_1978.pdf](http://www.nr.com/whp/Flicker_Noise_1978.pdf).
- [38] Jens Müller. Fluctuation Spectroscopy: A New Approach for Studying Low-Dimensional Molecular Metals. *ChemPhysChem*, 12(7):1222–1245, 2011. ISSN 1439-7641. doi: 10.1002/cphc.201000814. URL <http://dx.doi.org/10.1002/cphc.201000814>.
- [39] F. N. Hooge.  $1/f$  noise is no surface effect. *Physics Letters A*, 29(3):139–140, 1969. ISSN 0375-9601. doi: 10.1016/0375-9601(69)90076-0. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TVM-46MM3H2-D5/2/ae4af5aa98cb9fc56fb5ab54e44cd2cb>.
- [40] Sh. Kogan. *Electronic noise and fluctuations in solids*. Cambridge University Press, 1996.
- [41] R. F. Voss and J. Clarke. Flicker ( $1/f$ ) noise: Equilibrium temperature and resistance fluctuations. *Physical Review B*, 13(2):556–573, Jan 1976. doi: 10.1103/PhysRevB.13.556.
- [42] H. G. E. Beck and W. P. Spruit.  $1/f$  Noise in the variance of Johnson noise. *Journal of Applied Physics*, 49:3384, 1978.
- [43] C. Barone, S. Pagano, I. Pallecchi, E. Bellingeri, M. Putti, and C. Ferdeghini. Thermal and voltage activated excess  $1/f$  noise in  $\text{FeTe}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$  epitaxial thin films. *Physical Review B*, 83:134523, Apr 2011. doi: 10.1103/PhysRevB.83.134523. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.83.134523>.
- [44] J. Müller, Stephan von Molnár, Y. Ohno, and H. Ohno. Decomposition of ( $1/f$ ) Noise in  $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs})$  Hall Devices. *Physical Review Letters*, 96(18):186601, 2006. doi: 10.1103/PhysRevLett.96.186601. URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v96/e186601>.
- [45] St. Machlup. Noise in Semiconductors: Spectrum of a Two-Parameter Random Signal. *Journal of Applied Physics*, 25(3):341–343, 1954. doi: 10.1063/1.1721637. URL <http://link.aip.org/link/?JAP/25/341/1>.
- [46] Benedikt Hartmann. Fluktuationsspektroskopie an dem organischen Ladungstransfersalz  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[ N(CN) $_2$ ] Cl. Master’s thesis, PI - Goethe Universität Frankfurt am Main, 2012.
- [47] J. A. Mydosch. *Spin glasses: an experimental Introduction*. Taylor & Francis, 1993.

- [48] P. Dutta, P. Dimon, and P. M. Horn. Energy Scales for Noise Processes in Metals. *Physical Review Letters*, 43(9):646–649, Aug 1979. doi: 10.1103/PhysRevLett.43.646.
- [49] P. Dutta and P. M. Horn. Low-frequency fluctuations in solids:  $1/f$  noise. *Reviews of Modern Physics*, 53(3):497–516, Jul 1981. doi: 10.1103/RevModPhys.53.497.
- [50] F. K. Du Pré. A Suggestion Regarding the Spectral Density of Flicker Noise. *Physical Review*, 78(5):615, Jun 1950. doi: 10.1103/PhysRev.78.615.
- [51] A. Van der Ziel. On the noise spectra of semi-conductor noise and of flicker effect. *Physica*, 16(4):359–372, April 1950. ISSN 0031-8914. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6X42-4D8DH51-18/2/eb1ade29b822dddbbc164aabb6feaa6a>.
- [52] B. Raquet, J. M. D. Coey, S. Wirth, and S. von Molnár.  $1/f$  noise in the half-metallic oxides CrO<sub>2</sub>, Fe<sub>3O<sub>4</sub></sub>, and La<sub>2/3</sub>Sr<sub>1/3</sub>MnO<sub>3</sub>. *Physical Review B*, 59(19):12435–12443, May 1999. doi: 10.1103/PhysRevB.59.12435.
- [53] C. C. Yu and A. J. Leggeti. Low temperature properties of amorphous materials: through a glass darkly. *Comments on Condensed Matter Physics*, 14(4):231–251, 1988.
- [54] S. Vitusevich and F. Gasparyan. Carbon Nanotubes Applications on Electron Devices. *Nanotechnology and Nanomaterials*, pages 257–298, August 2011.
- [55] Berit Körbitzer. Fluktuationsspektroskopie an zweidimensionalen Elektronensystemen in GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen. Master’s thesis, PI - Goethe Universität Frankfurt am Main, Okt 2012.
- [56] H. M. Carruzzo, E. R. Grannan, and Yu C. C. Nonequilibrium dielectric behavior in glasses at low temperatures Evidence for interacting defects. *Physical Review B*, 50:6685–6695, Sep 1994. doi: 10.1103/PhysRevB.50.6685. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.50.6685>.
- [57] C. C. Yu. Why Study Noise Due to Two Level Systems: A Suggestion for Experimentalists. *Journal of Low Temperature Physics*, 137:251–265, November 2004. doi: 10.1023/B:JOLT.0000049056.07100.85.
- [58] P. Nalbach, D. Osheroff, and S. Ludwig. Non-equilibrium Dynamics of Interacting Tunneling States in Glasses. *Journal of Low Temperature Physics*, 137:395–452, 2004. URL <http://dx.doi.org/10.1023/B:JOLT.0000049064.00245.60>. 10.1023/B:JOLT.0000049064.00245.60.
- [59] P. J. Restle, M. B. Weissman, and R. D. Black. Tests of Gaussian statistical properties of  $1/f$  noise. *Journal of Applied Physics*, 54:5844–5847, 1983. doi: 10.1063/1.331809.

- [60] M. B. Weissman.  $1/f$  noise and other slow, nonexponential kinetics in condensed matter. *Reviews of Modern Physics*, 60(2):537–571, Apr 1988. doi: 10.1103/RevModPhys.60.537.
- [61] M. B. Weissman. What is a spin glass? A glimpse via mesoscopic noise. *Reviews of Modern Physics*, 65(3):829–839, Jul 1993. doi: 10.1103/RevModPhys.65.829.
- [62] G. M. Khera and J. Kakalios. Temperature and doping dependence of non-Gaussian  $1/f$  noise and noise statistics in hydrogenated amorphous silicon. *Physical Review B*, 56(4):1918–1927, Jul 1997. doi: 10.1103/PhysRevB.56.1918.
- [63] Paulo S.R. Diniz. *Adaptive Filtering, Algorithms and Practical Implementation*. Springer, 3 edition, 2008.
- [64] C. E. Parman, N. E. Israeloff, and J. Kakalios. Conductance-noise power fluctuations in hydrogenated amorphous silicon. *Physical Review Letter*, 69(7):1097–1100, 1992. doi: 10.1103/PhysRevLett.69.1097. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.69.1097>.
- [65] P. J. Restle, R. J. Hamilton, M. B. Weissman, and M. S. Love. Non-Gaussian effects in  $1/f$  noise in small silicon-on-sapphire resistors. *Physical Review B*, 31(4):2254–2262, Feb 1985. doi: 10.1103/PhysRevB.31.2254.
- [66] M.B. Weissman, N.E. Israeloff, and G.B. Alers. Spin-glass fluctuation statistics: mesoscopic experiments in Mn. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 114(1-2):87–130, August 1992. ISSN 0304-8853. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TJJ-46G6212-147/2/23e8f0d49caf0808959ec8b0238d719a>.
- [67] I. Raičević, Dragana Popović, C. Panagopoulos, and T. Sasagawa. Non-Gaussian noise in the in-plane transport of lightly doped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ : Evidence for a collective state of charge clusters. *Physical Review B*, 83:195133, May 2011. doi: 10.1103/PhysRevB.83.195133. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.83.195133>.
- [68] Jaroszyński, J. and Popović, Dragana and Klapwijk, T. M. Universal Behavior of the Resistance Noise across the Metal-Insulator Transition in Silicon Inversion Layers. *Physical Review Letter*, 89:276401, Dec. 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.89.276401. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.89.276401>.
- [69] Sw. Kar, A. K. Raychaudhuri, A. Ghosh, H. v. Löhneysen, and G. Weiss. Observation of Non-Gaussian Conductance Fluctuations at Low Temperatures in Si:P(B) at the Metal-Insulator Transition. *Physical Review Letters*, 91(21):216603, Nov 2003. doi: 10.1103/PhysRevLett.91.216603. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.91.216603>.

- [70] Jaroszyński, J. and Wróbel, J. and Karczewski, G. and Wojtowicz, T. and Dietl, T. Magnetoconductance Noise and Irreversibilities in Submicron Wires of Spin-Glass  $n^+ - \text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ . *Physical Review Letter*, 80:5635–5638, Jun. 1998. doi: 10.1103/PhysRevLett.80.5635. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.80.5635>.
- [71] W. L. McMillan. Scaling theory of Ising spin glasses. *J. Phys. C*, 17:3179–3187, 1984. URL <http://iopscience.iop.org/0022-3719/17/18/010>.
- [72] W. L. McMillan. Domain-wall renormalization-group study of the three-dimensional random Ising model. *Physical Review B*, 30:476–477, Jul. 1984. doi: 10.1103/PhysRevB.30.476. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.30.476>.
- [73] A. J. Bray and M. A. Moore. Lower critical dimension of Ising spin glasses: a numerical study. *J. Phys. C*, 17:L463, 1984. URL <http://iopscience.iop.org/0022-3719/17/18/004>.
- [74] Daniel S. Fisher and David A. Huse. Ordered Phase of Short-Range Ising Spin-Glasses. *Physical Review Letter*, 56:1601–1604, Apr. 1986. doi: 10.1103/PhysRevLett.56.1601. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.56.1601>.
- [75] A. J. Bray and M. A. Moore. Chaotic Immature of the Spin-Glass Phase. *Physical Review Letters*, 58(1):57–60, Jan 1987. doi: 10.1103/PhysRevLett.58.57. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.58.57>.
- [76] D. S. Fisher and D. A. Huse. Nonequilibrium dynamics of spin glasses. *Physical Review B*, 38(1):373–385, Jul 1988. doi: 10.1103/PhysRevB.38.373. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.38.373>.
- [77] D. S. Fisher and D. A. Huse. Equilibrium behavior of the spin-glass ordered phase. *Physical Review B*, 38(1):386–411, Jul 1988. doi: 10.1103/PhysRevB.38.386. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.38.386>.
- [78] R. Rammal, G. Toulouse, and M. A. Virasoro. Ultrametricity for physicists. *Review Modern Physics*, 58:765–788, Jul. 1986. doi: 10.1103/RevModPhys.58.765. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.58.765>.
- [79] A. T. Ogielski and D. L. Stein. Dynamics on Ultrametric Spaces. *Physical Review Letter*, 55(15):1634–1637, Oct 1985. doi: 10.1103/PhysRevLett.55.1634. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.55.1634>.
- [80] M. Schreckenberg. Long Range Diffusion in Ultrametric Spaces. *Zeitschrift für Physik B: Condensed Matter*, 60:483–488, Jul 1985.
- [81] C. P. Bachas and B. A. Huberman. Complexity and the Relaxation of Hierarchical Structures. *Physical Review Letter*, 57(16):1965–1969, Oct 1986. doi:

- 10.1103/PhysRevLett.57.1965. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.57.1965>.
- [82] P. Sibani. Anomalous diffusion and low-temperature spin-glass susceptibility. *Physical Review B*, 35(16):8572–8578, Jun 1987. doi: 10.1103/PhysRevB.35.8572. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.35.8572>.
- [83] D. Stauffer and A. Aharony. *Perkolationstheorie*. VCH, 1995.
- [84] R. Hentschke. *Statistische Mechanik*. WILEY-VCH, 2004.
- [85] R. Rammal, C. Tannous, P. Breton, and A.-M. S. Tremblay. Flicker (1/f) noise in percolation networks: A new hierarchy of exponents. *Physical Review Letters*, 54:1718–1721, April 1985. doi: 10.1103/PhysRevLett.54.1718.
- [86] A. Bunde and J. W. Kantelhardt. *Diffusion in Condensed Matter - Methods, Materials, Models*, chapter Diffusion and conduction in percolation systems - Theory and Applications, pages 895 – 914. Number 2. Springer Verlag Berlin, 2005.
- [87] D. J. Bergman and S. Stroud. Physical Properties of Macroscopically Inhomogeneous Media. *Solid State Physics*, 46:147–269, 1992. URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0081-1947\(08\)60398-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0081-1947(08)60398-7).
- [88] Jens Brandenburg. *Fluktuationsspektroskopie an organischen Ladungstransfersalzen*. PhD thesis, Johann Wolfgang Goethe-Universität, 2010. URL <http://publikationen.ub.uni-frankfurt.de/frontdoor/index/index/docId/11027>.
- [89] R. Rommel. *Dynamische Transport- und Ordnungsphänomene niedrigdimensionaler organischer Ladungstransfersalze*. PhD thesis, J. W. Goethe Universität Frankfurt, 2013.
- [90] *SR 554 Transformer Amplifier Manual*, 1999.
- [91] J. H. Scofield. AC method for measuring low-frequency resistance fluctuation spectra. *Review of Scientific Instruments*, 58(6):985–993, 1987. doi: 10.1063/1.1139587. URL <http://link.aip.org/link/?RSI/58/985/1>.
- [92] *Model SR785 Dynamic Signal Analyzer*, Dec. 2006.
- [93] Ronald L. Allen and Duncan W. Mills. *Signal Analysis: Time, Frequency, Scale and Structure*. John Wiley & Sons Ltd, 2004.
- [94] Michael Weeks. *Digital Signal Processing Using MATLAB and Wavelets*. Electrical Engineering Series. Infinity Science Press LLC, Hingham, Massachusetts, 2007.
- [95] Thomas Frey and Martin Bossert. *Signal- und Systemtheorie*. Vieweg+Teubner, 2 edition, 2008.

- [96] Uwe Kiencke and Holger Jäkel. *Signale und Systeme*. Oldenbourg Verlag München, 4 edition, 2008.
- [97] Karl-Dirk Kammeyer and Kristian Kroschel. *Digitale Signalverarbeitung*. Vieweg+Teubner, 7 edition, 2007.
- [98] Larry D. Paarmann. *Design and Analysis of Analog Filters: A Signal Processing Perspective*. Kluwer Academic Publishers, 2003.
- [99] Melvin Lax, Wei Cai, and Min Xu. *Random Processes in Physics and Finance*. Oxford University Press, 2006.
- [100] Alfred Mertins. *Signal Analysis: Wavelets, Filter Banks, Time-Frequency Transforms and Applications*. John Wiley & Sons Ltd, 1999.
- [101] Jonas Gomes and Luiz Velho. *From Fourier Analysis to Wavelets*. Instituto de Matemática Pura e Aplicada, IMPA, Rio de Janeiro, Brazil, 1997.
- [102] Hsuen-Chyun Shyu and Yuh-Sien Sun. Construction of a Morlet Wavelet Power Spectrum. *Multidimensional Systems and Signal Processing*, 13: 101–111, 2002. ISSN 0923-6082. URL <http://dx.doi.org/10.1023/A:1013847512432>. 10.1023/A:1013847512432.
- [103] C.R. Mittermayr, B. Lendl, E. Rosenberg, and M. Grasserbauer. The application of the wavelet power spectrum to detect and estimate 1/f noise in the presence of analytical signals. *Analytica Chimica Acta*, 388(3): 303–313, 1999. doi: 10.1016/S0003-2670(99)00083-5. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0003267099000835>.
- [104] J. R. Petta, M. B. Weissman, and Gianfranco Durin. Barkhausen pulse structure in an amorphous ferromagnet: Characterization by high-order spectra. *Physical Review E*, 57:6363–6369, Jun 1998. doi: 10.1103/PhysRevE.57.6363. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.57.6363>.
- [105] Sarah Ottersbach. Master’s thesis, PI - Goethe Universität Frankfurt am Main, 2013.
- [106] E. Dagotto, T. Hotta, and A Moreo. Colossal magnetoresistant materials: the key role of phase separation. *Physics Reports*, 344:1–153, 2001.
- [107] E. Dagotto. Complexity in Strongly Correlated Electronic Systems. *Science*, 309:257, Jul. 2005. doi: 10.1126/science.1107559. URL <http://www.sciencemag.org/content/309/5732/257.full>.
- [108] G. Schell, H. Winter, H. Rietschel, and F. Gompf. Electronic structure and superconductivity in metal hexaborides. *Physical Review B*, 25(3):1589–1599, Feb. 1982. doi: 10.1103/PhysRevB.25.1589. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.25.1589>.

- [109] Masahumi Kohgi, Keitaro Kuwahara, Norio Ogita, Masayuki Udagawa, and Fumitoshi Iga. Study of Phonon Anomalies of Rare Earth Hexaborides  $\text{RB}_6$ . *Journal of the Physical Society of Japan*, 75(8):085003, Aug. 2006. doi: 10.1143/JPSJ.75.085003.
- [110] J. Derr, G. Knebel, D. Braithwaite, B. Salce, J. Flouquet, K. Flachbart, S. Gabáni, and N. Shitsevalova. From unconventional insulating behavior towards conventional magnetism in the intermediate-valence compound  $\text{SmB}_6$ . *Physical Review B*, 77(19):193107, May 2008. doi: 10.1103/PhysRevB.77.193107. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.77.193107>.
- [111] S. von Molnar and P. A. Stampé. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*, volume 5. Wiley, New York, 2007. doi: 10.1002/9780470022184.
- [112] Han Zhang, Jie Tang, Jinshi Yuan, Jun Ma, Norio Shinya, Kiyomi Nakajima, Hideyuki Murakami, Tadakatsu Ohkubo, and Lu-Chang Qin. Nanostructured  $\text{LaB}_6$  Field Emitter with Lowest Apical Work Function. *Nano Letters*, 10(9):3539 – 3544, 2010. doi: 10.1021/nl101752z. URL <http://pubs.acs.org/doi/pdf/10.1021/nl101752z>.
- [113] Joseph R. Brewer, Robert M. Jacobberger, David R. Diercks, and Chin Li Cheung. Rare Earth Hexaboride Nanowires: General Synthetic Design and Analysis Using Atom Probe Tomography. *Chemistry of Materials*, 23(10):2606 – 2610, 2011. doi: 10.1021/cm200258h. URL <http://pubs.acs.org/doi/pdf/10.1021/cm200258h>.
- [114] Z. Fisk, D. C. Johnston, B. Cornut, S. von Molnar, S. Oseroff, and R. Calvo. Magnetic, transport, and thermal properties of ferromagnetic  $\text{EuB}_6$ . *Journal of Applied Physics*, 50:1911–1913, March 1979. doi: 10.1063/1.327162.
- [115] L. Degiorgi, E. Felder, H. R. Ott, J. L. Sarrao, and Z. Fisk. Low-temperature anomalies and ferromagnetism of  $\text{eub}_6$ . *Physical Review Letters*, 79:5134–5137, Dec 1997. doi: 10.1103/PhysRevLett.79.5134. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.79.5134>.
- [116] J. C. Cooley, M. C. Aronson, J. L. Sarrao, and Z. Fisk. High pressures and ferromagnetic order in  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 56:14541–14546, December 1997. doi: 10.1103/PhysRevB.56.14541.
- [117] W. Henggeler, H.-R. Ott, D.P. Young, and Z. Fisk. Magnetic ordering in  $\text{EuB}_6$  investigated by Neutron Diffraction. *Solid State Communications*, 108(12):929 – 932, 1998. doi: 10.1016/S0038-1098(98)00470-0. URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1098\(98\)00470-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1098(98)00470-0).
- [118] R. R. Urbano, P. G. Pagliuso, C. Rettori, S. B. Oseroff, J. L. Sarrao, P. Schlottmann, and Z. Fisk. Magnetic polaron and Fermi surface effects in the spin-flip scattering of  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 70(4):140401, Oct.



2004. doi: 10.1103/PhysRevB.70.140401. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.70.140401>.
- [119] P. Majumdar and P. Littlewood. Magnetoresistance in Mn Pyrochlore: Electrical Transport in a Low Carrier Density Ferromagnet. *Physical Review Letters*, 81:1314–1317, August 1998. doi: 10.1103/PhysRevLett.81.1314.
- [120] Robert B. Griffiths. Nonanalytic Behavior Above the Critical Point in a Random Ising Ferromagnet. *Physical Review Letter*, 23(1):17 – 19, Jul. 1969. doi: 10.1103/PhysRevLett.23.17. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.23.17>.
- [121] M. B. Salamon, P. Lin, and S. H. Chun. Colossal Magnetoresistance is a Griffiths Singularity. *Physical Review Letter*, 88(19):197203, Apr. 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.88.197203. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.197203>.
- [122] J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, P. A. Algarabel, C. Ritter, C. Marquina, J. Blasco, J. García, A. Del Moral, and Z. Arnold. Evidence for magnetic polarons in the magnetoresistive perovskites. *Nature*, 386:256–259, March 1997. doi: 10.1038/386256a0.
- [123] P. Nyhus, S. Yoon, M. Kauffman, S. L. Cooper, Z. Fisk, and J. Sarrao. Spectroscopic study of bound magnetic polaron formation and the metal-semiconductor transition in  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 56:2717–2721, August 1997. doi: 10.1103/PhysRevB.56.2717. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.56.2717>.
- [124] M. L. Brooks, T. Lancaster, S. J. Blundell, W. Hayes, F. L. Pratt, and Z. Fisk. Magnetic phase separation in  $\text{EuB}_6$  detected by muon spin rotation. *Physical Review B*, 70(2):020401, July 2004. doi: 10.1103/PhysRevB.70.020401.
- [125] M Venkatesan. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials - Novel Materials*, volume 4, chapter Ferro- and ferrimagnetic oxides and alloys, Half Metals. John Wiley & Sons, Ltd., Jul. 2007. doi: 10.1002/9780470022184.
- [126] I. I. Mazin. How to Define and Calculate the Degree of Spin Polarization in Ferromagnets. *Physical Review Letter*, 83(7):1427 – 1430, Aug. 1999. doi: 10.1103/PhysRevLett.83.1427. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.83.1427>.
- [127] S. Massidda, A. Continenza, T.M. de Pascale, and R. Monnier. Electronic structure of divalent hexaborides. *Zeitschrift für Physik B*, 102:83 – 89, 1997.
- [128] M. C. Aronson, J. L. Sarrao, Z. Fisk, M. Whitton, and B. L. Brandt. Fermi surface of the ferromagnetic semimetal,  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 59:4720–

- 4724, Feb. 1999. doi: 10.1103/PhysRevB.59.4720. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.59.4720>.
- [129] R. G. Goodrich, N. Harrison, J. J. Vuillemin, A. Teklu, D. W. Hall, Z. Fisk, D. Young, and J. Sarrao. Fermi surface of ferromagnetic  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 58(22):14896 – 14902, Dec. 1998. doi: 10.1103/PhysRevB.58.14896. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.58.14896>.
- [130] J. D. Denlinger, J. A. Clack, J. W. Allen, G.-H. Gweon, D. M. Poirier, C. G. Olson, J. L. Sarrao, A. D. Bianchi, and Z. Fisk. Bulk Band Gaps in Divalent Hexaborides. *Physical Review Letter*, 89(15):157601, 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.89.157601. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.89.157601>.
- [131] J. Kuneš and W. E. Pickett. Kondo and anti-Kondo coupling to local moments in  $\text{EuB}_6$ . *Physical Review B*, 69(9):165111, Apr. 2004. doi: 10.1103/PhysRevB.69.165111. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.69.165111>.
- [132] M. Kreissl and W. Nolting. Electronic properties of  $\text{EuB}_6$  in the ferromagnetic regime: Half-metal versus semiconductor. *Physical Review B*, 72(24):245117, 2005. doi: 10.1103/PhysRevB.72.245117. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.72.245117>.
- [133] S. von Molnar and S. Methfessel. Giant Negative Magnetoresistance in Ferromagnetic  $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Se}$ . *Journal of Applied Physics*, 38:959–964, March 1967. doi: 10.1063/1.1709702.
- [134] T. Kasuya and A. Yanase. Anomalous Transport Phenomena in Eu-Chalcogenide Alloys. *Reviews of Modern Physics*, 40:684–696, October 1968. doi: 10.1103/RevModPhys.40.684.
- [135] Adam C. Durst, R. N. Bhatt, and P. A. Wolff. Bound magnetic polaron interactions in insulating doped diluted magnetic semiconductors. *Physical Review B*, 65:235205, Jun. 2002. doi: 10.1103/PhysRevB.65.235205. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.65.235205>.
- [136] A. Kaminski and S. Das Sarma. Polaron Percolation in Diluted Magnetic Semiconductors. *Physical Review Letter*, 88:247202, Mai 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.88.247202. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.247202>.
- [137] S. von Molnár. Magnetotransport in magnetic semiconductors and possible applications. *Sensors and Actuators, A*, 91:161–165, 2001.
- [138] S. von Molnár and P. A. Stampé. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials - Spintronics and Magnetoelectronics*, volume 5, chapter Exotic Materials, Magnetic Polarons. John Wiley & Sons, Ltd., Jul. 2007. doi: 10.1002/9780470022184.

- [139] T. Dietl and J. Spałek. Effect of Fluctuations of Magnetization on the Bound Magnetic Polaron: Comparison with Experiment. *Physical Review Letters*, 48:355–358, February 1982. doi: 10.1103/PhysRevLett.48.355.
- [140] D. Heimann, P. A. Wolff, and J. Warnock. Spin-flip Raman scattering, bound magnetic polaron, and fluctuations in (Cd,Mn)Se. *Physical Review B*, 27:4848–4860, April 1983. doi: 10.1103/PhysRevB.27.4848. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.27.4848>.
- [141] C. Zener. Interaction between the d-Shells in the Transition Metals. II. Ferromagnetic Compounds of Manganese with Perovskite Structure. *Physical Review*, 82:403–405, May 1951. doi: 10.1103/PhysRev.82.403.
- [142] P. G. de Gennes. Effects of double exchange in magnetic crystals. *Physical Review*, 118:141 – 154, Apr. 1960. doi: 10.1103/PhysRev.118.141. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.118.141>.
- [143] J. M. D. Coey, M. Viret, and S. von Molnár. Mixed-valence manganites. *Advances in Physics*, 48:167–293, 1999. doi: 10.1080/000187399243455.
- [144] J. Jaroszyński, T. Andrearczyk, G. Karczewski, J. Wróbel, T. Wojtowicz, Dragana Popović, and T. Dietl. Intermediate phase at the metal-insulator boundary in a magnetically doped two-dimensional electron system. *Physical Review B*, 76(4):045322, Jul 2007. doi: 10.1103/PhysRevB.76.045322. URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.76.045322>.
- [145] T. Wolfram and J. Callaway. Exchange Narrowing of d Bands in Ferromagnets. *Physical Review*, 127:1605–1611, September 1962. doi: 10.1103/PhysRev.127.1605.
- [146] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y. Iye. (ga,mn)as: A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Applied Physics Letters*, 69(3):363, 1996. doi: 10.1063/1.118061. URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.118061>.
- [147] M. J. Calderón, L. G. L. Wegener, and P. B. Littlewood. Evaluation of evidence for magnetic polarons in EuB<sub>6</sub>. *Physical Review B*, 70(9):092408, September 2004. doi: 10.1103/PhysRevB.70.092408.
- [148] J. Chatterjee, U. Yu, and B. I. Min. Spin-polaron model: Transport properties of EuB<sub>6</sub>. *Physical Review B*, 69(13):134423, April 2004. doi: 10.1103/PhysRevB.69.134423.
- [149] U. Yu and B. I. Min. Magnetic-phase transition in the magnetic-polaron system studied with the Monte Carlo method: Anomalous specific heat of EuB<sub>6</sub>. *Physical Review B*, 74(9):094413, September 2006. doi: 10.1103/PhysRevB.74.094413.

- [150] C. S. Snow, S. L. Cooper, D. P. Young, Z. Fisk, A. Comment, and J.-P. Ansermet. Magnetic polarons and the metal-semiconductor transitions in (Eu,La)B<sub>6</sub> and EuO: Raman scattering studies. *Physical Review B*, 64(17): 174412, November 2001. doi: 10.1103/PhysRevB.64.174412.
- [151] A. Amyan, P. Das, and J. Müller. Electronic phase separation due to magnetic polaron formation in the semimetallic ferromagnet EuB<sub>6</sub> - A weakly-nonlinear-transport study. *Journal of the Korean Physical Society*, 62(10), 2013.
- [152] S. Süllo, I. Prasad, M. C. Aronson, J. L. Sarrao, Z. Fisk, D. Hristova, A. H. Lacerda, M. F. Hundley, A. Vigliante, and D. Gibbs. Structure and magnetic order of EuB<sub>6</sub>. *Physical Review B*, 57:5860–5869, March 1998. doi: 10.1103/PhysRevB.57.5860.
- [153] Peter Zahn and Ingrid Mertig. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials - Fundamentals and Theory*, volume 1, chapter Theory of Transport and Exchange Phenomena in Layer Systems, Enhanced Magnetoresistance. John Wiley & Sons, Ltd., Jul. 2007. doi: 10.1002/9780470022184.
- [154] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer. Giant negative magnetoresistance in perovskitelike la<sub>2</sub>/3ba<sub>1</sub>/3mnox ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, 71(14):2331–2333, Oct 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.71.2331. URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.2331>.
- [155] H. Li, Y. Xiao, B. Schmitz, J. Persson, W. Schmidt, P. Meuffels, Roth G., and T. Brückel. Possible magnetic-polaron-switched positive and negative magnetoresistance in the GdSi single crystals. *Nature*, 2:750, 2012. doi: DOI:10.1038/srep00750. URL <http://www.nature.com/srep/2012/121019/srep00750/full/srep00750.html>.
- [156] M. Pohlitz. Mikro-Hall-Magnetometrie, Herstellung von GaAs/AlGaAs-Sensoren und magnetische Messungen an EuB<sub>6</sub>. Master’s thesis, PI - Goethe Universität Frankfurt am Main, Jun. 2012.
- [157] T. Zwick. *Grundlage der Hochfrequenztechnik*. Universität Karlsruhe (TH), 2008.
- [158] D. Stauffer. Scaling theory of percolation clusters. *Physics Reports*, 54(1):1–79, 1979. URL [http://ac.els-cdn.com/0370157379900607/1-s2.0-0370157379900607-main.pdf?\\_tid=f96c6b32-75ca-11e2-8400-00000aacb35d&acdnat=1360752720\\_72c313f83c5827ca8b6600181021847a](http://ac.els-cdn.com/0370157379900607/1-s2.0-0370157379900607-main.pdf?_tid=f96c6b32-75ca-11e2-8400-00000aacb35d&acdnat=1360752720_72c313f83c5827ca8b6600181021847a).
- [159] I. Webman, J. Jortner, and M. H. Cohen. Numerical simulation of electrical conductivity in microscopically inhomogeneous materials. *Physical Review*

- B*, 11:2885–2892, Apr. 1975. doi: 10.1103/PhysRevB.11.2885. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.11.2885>.
- [160] I. Webman, J. Jortner, and M. H. Cohen. Critical exponents for percolation conductivity in resistor networks. *Physical Review B*, 16:2593–2596, Sep. 1977. doi: 10.1103/PhysRevB.16.2593. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.16.2593>.
- [161] Yi Song, Tae Won Noh, Sung-Ik Lee, and James R. Gaines. Experimental study of the three-dimensional ac conductivity and dielectric constant of a conductor-insulator composite near the percolation threshold. *Physical Review B*, 33(2):904–908, Jan 1986. doi: 10.1103/PhysRevB.33.904. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.33.904>.
- [162] Song, Yi and Lee, Sung-Ik and Gaines, James R. ac conduction and 1/f noise in a Cr-film lattice-percolation system. *Physical Review B*, 46(1):14–20, Jul. 1992. doi: 10.1103/PhysRevB.46.14. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.46.14>.
- [163] Yuval Gefen, Amnon Aharony, and Shlomo Alexander. Anomalous Diffusion on Percolating Clusters. *Physical Review Letter*, 50:77–80, Jan. 1983. doi: 10.1103/PhysRevLett.50.77. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.50.77>.
- [164] H. Martinho, C. Rettori, G. M. Dalphian, J. L. F. da Silva, Z. Fisk, and S. B. Oseroff. Evidence for a subtle structural symmetry breaking in  $\text{EuB}_6$ . *J. Phys.: Condens. Matter*, 21:456007, 2009. doi: doi:10.1088/0953-8984/21/45/456007.
- [165] D. J. Bergman. Nonlinear behavior and 1/f noise near a conductivity threshold: Effects of local microgeometry. *Physical Review B*, 39:4598–4609, March 1989. doi: 10.1103/PhysRevB.39.4598.
- [166] O. Levy and D. J. Bergman. Critical behavior of the weakly nonlinear conductivity and flicker noise of two-component composites. *Physical Review B*, 50:3652–3660, August 1994. doi: 10.1103/PhysRevB.50.3652.
- [167] J. Z. Sun, L. Krusin-Elbaum, A. Gupta, Gang Xiao, and S. S. P Parkin. Does magnetization in thinfilm manganates suggest the existence of magnetic clusters? *Applied Physics Letters*, 69:1002, 1996. doi: 10.1063/1.117966. URL <http://apl.aip.org/resource/1/APPLAB/v69/i7>.
- [168] Donald S. Bethune, Robert W. Smith, and Y. R. Shen. Sum-frequency generation via a resonant quadrupole transition in sodium. *Physical Review A*, 17(1):277 – 292, Jan. 1978. doi: 10.1103/PhysRevA.17.277. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.17.277>.
- [169] A. L. Burin, B. I. Shklovskii, V. I. Kozub, Y. M. Galperin, and V. Vinokur. Many electron theory of 1/f noise in hopping conductivity. *Physical Review*

- B*, 74(7):075205, 2006. doi: 10.1103/PhysRevB.74.075205. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.74.075205>.
- [170] G. Deville, R. Leturcq, D. LŽHôte, R. Tourbot, C.J. Mellor, and M. Henini. 1/f noise in a dilute GaAs two-dimensional hole system in the insulating phase. *Physica E*, 34:252 – 255, 2006. doi: 10.1016/j.physe.2006.03.142.
- [171] D. Stauffer and A. Aharony. *Introduction to Percolation Theory*. Taylor and Francis, London, revised second edition edition, 1994.
- [172] A.-M. S. Tremblay, S. Feng, and P. Breton. Exponents for 1/f noise, near a continuum percolation threshold. *Physical Review B*, 33:2077–2080, February 1986. doi: 10.1103/PhysRevB.33.2077.
- [173] V. Podzorov, M. Uehara, M. E. Gershenson, T. Y. Koo, and S.-W. Cheong. Giant 1/f noise in perovskite manganites: Evidence of the percolation threshold. *Physical Review B*, 61:3784, February 2000. doi: 10.1103/PhysRevB.61.R3784. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.61.R3784>.
- [174] K. W. Yu and P. M. Hui. Percolation effects in two-component nonlinear composites: Crossover from linear to nonlinear behavior. *Physical Review B*, 50:13327–13335, November 1994. doi: 10.1103/PhysRevB.50.13327.
- [175] P. Das and A. Amyan. in Vorbereitung.
- [176] R. S. Manna and P. Das. In Vorbereitung.
- [177] Pintu Das, Adham Amyan, Jens Brandenburg, Jens Müller, Peng Xiong, Stephan von Molnár, and Zachary Fisk. Magnetically driven electronic phase separation in the semimetallic ferromagnet EuB<sub>6</sub>. *Physical Review B*, 86:184425, Nov. 2012. doi: 10.1103/PhysRevB.86.184425. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.184425>.
- [178] Merlin Pohlit. In Vorbereitung.
- [179] J. I. Gittleman, Y. Goldstein, and S. Bozowski. Magnetic Properties of Granular Nickel Films. *Physical Review B*, 5(9):3609 – 3621, May 1972. doi: 10.1103/PhysRevB.5.3609. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.5.3609>.