



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Festkörperforschung

**Untersuchung der Spindynamik
im Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$
anhand des Zeitzerfalls der
Thermo-Remanenten-Magnetisierung**

von

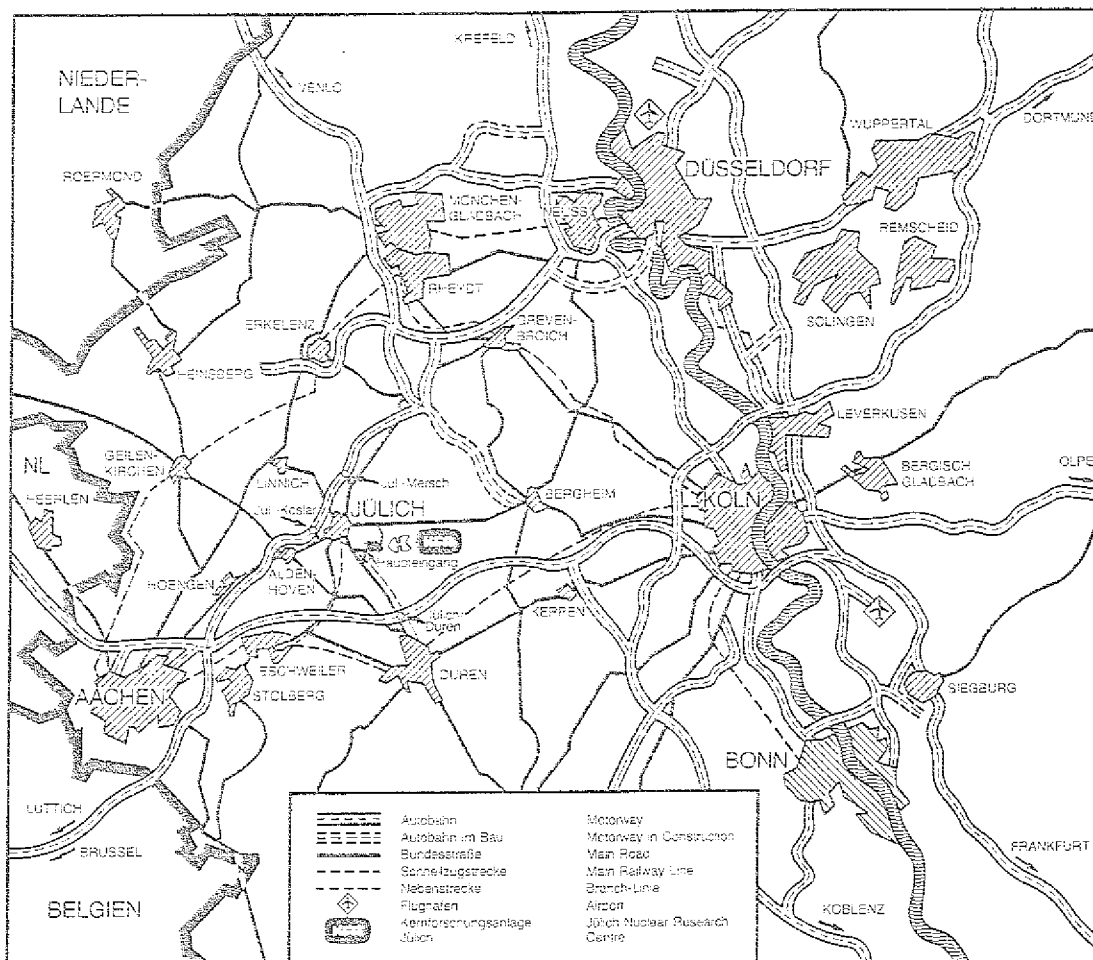
Winfried Brüser

Jüli-2329

Dezember 1989

ISSN 0366-0885

1997, 1998, 1999, 2000, 2001, 2002, 2003, 2004, 2005, 2006, 2007, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013, 2014, 2015, 2016, 2017, 2018, 2019, 2020, 2021, 2022, 2023, 2024, 2025, 2026, 2027, 2028, 2029, 2030, 2031, 2032, 2033, 2034, 2035, 2036, 2037, 2038, 2039, 2040, 2041, 2042, 2043, 2044, 2045, 2046, 2047, 2048, 2049, 2050, 2051, 2052, 2053, 2054, 2055, 2056, 2057, 2058, 2059, 2060, 2061, 2062, 2063, 2064, 2065, 2066, 2067, 2068, 2069, 2070, 2071, 2072, 2073, 2074, 2075, 2076, 2077, 2078, 2079, 2080, 2081, 2082, 2083, 2084, 2085, 2086, 2087, 2088, 2089, 2090, 2091, 2092, 2093, 2094, 2095, 2096, 2097, 2098, 2099, 2100, 2101, 2102, 2103, 2104, 2105, 2106, 2107, 2108, 2109, 2110, 2111, 2112, 2113, 2114, 2115, 2116, 2117, 2118, 2119, 2120, 2121, 2122, 2123, 2124, 2125, 2126, 2127, 2128, 2129, 2130, 2131, 2132, 2133, 2134, 2135, 2136, 2137, 2138, 2139, 2140, 2141, 2142, 2143, 2144, 2145, 2146, 2147, 2148, 2149, 2150, 2151, 2152, 2153, 2154, 2155, 2156, 2157, 2158, 2159, 2160, 2161, 2162, 2163, 2164, 2165, 2166, 2167, 2168, 2169, 2170, 2171, 2172, 2173, 2174, 2175, 2176, 2177, 2178, 2179, 2180, 2181, 2182, 2183, 2184, 2185, 2186, 2187, 2188, 2189, 2190, 2191, 2192, 2193, 2194, 2195, 2196, 2197, 2198, 2199, 2200, 2201, 2202, 2203, 2204, 2205, 2206, 2207, 2208, 2209, 2210, 2211, 2212, 2213, 2214, 2215, 2216, 2217, 2218, 2219, 2220, 2221, 2222, 2223, 2224, 2225, 2226, 2227, 2228, 2229, 2230, 2231, 2232, 2233, 2234, 2235, 2236, 2237, 2238, 2239, 2240, 2241, 2242, 2243, 2244, 2245, 2246, 2247, 2248, 2249, 2250, 2251, 2252, 2253, 2254, 2255, 2256, 2257, 2258, 2259, 2260, 2261, 2262, 2263, 2264, 2265, 2266, 2267, 2268, 2269, 2270, 2271, 2272, 2273, 2274, 2275, 2276, 2277, 2278, 2279, 2280, 2281, 2282, 2283, 2284, 2285, 2286, 2287, 2288, 2289, 2290, 2291, 2292, 2293, 2294, 2295, 2296, 2297, 2298, 2299, 2300, 2301, 2302, 2303, 2304, 2305, 2306, 2307, 2308, 2309, 2310, 2311, 2312, 2313, 2314, 2315, 2316, 2317, 2318, 2319, 2320, 2321, 2322, 2323, 2324, 2325, 2326, 2327, 2328, 2329, 2330, 2331, 2332, 2333, 2334, 2335, 2336, 2337, 2338, 2339, 2340, 2341, 2342, 2343, 2344, 2345, 2346, 2347, 2348, 2349, 2350, 2351, 2352, 2353, 2354, 2355, 2356, 2357, 2358, 2359, 2360, 2361, 2362, 2363, 2364, 2365, 2366, 2367, 2368, 2369, 2370, 2371, 2372, 2373, 2374, 2375, 2376, 2377, 2378, 2379, 2380, 2381, 2382, 2383, 2384, 2385, 2386, 2387, 2388, 2389, 2390, 2391, 2392, 2393, 2394, 2395, 2396, 2397, 2398, 2399, 2400, 2401, 2402, 2403, 2404, 2405, 2406, 2407, 2408, 2409, 2410, 2411, 2412, 2413, 2414, 2415, 2416, 2417, 2418, 2419, 2420, 2421, 2422, 2423, 2424, 2425, 2426, 2427, 2428, 2429, 2430, 2431, 2432, 2433, 2434, 2435, 2436, 2437, 2438, 2439, 2440, 2441, 2442, 2443, 2444, 2445, 2446, 2447, 2448, 2449, 2450, 2451, 2452, 2453, 2454, 2455, 2456, 2457, 2458, 2459, 2460, 2461, 2462, 2463, 2464, 2465, 2466, 2467, 2468, 2469, 2470, 2471, 2472, 2473, 2474, 2475, 2476, 2477, 2478, 2479, 2480, 2481, 2482, 2483, 2484, 2485, 2486, 2487, 2488, 2489, 2490, 2491, 2492, 2493, 2494, 2495, 2496, 2497, 2498, 2499, 2500, 2501, 2502, 2503, 2504, 2505, 2506, 2507, 2508, 2509, 2510, 2511, 2512, 2513, 2514, 2515, 2516, 2517, 2518, 2519, 2520, 2521, 2522, 2523, 2524, 2525, 2526, 2527, 2528, 2529, 2530, 2531, 2532, 2533, 2534, 2535, 2536, 2537, 2538, 2539, 2540, 2541, 2542, 2543, 2544, 2545, 2546, 2547, 2548, 2549, 2550, 2551, 2552, 2553, 2554, 2555, 2556, 2557, 2558, 2559, 2560, 2561, 2562, 2563, 2564, 2565, 2566, 2567, 2568, 2569, 2570, 2571, 2572, 2573, 2574, 2575, 2576, 2577, 2578, 2579, 2580, 2581, 2582, 2583, 2584, 2585, 2586, 2587, 2588, 2589, 2590, 2591, 2592, 2593, 2594, 2595, 2596, 2597, 2598, 2599, 2600, 2601, 2602, 2603, 2604, 2605, 2606, 2607, 2608, 2609, 2610, 2611, 2612, 2613, 2614, 2615, 2616, 2617, 2618, 2619, 2620, 2621, 2622, 2623, 2624, 2625, 2626, 2627, 2628, 2629, 2630, 2631, 2632, 2633, 2634, 2635, 2636, 2637, 2638, 2639, 2640, 2641, 2642, 2643, 2644, 2645, 2646, 2647, 2648, 2649, 2650, 2651, 2652, 2653, 2654, 2655, 2656, 2657, 2658, 2659, 2660, 2661, 2662, 2663, 2664, 2665, 2666, 2667, 2668, 2669, 2670, 2671, 2672, 2673, 2674, 2675, 2676, 2677, 2678, 26



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 2329

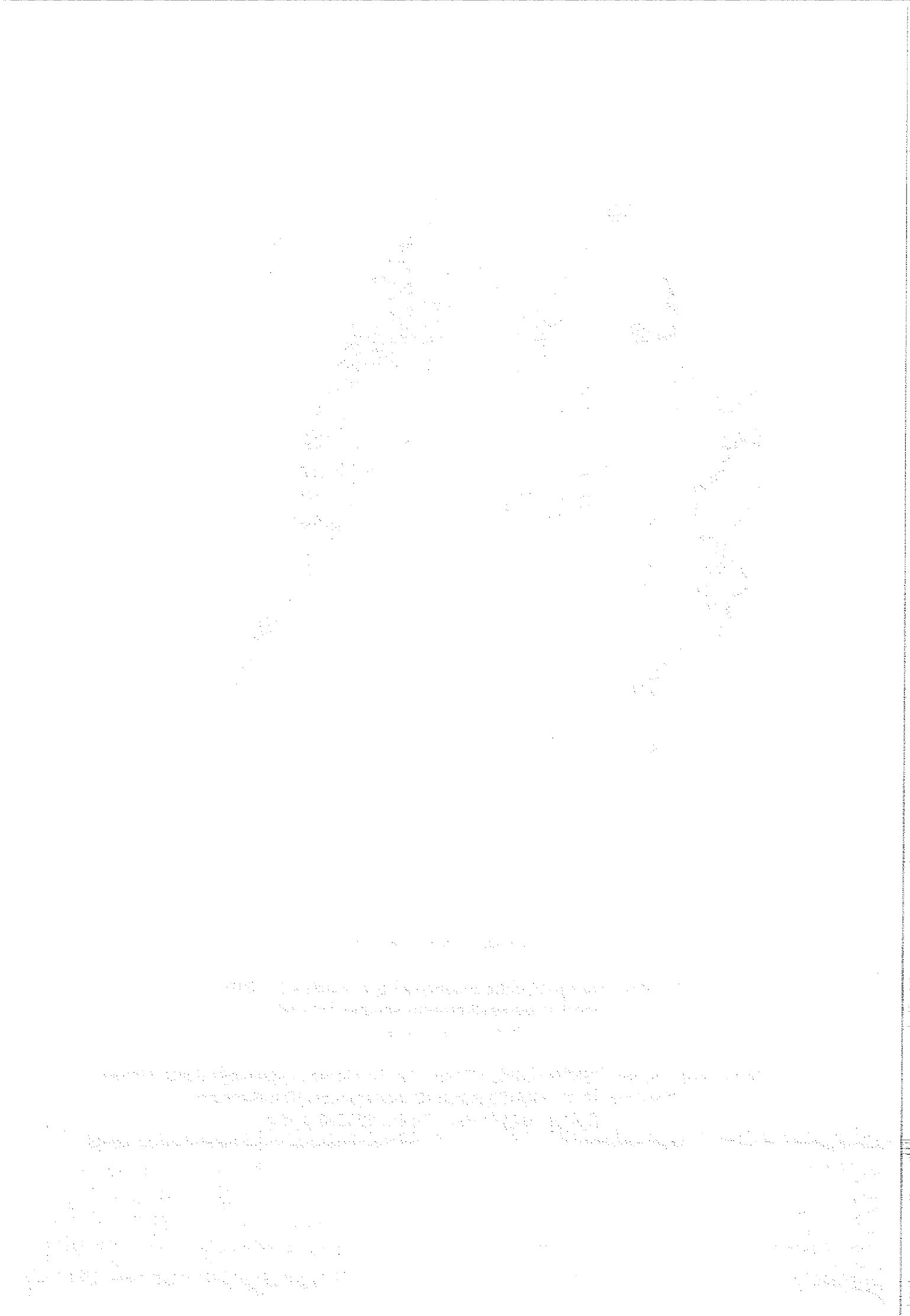
Institut für Festkörperforschung Jülich-2329

D 38 (Diss. Uni. Bonn)

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d



**Untersuchung der Spindynamik
im Spinglasssystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$
anhand des Zeitzerfalls der
Thermo-Remanenten-Magnetisierung**

von

Winfried Brüser

1. Einleitung	1
2. Theoretische und experimentelle Grundlagen	4
2.1 Magnetische Struktur von Spingläsern	4
2.2 Ursachen für Spinglasverhalten	5
2.3 Dynamische Eigenschaften von Spingläsern	10
3. Experimenteller Aufbau	15
SQUID-Anordnung zur Messung von Suszeptibilitäten in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkryostaten	
4. Präparation der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben	18
5. Prinzipieller Ablauf einer TRM-Zerfallsmessung	21
6. Meßergebnisse	24
6.1 Bestimmung der Spinglastemperatur T_f aus statischen Magnetisierungsmessungen	25
6.2 Temperaturabhängigkeit des TRM-Zerfalls	28
6.3 Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall	32
7. Auswertung und Diskussion der Meßergebnisse	40
7.1 Vergleich von TRM-Zerfallsmessungen mit χ_{ac} -Messungen	40
7.2 Einfluß superparamagnetischer Cluster auf die Spindynamik in der Nähe der Perkolationsschwelle $x=x_p=0.136$	46
7.3 "Alterungseffekte" im Spinglaszustand	52
8. Quantitative Beschreibung des TRM-Zerfalls	58
8.1 Gestrecktes Exponentialgesetz (GEG)	60
8.2 Beschreibung des TRM-Zerfalls im – Droplet-Modell von Fisher und Huse – Domänen-Modell von Koper und Hilhorst	63
8.3 Eigener phänomenologischer Ansatz	67
9. Zusammenfassung	79
Literaturverzeichnis	82
Abbildungsverzeichnis	86
Tabellenverzeichnis	90

...
...
...
...

...
...
...
...

...

...

...
...
...
...

...

...
...
...
...
...
...

...

...

...
...
...
...

...

...

...

...

...

...

...

...

...

...

1. Einleitung

1972 beobachteten Cannella und Mydosh eine Spitze in der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität verdünnter AuFe-Legierungen bei tiefen Temperaturen [1]. Diese Spitze markiert den Übergang zu einem bis dahin neuartigen magnetischen Bereich, dem sogenannten 'Spinglas'. Der Name Spinglas deutet schon daraufhin, daß es sich hierbei um einen magnetischen Zustand handelt, in dem die Unordnung, wie man sie z.B. bei Gläsern vorfindet, eine wesentliche Rolle spielt.

Unter einem Spinglas versteht man ein System magnetischer Momente (Spins), die bei tiefen Temperaturen in statistisch verteilte Richtungen 'einfrieren'. Voraussetzung für das Ausbilden dieser ungeordneten magnetischen Struktur ist eine statistische Verteilung der magnetischen Momente im System und die gleichzeitige Anwesenheit sowohl ferro- als auch antiferromagnetischer Kopplungen zwischen den magnetischen Momenten. Beides, Unordnung und Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen, ist unerlässlich für das Auftreten von Spinglasverhalten.

Die Messungen von Cannella und Mydosh waren der Auslöser für eine Vielzahl von Aktivitäten auf dem Gebiet der Spinglasforschung. Bislang sind etwa 4350 Artikel erschienen, die das Wort Spinglas im Titel oder Abstract beinhalten [2]. Dieses große Interesse an Spingläsern ist zum einen auf die sehr interessanten, teilweise aber noch unverstandenen magnetischen und dynamischen Eigenschaften von Spingläsern zurückzuführen; zum anderen spielen Spingläser in den letzten Jahren eine wichtige Rolle als Modellsystem zur Beschreibung komplexer Strukturen (z.B. neuronale Netzwerke [3]). Zur Untersuchung von Spinglasstrukturen werden deshalb neben gängigen experimentellen Methoden — wie ac- und dc-Suszeptibilitätsmessungen, ESR-, μ SR-, NMR- und Mößbauereffekt-Untersuchungen, n-Streumessungen — auch verstärkt Computersimulationen (Monte-Carlo-Simulationen) mit einbezogen. Die Spinglasforschung nimmt damit einen besonderen Stellenwert in der Festkörperphysik ein.

Bei der Untersuchung der Eigenschaften eines Spinglases stößt man schnell auf sehr komplexe Phänomene, die sich vor allem in einer komplizierten Spindynamik äußern. Typisch für Spingläser sind dabei sehr langsame Relaxationsprozesse, die oft bei Messungen die charakteristische Meßzeit übertreffen; Spingläser sind nicht ergodisch (zeitliches Mittel $\neq$ Konfigurationsmittel).

Die langsamen Relaxationen in Spingläsern spiegeln sich in vielen Experimenten wider, z.B. im Zeitzerfall der sogenannten 'Thermo-Remanenten-Magnetisierung' (TRM): Beim Abschalten eines äußeren Magnetfeldes im Spinglaszustand geht die Magnetisierung nicht auf Null zurück, sondern es verbleibt ein remanenter Anteil, der mit der Zeit sehr langsam zerfällt.

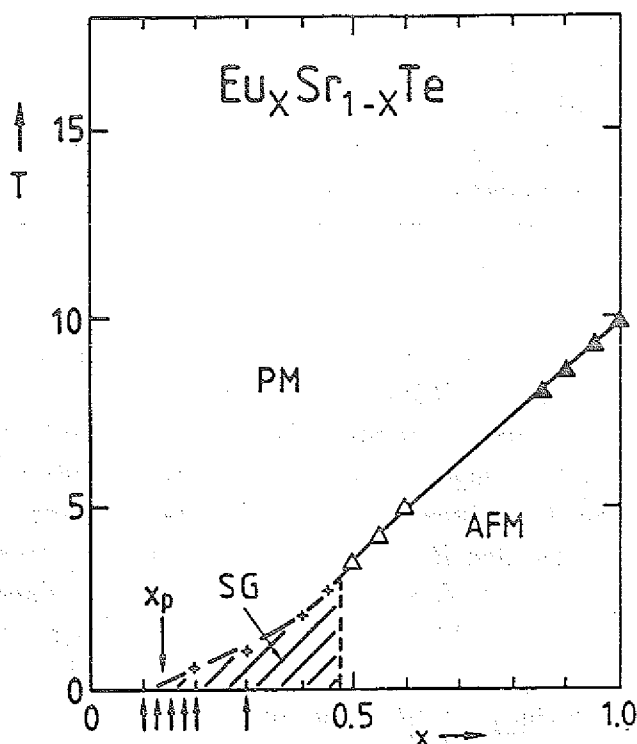
Die TRM-Zerfallsmessungen sind nach den ac-Suszeptibilitätsmessungen mit einer der wichtigsten Meßmethoden zur Untersuchung der Spindynamik in Spingläsern.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden Messungen des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung am Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Konzentrationsbereich $x=0.10$ bis $x=0.30$ vorgestellt. Spinglasverhalten ist an diesem System erstmals 1986 von Börgermann et al. [4] nachgewiesen worden. Ergänzend zu den ac-Suszeptibilitätsmessungen von Börgermann wird hier die Untersuchung der Spindynamik im Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ anhand von TRM-Zerfallsmessungen fortgeführt.

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ist ein kristallines System (NaCl-Struktur), in dem die magnetischen Kopplungen im wesentlichen im ferromagnetischen Austausch zwischen nächsten Eu-Nachbarn und im antiferromagnetischen Austausch zwischen übernächsten Eu-Nachbarn bestehen. Die Durchmischung mit Strontium bewirkt eine statistische Verteilung der konkurrierenden magnetischen Wechselwirkungen über den Kristall und führt dazu, daß $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Konzentrationsbereich $0.13 \leq x \leq 0.50$ Spinglasverhalten zeigt (vgl. Abb.1.1). Oberhalb $x \approx 0.50$ überwiegt im Mittel die antiferromagnetische Kopplung; $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ordnet hier bei tiefen Temperaturen antiferromagnetisch. Unterhalb $x \approx 0.13$ reicht die Anzahl magnetischer Momente nicht mehr aus, um über nur nächste und übernächste Nachbarwechselwirkung ein Netzwerk magnetischer Kopplungen über den gesamten Kristall aufzubauen. Hier erwartet man bei tiefen Temperaturen superparamagnetisches Verhalten. Den Übergang von superparamagnetischem Bereich zu Spinglasbereich bezeichnet man als Perkolationschwelle x_p .

Abb.1.1:

Magnetisches Phasendiagramm von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ [5]. — PM: Paramagnet, AFM: Antiferromagnet, SG: Spinglas, x_p : Perkolationschwelle ($x_p=0.136$ [6]). Die Pfeile markieren die Konzentrationen der hier untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ Proben.



Der Schwerpunkt der Messungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ liegt im wesentlichen auf drei Punkten:

1. Zunächst wird untersucht, ob und wie sich der Einfluß der Perkolation auf die Spindynamik im TRM-Zerfall bemerkbar macht. Hierfür werden Messungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben mit Eu-Konzentrationen x , die in der Nähe der Perkolationsschwelle $x_p=0.136$ liegen, vorgestellt. In diesem Zusammenhang wird auch ein Vergleich der TRM-Zerfallsmessungen mit χ_{ac} -Messungen von Börgermann an diesem System vorgenommen.
2. Ein weiterer Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit dem Einfluß der sog. Wartezeit auf den TRM-Zerfall. Mit Wartezeit wird die Zeit t_w bezeichnet, die das System vor der Messung im Spinglaszustand verbracht hat. I.a. zeigt der Zerfall der TRM eine Abhängigkeit von t_w . Solche Alterungseffekte sind an Spingläsern erstmals 1983 von Lundgren et al. [7] beobachtet worden und sollen hier an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben vorgestellt und diskutiert werden.
3. Schließlich werden die Messungen mit aktuellen TRM-Zerfallsgesetzen verglichen, um eine geeignete quantitative Beschreibung des TRM-Zerfalls zu finden. Der TRM-Zerfall folgt keinem einfachen exponentiellen Zerfallsgesetz. Das in den letzten Jahren wohl am häufigsten erwähnte Gesetz zur Beschreibung des TRM-Zerfalls ist ein sog. gestrecktes Exponentialgesetz bzw. Kohlrausch-Gesetz.

Da die in Messungen an Spingläsern auftretenden Magnetisierungen bzw. Magnetisierungsänderungen i.a. sehr gering sind und die Spinglastemperaturen der hier untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben im mK-Bereich liegen, wurden die Messungen mit einer SQUID-Anordnung in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkryostaten vorgenommen.

Bemerkung zum Einheitensystem:

Für die Angabe des magnetischen Feldes ist in dieser Arbeit die Einheit Oersted verwendet worden (Gauß'sches cgs-System). Sind quantitative Berechnungen erforderlich, so werden die Einheiten und Formeln aber i.a. im SI-System angegeben.

2. Theoretische und experimentelle Grundlagen

2.1 Magnetische Struktur von Spingläsern

Um sich die magnetische Struktur von Spingläsern besser vorstellen zu können, ist es hilfreich, sich die Unterschiede zum Ferro- bzw. Antiferromagneten (FM, AFM) und zum Paramagneten (PM) vor Augen zu halten:

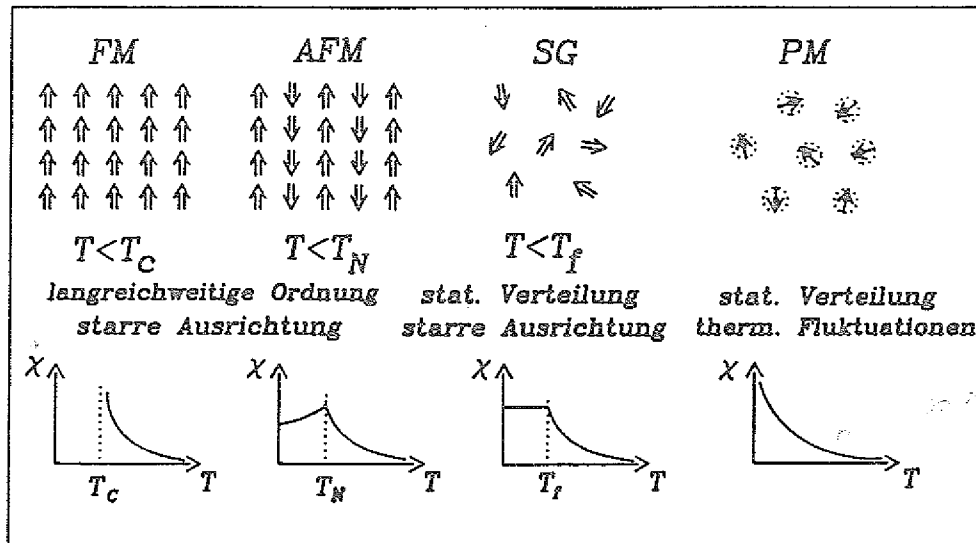


Abb.2.1:

Spinnstellungen von Ferromagnet (FM), Antiferromagnet (AFM), Spinglas (SG) und Paramagnet (PM) im Vergleich.

Während sich bei den herkömmlichen Arten der magnetischen Ordnung (FM, AFM) die magnetischen Momente unterhalb der Curie- bzw. Néeltemperatur $T_{C,N}$ parallel bzw. antiparallel zueinander stellen, 'frieren' die magnetischen Momente im Spinglas bei der sogenannten Einfriertemperatur T_f in statistisch verteilte Richtungen ein. Die Spinnstellungen im Spinglas sind wie beim Ferro- bzw. Antiferromagneten starr; der Unterschied liegt in der fehlenden langreichweitigen Ordnung in den Spinnstellungen im Spinglas. Deshalb sieht man beim Spinglas in der n-Streuung z.B. auch keine magnetischen Bragg-Reflexe [8].

Man kann sich den Spinglaszustand auch anschaulich als die Momentaufnahme eines Paramagneten vorstellen. Der Unterschied wird hier nur in den zeitlichen Korrelationen erkennbar; denn im Gegensatz zum Spinglas erscheinen die magnetischen Momente im Paramagneten infolge thermischer Fluktuationen völlig unkorreliert.

Wie es zu der ungeordneten Spinstruktur im Spinglas kommt, soll im folgenden Abschnitt am Beispiel der verdünnten Eu-Monochalkogenide $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{X}$ ($\text{X}=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) erläutert werden.

2.2 Ursachen für Spinglasverhalten

Spinglasverhalten wurde erstmals an verdünnten AuFe-Legierungen beobachtet [1] und konnte inzwischen an vielen anderen Systemen nachgewiesen werden. Dabei zeigte sich, daß Spinglasverhalten recht universell ist; man findet es in kristallinen, amorphen, metallischen, halbleitenden und isolierenden Systemen. Es ist dazu weder eine spezielle räumliche noch elektronische Struktur notwendig. Dennoch sind es ganz allgemeine Prinzipien, die zum Spinglasverhalten führen.

Die Ursachen für Spinglasverhalten liegen in der Unordnung und in der Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen.

Die Unordnung ist eine räumliche Unordnung und beruht auf der statistischen Verteilung der magnetischen Momente in der Probe.

Die Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen ist bedingt durch die Anwesenheit sowohl ferromagnetischer als auch antiferromagnetischer Kopplungen zwischen den magnetischen Momenten im System. Die magnetischen Momente können aber nicht all diesen Kopplungen gleichzeitig gerecht werden, sie müssen zwischen verschiedenen Spinkonfigurationen entscheiden. Diesen Sachverhalt bezeichnet man auch mit 'Frustration' [9].

Wie das Wechselspiel zwischen Unordnung und Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen zu Spinglasverhalten führt, läßt sich relativ anschaulich für die verdünnten Eu-Monochalkogenide $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{X}$ ($\text{X}=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) erklären:

Die Eu-Monochalkogenide EuX ($\text{X}=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) bilden Modellsysteme für den magnetischen Austausch in Heisenberg-Systemen. Sie sind magnetische Halbleiter und ordnen in der NaCl-Struktur. Der Grundzustand der Eu^{2+} -Ionen ist ein $4f^7-8S_{7/2}$ -Zustand und besitzt damit nach den Hund'schen Regeln ein magnetisches Moment von

$$\mu_{\text{Eu}^{2+}} = g \mu_B S = 7\mu_B \quad (2.1)$$

Der Austauschoperator für die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten der Eu-Atome lautet:

$$H_{ex} = -2 \sum_{i < j} J_{ij} \vec{S}_i \vec{S}_j \quad (2.2)$$

Faßt man die Umgebung eines jeden Spins $\vec{S}_i$ in Kugelschalen vom Radius R_i zusammen, so läßt sich der Austauschoperator (2.2) wegen der im S-Zustand iso-

tropen Austauschkopplung auch folgendermassen schreiben:

$$H_{ex} = -2 \sum_i \vec{S}_i \left(\sum_r J_r \left(\sum_{j=1}^{Z_r} \vec{S}_j \right) \right) \quad (2.3)$$

wobei Z_r die Anzahl der Eu-Atome in der r -ten Schale und J_r den dazugehörigen Austauschparameter angibt.

Inelastische Neutronenstreuexperimente an EuS [10] zeigen, daß sich die Austauschkopplung im wesentlichen auf nächste und übernächste Nachbarwechselwirkung ($r=1,2$) beschränkt. Für $r>3$ ist J_r vernachlässigbar klein.

Abb.2.2 zeigt die in [10] unter der Annahme nur nächster und übernächster Nachbarwechselwirkung ermittelten effektiven Austauschparameter J_1 und J_2 für EuX ($X=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) in Abhängigkeit vom gegenseitigen Eu-Abstand R_r . Man erkennt, daß bei EuS, EuSe und EuTe sowohl ferromagnetische ($J_1 > 0$) als auch antiferromagnetische Kopplungen ($J_2 < 0$) im Kristall existieren. Bei EuO gibt es nur die ferromagnetische Kopplung ($J_1 > 0, J_2 > 0$).

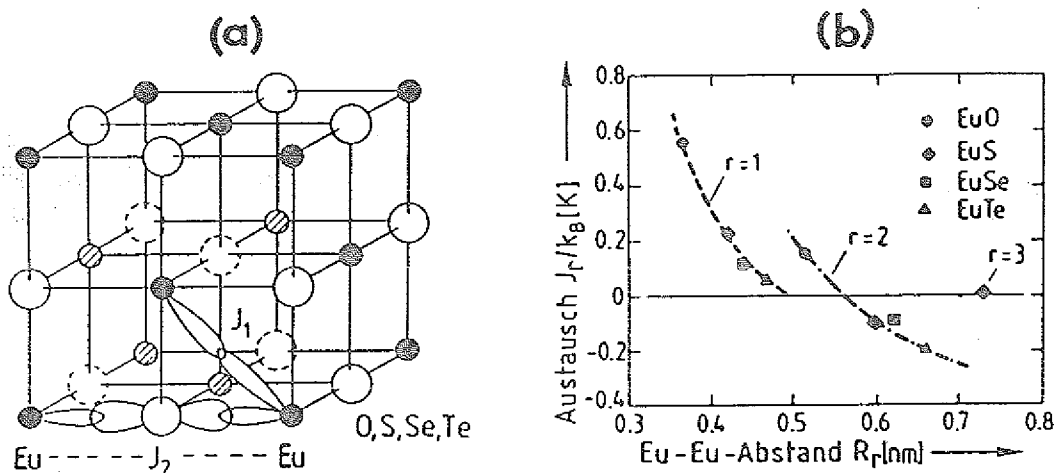


Abb.2.2 :

(a) Magnetische Austauschwechselwirkungen zwischen den Eu-Atomen in EuX -Verbindungen ($X=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) (nach [11]). J_1 : Eu-Eu-Austausch zwischen nächsten Eu-Nachbarn, J_2 : indirekter Superaustausch über die Anionen X zu übernächsten Eu-Nachbarn. — (b) Abhängigkeit der Austauschparameter J_r vom gegenseitigen Eu-Eu-Abstand R_r ($r=1,2$) [10].

Die ferromagnetische Wechselwirkung zwischen nächsten Eu-Nachbarn entlang den $\langle 110 \rangle$ -Richtungen im Kristall läßt sich durch einen virtuellen Übergang des 4f-Elektrons in einen angeregten 5d- t_{2g} -Zustand des nächsten Eu-Nachbarn beschreiben. Der Austausch zwischen den übernächsten Eu-Nachbarn entlang den $\langle 100 \rangle$ -Richtungen beruht auf indirektem Superaustausch; indirekt deshalb, da die für den Austausch erforderliche Polarisation des p-Orbitals der nichtmagnetischen Anionen O^{2-} , S^{2-} , Se^{2-} bzw. Te^{2-} nicht direkt über einen f-p-Austausch erfolgt sondern indirekt über einen antibindenden 5d- e_g -Zustand des Eu-Atoms. Die Stärke des Superaustausches hängt vom Überlapp der beteiligten Atomwellenfunktionen und so vom gegenseitigen Abstand R_r der Eu-Atome ab. Der Eu-Abstand nimmt mit wachsendem Ionenradius vom Sauerstoff zum Tellur hin zu. Der Austauschparameter J_1 nimmt dann ab. Für die Stärke von J_2 spielt zudem der kovalente Bindungscharakter der Anionen eine entscheidende Rolle. Dieser nimmt zum Tellur hin zu.

Eine genaue Beschreibung der Austauschmechanismen in Eu-Monochalkogeniden findet man bei Kasuya [11] und Wachter [12].

Für das Ordnungsverhalten der Verbindungen EuX ($X=O, S, Se, Te$) ist das Vorzeichen von J_1 und J_2 und das Verhältnis J_2/J_1 entscheidend.

Für alle vier betrachteten EuX -Verbindungen ist $J_1 > 0$, d.h. die Kopplung zwischen nächsten Eu-Nachbarn ist ferromagnetisch.

Bei EuO ist auch $J_2 > 0$, EuO kann also nur ferromagnetisch ordnen.

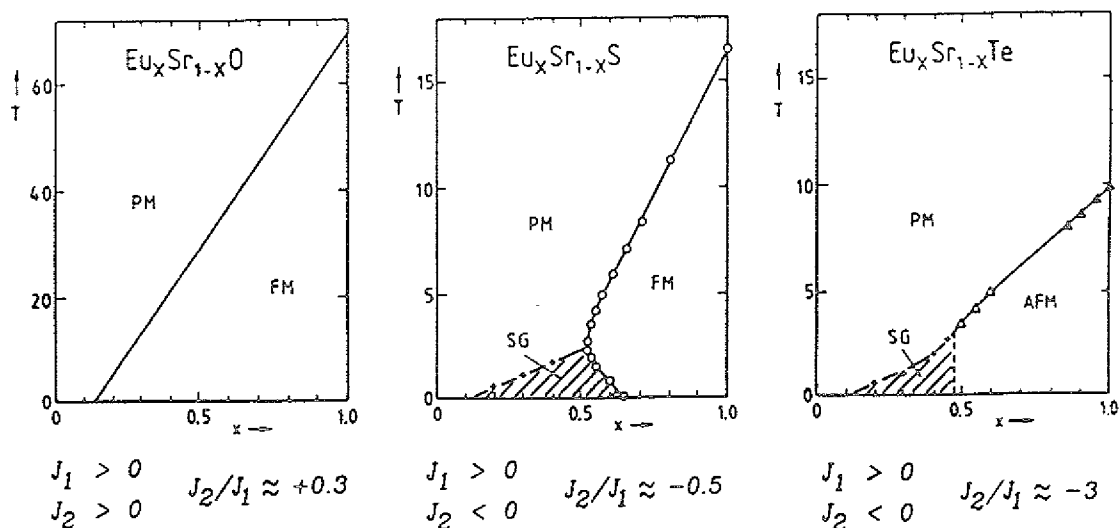
Bei EuS , $EuSe$ und $EuTe$ treten wegen $J_2 < 0$ die ferro- und antiferromagnetische Kopplung in Konkurrenz ($J_2/J_1 < 0$). Wie sich hier die magnetischen Momente einstellen, hängt nun davon ab, welche Kopplung im Mittel stärker ist, die ferromagnetische zu den zwölf nächsten Eu-Nachbarn oder die antiferromagnetische zu den sechs übernächsten Eu-Nachbarn.

Beim EuS überwiegt die ferromagnetische Kopplung, beim $EuTe$ die antiferromagnetische:

$$J_2/J_1(EuS) \approx -0.5 \quad J_2/J_1(EuTe) \approx -3 \quad [13] \quad (2.4)$$

EuS ordnet also ferromagnetisch, $EuTe$ antiferromagnetisch. Für $EuSe$ mit $J_2/J_1 \approx -1$ findet man metamagnetisches Verhalten.

Die Konkurrenz magnetischer Wechselwirkung ist aber allein noch nicht ausreichend für das Auftreten von Spinglasverhalten. Erst zusätzliche Unordnung im magnetischen System bewirkt den Übergang in die Spinglasstruktur. Die Unordnung erreicht man hier, indem man in den EuX -Verbindungen die Eu^{2+} -Ionen statistisch durch nichtmagnetische Sr^{2+} -Ionen ersetzt.

**Abb.2.3:**

Magnetische Phasendiagramme von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ (schematisch [14]), $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ [8] und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ [5]. — PM: Paramagnet, FM: Ferromagnet, AFM: Antiferromagnet, SG: Spinglas.

Durch die Durchmischung mit Sr werden im wesentlichen zwei Dinge bewirkt. Erstens wird mit wachsender Sr-Konzentration die Anzahl der Eu-Atome auf nächsten und übernächsten Nachbarplätzen im Mittel abnehmen, was zu einer Verminderung der Ordnungstemperatur führt. Das zweite ist, daß die Umgebung nicht mehr für alle Eu-Atome gleich aussieht; vielmehr variiert diese statistisch über den Kristall. Die damit verbundenen statistischen Fluktuationen der Austauschfelder über den Kristall führen dazu, daß bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ die langreichweitige magnetische Ordnung schon bei einer Sr-Durchmischung von etwa $(1-x)=0.50$ zusammenbricht und sich die magnetischen Momente in statistisch verteilte Richtungen stellen. Das System geht über in den Spinglaszustand. Der Spinglasbereich erstreckt sich bis etwa $x=0.13$. Unterhalb dieser Schwelle reicht die Zahl der Eu-Atome nicht mehr aus, um über nur nächste und übernächste Nachbarwechselwirkung ein Netzwerk magnetischer Kopplungen über den gesamten Kristall aufzubauen. Die magnetischen Momente bilden hier bei tiefen Temperaturen eine Vielzahl unterschiedlich großer superparamagnetischer Cluster. Den Übergang von Spinglas zu Superparamagnet bezeichnet man auch als Perkolationschwelle x_p . Der theoretisch ermittelte Wert für x_p liegt bei 0.136 [6] und ist für $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ experimentell relativ gut bestätigt [8].

Erwähnt werden soll noch, daß bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ im Konzentrationsbereich $0.50 \leq x \leq 0.65$ sog. 'reentrant'-Verhalten beobachtet wird (reentrant: Wiedereintritt). In diesem Bereich gelangt man durch Temperaturverminderung zunächst

vom ungeordneten paramagnetischen Zustand in den geordneten ferromagnetischen Zustand und dann wieder in den ungeordneten Spinglaszustand. Theoretische Untersuchungen von Wolff et al. [15] an einem d-dimensionales Ising-System mit statistisch verteilten konkurrierenden nächsten Nachbarwechselwirkungen ($|J_{\text{afm}}| < J_{\text{fm}}$) liefern für diese Systeme ebenfalls reentrant-Verhalten. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ konnte bislang kein reentrant-Verhalten beobachtet werden.

Spinglasverhalten wird nicht nur an verdünnten Eu-Monochalkogeniden beobachtet; Spinglasverhalten findet man auch in ganz anderen magnetischen Systemen. Dabei ist es für das Auftreten von Spinglasverhalten unerheblich, worauf die Unordnung und die Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen beruhen. Bei dem metallischen System $\text{Au}_{1-x}\text{Fe}_x$ z.B. ist die langreichweitige RKKY-Wechselwirkung wegen ihres mit dem Abstand oszillierenden Vorzeichens Ursache für konkurrierende magnetische Wechselwirkungen.

Bei dem halbleitenden $\text{Gd}_x\text{Al}_{1-x}$ sorgt die Amorphizität der Verbindung für Unordnung im magnetischen System.

Unordnung und Konkurrenz magnetischer Wechselwirkungen sind stets notwendige Voraussetzungen für das Auftreten von Spinglasverhalten.

2.3 Dynamische Eigenschaften von Spingläsern

Es gibt kein Experiment, das für sich allein genommen ein Spinglas schon als ein solches eindeutig erkennen läßt. Die einzelnen Eigenschaften von Spingläsern finden sich auch in anderen magnetischen Systemen wieder. Erst wenn man verschiedene Meßresultate in Zusammenhang bringen kann, wird eine Klassifizierung möglich.

Auf der anderen Seite gibt es sehr unterschiedliche Spinglassysteme (amorphe, kristalline, metallische, isolierende), die dennoch gemeinsame Eigenschaften besitzen. Typisch für Spingläser sind hierbei vor allem sehr langsame Relaxationsprozesse im Spinglaszustand. Einige Experimente, in denen sich diese dynamischen Spinglaseigenschaften widerspiegeln, sollen im folgenden vorgestellt werden.

a) ac-Suszeptibilitätsmessungen

Die Suszeptibilität stellt die Antwort eines magnetischen Systems auf eine äußere Störung (magnetisches Feld bzw. Feldänderung) dar. Bei ac-Messungen ist diese Störung frequenz- und damit zeitabhängig und beinhaltet somit Informationen über die Spindynamik und über die im System auftretenden Zeiteffekte.

Abb.2.4 zeigt den Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} und der ac-Suszeptibilität χ_{ac} von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) beim Abkühlen im Feld $H=5\text{Oe}$. Die Spinglastemperatur wird durch die Lage des 'Knicks' im Temperaturverlauf von M_{dc} angegeben. Es ist $T_f^{dc}=500\text{mK}$.

Die ac-Suszeptibilität zeigt bei T_f^{dc} keine Auffälligkeit im Temperaturverlauf. χ' durchläuft allerdings oberhalb T_f^{dc} bei etwa 550mK ein Maximum. Bei derselben Temperatur zeigt der Imaginärteil der ac-Suszeptibilität χ'' einen starken Anstieg; χ'' fällt dann für abnehmende Temperaturen wieder langsam ab.

Während χ' über alle Relaxationsprozesse im System integriert, die schneller als die Meßzeit $t = \frac{1}{2\pi\nu}$ sind, gibt χ'' die spektrale Verteilung der Relaxationsprozesse bei $t = \frac{1}{2\pi\nu}$ wieder (ν : Frequenz des angelegten Wechselfeldes). Der Temperaturverlauf von χ'' zeigt also, daß bei Annäherung an 550mK plötzlich Relaxationen im System auftreten mit Relaxationszeiten, die in die Größenordnung der Meßzeit kommen. Diese langsamen Relaxationen rühren von Korrelationen im System her bedingt durch das Einfrieren der magnetischen Momente in die Spinglasstruktur. Das Einfrieren der magnetischen Momente vermindert die Suszeptibilität und führt

zu dem Maximum im χ' -Verlauf. Die Lage des Maximums im χ' -Verlauf wird deshalb auch oft zur Definition einer Spinglastemperatur $T_f^{ac}(\nu)$ benutzt. Für $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) bestimmt sich die Spinglastemperatur aus ac-Messungen zu $T_f^{ac}(\nu=16\text{Hz})=550\text{mK}$. Daß T_f^{ac} über T_f^{dc} liegt, ist dabei in Zusammenhang mit folgendem für Spingläser typischen Verhalten zu sehen:

T_f^{ac} verschiebt sich mit wachsender Frequenz ν des angelegten Wechselfeldes zu höheren Temperaturen. Diese Frequenzabhängigkeit von T_f^{ac} wurde erstmals von Maletta [8] [16] an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ ($x=0.15$) beobachtet. Die Verschiebung von T_f wird dabei häufig auf der Grundlage eines breiten Relaxationszeitspektrums im Spinglas diskutiert. Anzeichen für ein breites Relaxationszeitspektrum ergeben sich aus verschiedenen experimentellen Beobachtungen (vgl. z.B. [17] [18]). Wenn im folgenden von der Spinglastemperatur T_f die Rede sein wird, so ist, wenn nicht näher bezeichnet, damit immer die aus statischen Magnetisierungsmessungen ermittelte Spinglastemperatur T_f^{dc} gemeint.

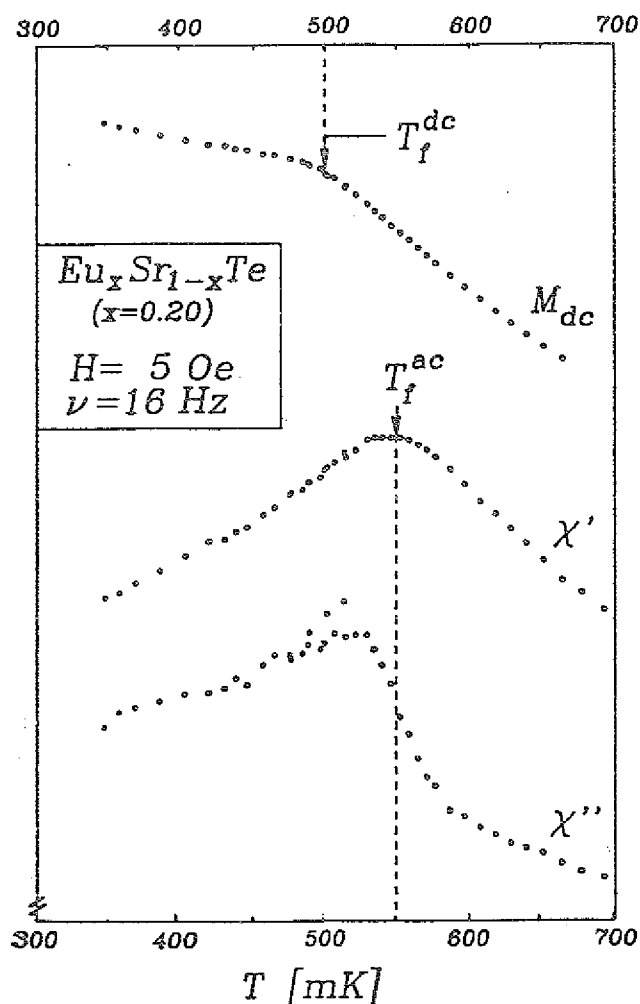


Abb.2.4:

Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} und Real- und Imaginärteil der ac-Suszeptibilität χ_{ac} von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) beim Abkühlen im Feld $H=5\text{ Oe}$.

b) Unterschied feldgekühlter (FC) und nullfeldgekühlter (ZFC) Magnetisierung im Spinglaszustand

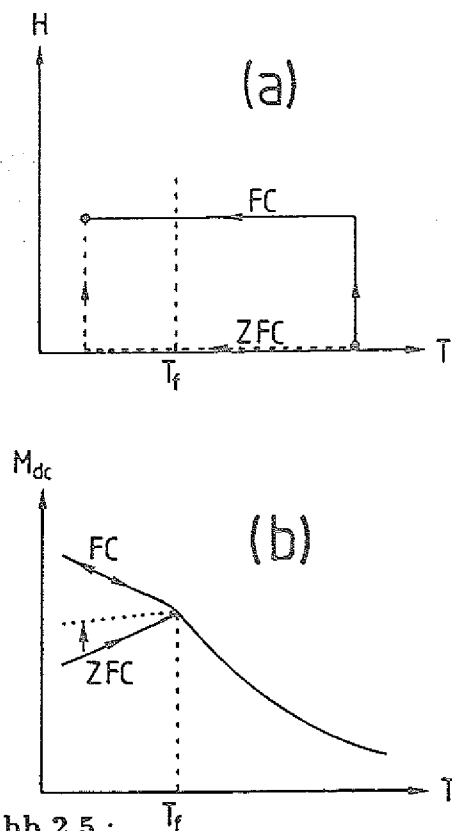


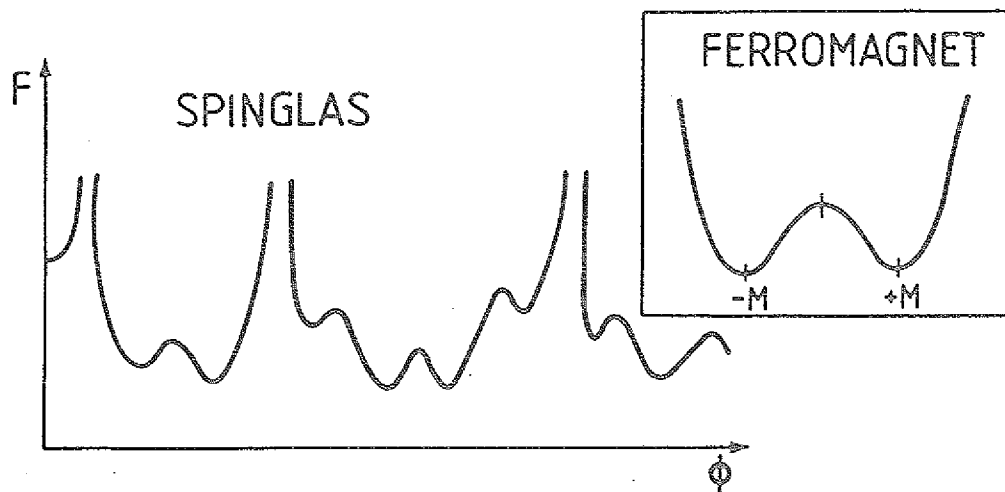
Abb. 2.5 :

Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} für Field Cooling (FC) und Zero Field Cooling (ZFC) (schematisch).

Die Magnetisierung im Spinglaszustand zeigt eine Abhängigkeit von der magnetischen Vorgeschichte. So besteht bei der Messung der statischen Magnetisierung M_{dc} im Spinglasbereich ein Unterschied, ob man das Feld H oberhalb T_f anlegt, dann auf Temperaturen $T < T_f$ abkühlt und die Messung vornimmt (durchgezogene Linie in Abb. 2.5a), oder ob man das Feld erst bei $T < T_f$ anlegt (gestrichelte Linie in Abb. 2.5a). Im ersten Fall spricht man von Field Cooling (FC), im zweiten von Zero Field Cooling (ZFC). Obwohl die Temperatur und das angelegte Magnetfeld für FC und ZFC übereinstimmen, ist der Wert der dc-Magnetisierung unterschiedlich. Im Spinglasbereich gilt $M_{ZFC} < M_{FC}$, erst oberhalb T_f ist $M_{ZFC} = M_{FC}$.

Die feldgekühlte Magnetisierung zeigt mit der Temperatur einen reversiblen Verlauf während die nullfeldgekühlte Magnetisierung sich irreversibel verhält (vgl. z.B. [19]). Bei der nullfeldgekühlten Magnetisierung wird zudem beobachtet, daß sich M_{ZFC} mit der Zeit ändert und langsam in Richtung M_{FC} bewegt [20].

Als anschauliche Erklärung für diese Irreversibilität und für das Zeitverhalten der ZFC-Magnetisierung kann man sich folgendes Bild vor Augen halten [21]: Aufgrund der Unordnung und der Frustration im Spinglassystem gibt es sehr viele Möglichkeiten, wie sich die magnetischen Momente bei Unterschreiten der Spinglastemperatur T_f ausrichten. In der Heisenbergsumme Gl. (2.2) lassen sich die einzelnen Summanden nicht alle gleichzeitig minimieren. Dies führt zu einer Vielzahl metastabiler Spinkonfigurationen im Spinglaszustand. Die Freie Energie F eines Spinglases besitzt deshalb im Phasenraum eine komplizierte Struktur mit sehr vielen Minima, getrennt durch unterschiedlich hohe (evtl. unendlich hohe) Energie-

**Abb.2.6:**

Schematische Darstellung der Freien Energie F eines Spinglases aufgetragen gegen eine Phasenraumkoordinate Φ , die die Spinkonfiguration beschreibt [21]. — Der Einschub zeigt im Vergleich die Freie Energie für einen Ising-Ferromagneten.

barrieren. (Im Vergleich hierzu besitzt die Freie Energie eines Ising-Ferromagneten nur zwei Minima bei der spontanen Magnetisierung $\vec{M}_s = \pm \frac{1}{N} \sum_i \vec{S}_i$).

Beim Field Cooling, wenn also das Magnetfeld H bereits bei $T > T_f$ angelegt wird, wird sich das System bei Unterschreiten der Spinglastemperatur im tiefsten Minimum der Freien Energie aufhalten (unter der Voraussetzung, daß man langsam genug abkühlt) [22]. Dagegen bleibt beim Zero Field Cooling das System beim Einschalten des Feldes zunächst in einem lokalen Minimum hängen, aus dem es sich wegen der sehr hohen Energiebarrieren mit der zur Verfügung stehenden thermischen Energie nur sehr langsam durch den Phasenraum in Richtung absolutes Minimum bewegen kann.

Dieses Streben zum absoluten Minimum beim Zero Field Cooling äußert sich in oben beschriebenen Zeitverhalten der ZFC-Magnetisierung. Die FC-Magnetisierung ist (nahezu) zeitunabhängig*. Die FC-Magnetisierung läßt sich in obigem Bild als die Gleichgewichtsmagnetisierung auffassen, während die ZFC-Magnetisierung die momentane Magnetisierung wiedergibt.

* Sehr genaue Messungen an AuFe-Legierungen von Lundgren et al. [20] zeigen auch bei MFC eine schwache Zeitabhängigkeit. Hierauf wird in Kap.7.3 noch näher eingegangen.

c) Zeitzerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung

Kühlt man ein Spinglas im Magnetfeld ab und schaltet dann das Feld aus, so sinkt die FC-Magnetisierung nicht auf Null ab, sondern es verbleibt ein remanenter Anteil, der mit der Zeit langsam zerfällt. Die Remanenz direkt nach Abschalten des Feldes beträgt bei den Messungen von Börgermann an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.40$) etwa 6% der feldgeköhlten Magnetisierung vor Abschalten des Feldes [5].

Der Zerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung läßt sich analog zu dem unter b) beschriebenen Zeitverhalten der ZFC-Magnetisierung erklären:

Beim Abschalten des äußeren Magnetfeldes ändert sich die Struktur der Freien Energie im Phasenraum und das absolute Minimum, in dem sich das Spinsystem zuvor befand, verschiebt sich. Das System mit seiner speziellen Spinkonfiguration und den Kopplungen zwischen den magnetischen Momenten ist zu 'träge', um diesem Strukturwandel direkt zu folgen. Es bleibt zunächst in einem lokalen Minimum hängen mit einer von Null verschiedenen Magnetisierung (remanente Magnetisierung). Das Streben zum Gleichgewichtszustand (absolutes Minimum, remanente Magnetisierung gleich Null), das durch kontinuierliches Ändern der Spinkonfiguration erfolgt, macht sich dann in dem langsamen Zerfall der remanenten Magnetisierung bemerkbar.

3. SQUID-Anordnung zur Messung von Suszeptibilitäten in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkryostaten

Die bei Suszeptibilitätsmessungen an Spingläsern auftretenden Magnetisierungen bzw. Magnetisierungsänderungen sind i.a. sehr gering, so daß die Messungen mit sehr empfindlichen Magnetometern vorgenommen werden müssen. Meistens verwendet man hierfür eine auf Flußquantisierung in supraleitenden Kreisen beruhende Anordnung, das sog. SQUID (Superconducting Quantum Interference Device).

Im wesentlichen besteht ein SQUID aus einem supraleitenden Ring oder Zylinder mit einem Bereich schwacher Kopplung (z.B. einem Punktkontakt).

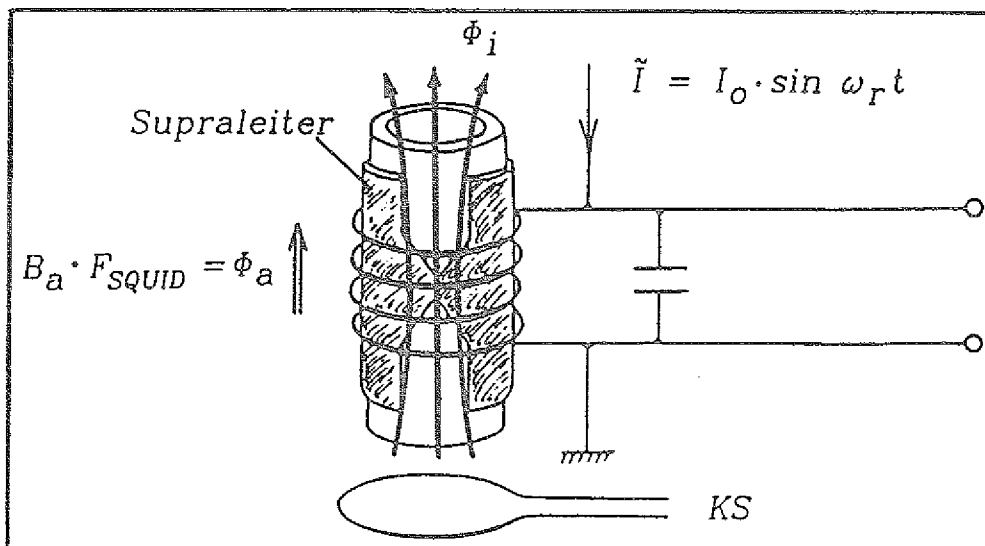


Abb.3.1:

Ankopplung eines SQUID an einen Schwingkreis mit der Resonanzfrequenz ω_r und zusätzlicher Kompensationsspule KS (schematisch [23]).

Der magnetische Fluß Φ_i durch den supraleitenden Kreis ist quantisiert in Einheiten des elementaren Flußquants $\Phi_0 = h/2e = 2 \cdot 10^{-7} \text{ Gauß cm}^2 \text{ (cgs)} = 2 \cdot 10^{-15} \text{ Wb (SI)}$:

$$\Phi_i = n \cdot \Phi_0 \quad (3.1)$$

(Herleitung: vgl. z.B. [24]).

Die Flußquantisierung wird im sog. rf-SQUID zur Ausmessung kleiner Magnetfelder bzw. Magnetisierungen genutzt. Hierfür wird der supraleitende Kreis induktiv an die Spule eines Schwingkreises gekoppelt ($\omega_r = 19 \text{ MHz}$). Das äußere Magnetfeld B_a erzeugt am SQUID mit der Querschnittsfläche F_{SQUID} einen Fluß $\Phi_a = B_a \cdot F_{\text{SQUID}}$. Erhöht sich das äußere Magnetfeld B_a , so dringt an der

Schwachstelle schon bei kleinen Änderungen von B_a bzw. Φ_a magnetischer Fluß in Einheiten des elementaren Flußquants Φ_0 in den Ring ein. Hierbei werden Spannungsstöße in den Schwingkreis induziert, die in einer geeigneten Elektronik in eine zur Flußänderung $\Delta\Phi_a$ proportionale Spannung umgewandelt werden. Die Auflösung, die man hierbei erreicht, beträgt $\Delta\Phi_a/\Phi_0 \approx 1$.

Vielfach benötigt man noch eine wesentlich bessere Auflösung. Diese erzielt man durch ein spezielles Rückkopplungsverfahren, in dem zusätzlich ein niederfrequentes Signal (50kHz, Amplitude $\Phi_0/2$) dem rf-Signal überlagert wird. Dieses niederfrequente Signal tastet Flußänderungen noch in Bruchteilen von Φ_0 ab. Dabei wird von der Elektronik eine Kompensationsspule so gesteuert, daß der wirksame Fluß am SQUID konstant bleibt (Stabilisierung des Arbeitspunktes des SQUID). Der Strom durch die Kompensationsspule ist ein direktes Maß für die Flußänderung $\Delta\Phi_a$. Die Empfindlichkeit des SQUID erhöht sich durch dieses Verfahren auf $\Delta\Phi_a/\Phi_0 \approx 10^{-4}$. Dies entspricht bei einer wirksamen Fläche des SQUID von z.B. 0.1 cm^2 einer Auflösung von $\Delta B_a = 2 \cdot 10^{-10} \text{ Gauß} = 2 \cdot 10^{-14} \text{ Tesla}$ [23]. Damit ist das SQUID eines der empfindlichsten Magnetometer.

Für detaillierte Ausführungen zum SQUID sei auf die Bücher [23] und [24] verwiesen.

Bei den hier vorzunehmenden Magnetisierungsmessungen wird die zu untersuchende Probe in ein astatisch gewickeltes Spulenpaar von je 26 Windungen gebracht (Nb: 0.1mm, Durchmesser der Spule: $\approx 4\text{mm}$).

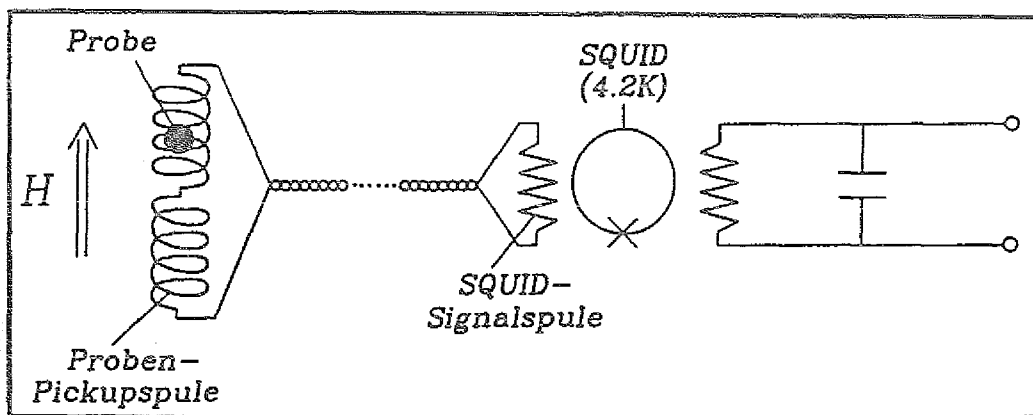


Abb.3.2:

Messung von Magnetisierungsänderungen einer Probe in einer SQUID-Anordnung bestehend aus Proben-Pickupspule, SQUID-Signalspule und rf-Schwingkreis (schematisch).

Bei idealer Kompensation der Pickup-Spule gilt für den Fluß

$$\Phi_{\text{Pickup}} = B_1 F_1 - B_2 F_2 = \mu_0 (H + M) F_1 - \mu_0 H F_2 = \mu_0 M F \sim M \quad (3.2)$$

($F_1 = F_2 = F$: Fläche der oberen bzw. unteren Spule im Pickupsystem). Der Fluß durch die Pickup-Spule ist also der Magnetisierung der Probe proportional. Über einen supraleitenden Flußtransformator, aufgebaut aus Proben-Pickupspule und SQUID-Signalspule, werden die durch Magnetisierungsänderungen ΔM der Probe erzeugten Flußänderungen $\Delta \Phi_{\text{Pickup}}$ in hierzu entgegengesetzte Flußänderungen $-\Delta \Phi_{\text{SQUID}}$ im SQUID übertragen:

$$\Delta M \sim \Delta \Phi_{\text{Pickup}} \longrightarrow (-\Delta \Phi_{\text{SQUID}}) \sim \Delta U_{\text{SQUID}} \quad (3.3)$$

Die SQUID-Ausgangsspannung U_{SQUID} ist also direkt proportional zur Magnetisierung der Probe:

$$U_{\text{SQUID}} = k \cdot M + U_0 \quad (3.4)$$

Da auch einige ac-Suszeptibilitätsmessungen vorgenommen wurden, soll kurz erwähnt werden, wie in diesen Messungen das SQUID eingesetzt wird.

Bei den ac-Messungen wird die zu messende Induktivität der Probe mit einer Referenzgegeninduktivität in einer Brückenschaltung verglichen. Über einen Lock-in - Verstärker wird die Brücke phasenempfindlich abgeglichen, wobei das SQUID als empfindliches Nullinstrument dient. Die am Lock-in - Verstärker eingestellten in-phase- und out-of-phase- Komponenten sind dabei proportional zu Real- und Imaginärteil der ac-Suszeptibilität.

Das erst im mK-Bereich auftretende Spinglasverhalten der zu untersuchenden $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben macht es erforderlich, die Messungen in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkryostaten vorzunehmen. Mit dem hier verwendeten Kryostaten (SHE: Modell DRI-420) lassen sich Temperaturen bis etwa 40 mK einstellen und mit hoher Konstanz ($\Delta T/T \approx 0.5\%$) über lange Zeit ($\approx 1\text{Tag}$) aufrechterhalten.

Zur besseren thermischen Ankopplung befindet sich die Probe mit der Pickupspule direkt in der Mischkammer.

Die Temperatur der Mischkammer wird oberhalb 0.3 K mit einem auf der Mischkammer befindlichen Ge-Widerstand bestimmt. Für die Temperaturmessung unterhalb 0.3 K dient ein Kohlewiderstandsthermometer. Die Temperatureinstellung der Mischkammer erfolgt über einen Heizwiderstand, dessen Heizleistung über einen PID-Regler gesteuert wird. Die Genauigkeit der Temperaturregelung bzw. der Temperaturmessung beträgt etwa $\Delta T/T \approx 0.5\%$.

Eine genaue Beschreibung des hier verwendeten Mischeinsatzes und der Meßvorrichtung findet man in [25].

4. Präparation der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben

Bei den vorzunehmenden Messungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ konnte teilweise auf existierende Proben zurückgegriffen werden. Im Konzentrationsbereich zwischen $x=0.10$ und $x=0.20$ mußten jedoch zusätzlich einige Proben hergestellt werden. Die Präparation dieser Proben erfolgte unter Anleitung von Herrn K. Fischer am Institut für Festkörperforschung der KFA-Jülich, Bereich Materialentwicklung.

Da Strontium ähnliche chemische Eigenschaften wie das Europium besitzt und auch einen vergleichbaren Ionenradius hat ($r_{\text{Eu}^{2+}} = 1.17 \text{ \AA}$, $r_{\text{Sr}^{2+}} = 1.18 \text{ \AA}$ [26]), lassen sich relativ leicht homogene $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Mischkristalle über den gesamten Konzentrationsbereich $0 < x < 1$ herstellen. Im wesentlichen werden die Kristalle durch Aufschmelzen der reinen Elemente Eu, Sr und Te unter Vakuum in einem HF-Ofen bei $\approx 2400^\circ\text{C}$ und anschließender Rekristallisation bei 2000°C hergestellt.

Eu, Sr und Te werden zunächst im gewünschten stöchiometrischen Verhältnis in einen W-Tiegel gegeben. Der W-Tiegel wird mit einem Deckel verschlossen und unter Vakuum elektronenstrahlverschweißt. Zusammen mit einem mit Ti-Spänen gefüllten offenen Mo-Tiegel wird der W-Tiegel dann in eine Halterung aus Wolframdraht gebracht und alles in ein zuvor ausgeheiztes Quarzrohr eingeschmolzen. Das Einsmelzen erfolgt ebenfalls unter Vakuum ($p \approx 10^{-6}$ Torr). Das Titan dient bei den nachfolgenden Prozessen als Getter für mögliche Restverunreinigungen im Quarzgefäß, vor allem für Reste von Sauerstoff und Wasser.

Das in dieser Weise vorbereitete Zuchtungsgefäß wird in einem ersten Temperprozeß in einem Röhrenofen langsam (etwa 2 Tage) stufenweise bis auf 700°C erhitzt. Dies dient einerseits einer Vorreaktion zwischen Eu, Sr und Te; zum anderen wird der Ti-Getter aktiviert. Erst nach dieser Vorreaktion erfolgt die Züchtung der Kristalle. Hierfür wird der mit den Ausgangselementen gefüllte W-Tiegel in die Spule eines HF-Generators gebracht und induktiv bis auf 2400°C erhitzt. Die Temperaturmessung erfolgt pyrometrisch. Das Quarzgefäß wird von außen durch vorbeiströmendes Wasser gekühlt.

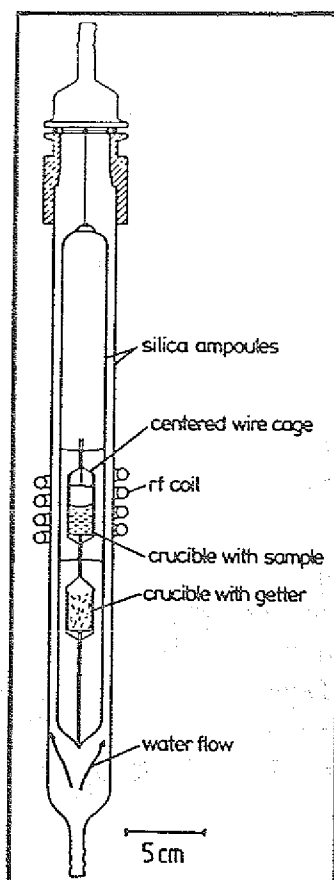


Abb. 4.1:

Quarzampulle mit Probe und Getter für die Herstellung der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Einkristalle.

Nach dem Aufschmelzen von Eu, Sr und Te (Schmelztemperatur $\approx 2300^\circ\text{C}$) wird die Temperatur in 6 Stunden langsam bis auf 2000°C abgesenkt. Dabei ist die HF-Spule so positioniert, daß ein Temperaturgradient in axialer Richtung über dem W-Tiegel besteht ($\Delta T \approx 30 - 40^\circ\text{C pro cm}$), damit ein gerichtetes Erstarren der Schmelze vom Boden des Tiegels aus erfolgen kann.

Nach einer Rekristallisations- und einer anschließenden Homogenisierungsphase (Temperaturgradient $\Delta T = 0$), die bei 2000°C insgesamt nochmals mindestens 2 Tage andauert, erhält man Kristalle von einigen mm Durchmesser. Für die hier vorzunehmenden Messungen werden Proben mit einem Durchmesser von ca. 1mm benötigt. Größere Proben finden in der Meßapparatur keinen Platz.

Die so gewonnenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Kristalle schimmern im Licht rötlich. An Luft laufen die Kristalle allerdings relativ schnell an, so daß die Proben unter Argon aufbewahrt werden und nur für den Ein- und Ausbau in die Meßapparatur kurz an Luft gelangen.

Die $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Kristalle besitzen NaCl-Struktur mit einer Gitterkonstanten a_0 , die laut Börgermann [25] bei Raumtemperatur nahezu linear mit der Konzentration von $a_0 = 6.598\text{\AA}$ für EuTe ($x=1$) zu $a_0 = 6.659\text{\AA}$ für SrTe ($x=0$) variiert. Für tiefe Temperaturen existieren nur Messungen der Gitterkonstanten an EuTe , nicht für das Mischsystem. Nach [27] beträgt die Gitterkonstante bei EuTe bei 4.2K $a_0 = 6.576\text{\AA}$.

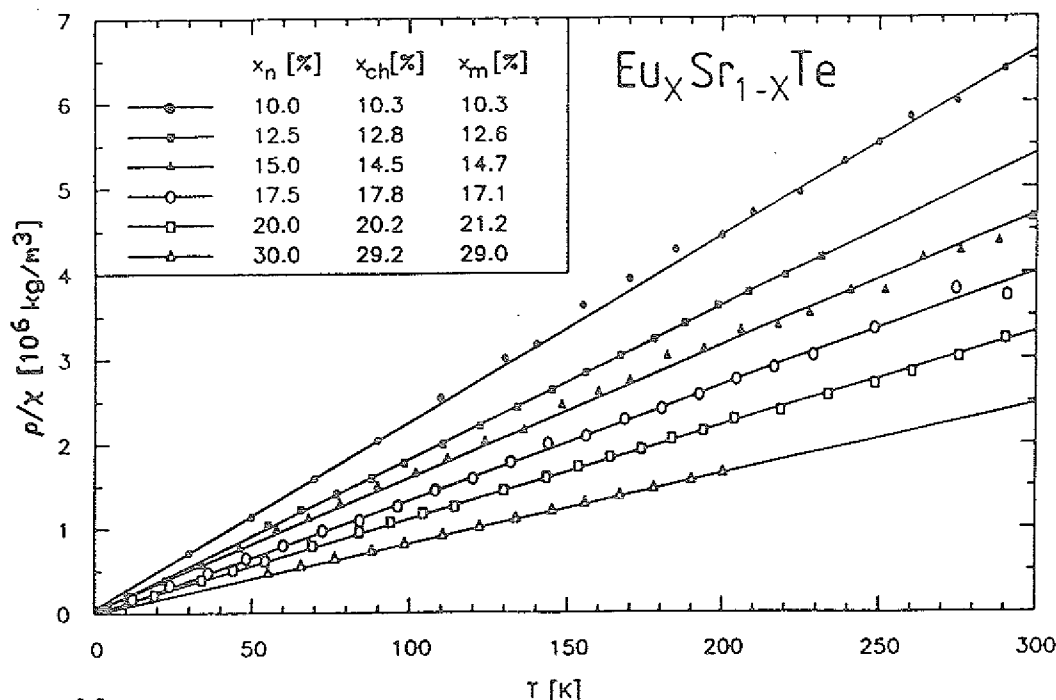
Auf eigene strukturelle Untersuchungen auch im Hinblick auf die Güte der Proben (Homogenität, etc.) wurde im Rahmen dieser Doktorarbeit verzichtet; das hier beschriebene Verfahren hat sich schon früher bei der Herstellung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ - und auch von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ - Einkristallen im Hause bewährt. Strukturelle Daten verdünnter Eu-Monochalkogenide und eine Vielzahl von Messungen hieran sind in [27] zusammengestellt.

Zur Kontrolle wurde eine chemische Analyse der Proben auf stöchiometrische Zusammensetzung und mögliche Restverunreinigungen veranlaßt*.

Die Analyse ergab keinen Hinweis auf Verunreinigungen. Die Stöchiometrie der Proben stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der Einwaage überein.

Weiterhin wurden magnetische Messungen von Frau Dr. Abeln und Herrn Dr. Köbler an den Proben durchgeführt. Abb.4.2 zeigt den Temperaturverlauf der inversen, auf die Dichte normierten Suszeptibilität ρ/χ für die hier untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben.

* Analysenmethode: Atom-Emissions-Spektroskopie mit induktiv gekoppeltem Argonplasma.

**Abb.4.2 :**

Temperaturverlauf der inversen, auf die Dichte normierten Suszeptibilität ρ/χ für die untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben. — Aus der Steigung der eingezeichneten Geraden läßt sich die Eu-Konzentration nachträglich bestimmen. Die so ermittelten Werte x_m sind zusammen mit den aus der chemischen Analyse gewonnenen Werte x_{ch} der nominellen Konzentration x_n im Einschub gegenübergestellt.

Die Proben zeigen im Temperaturbereich 4.2K–300K Curie-Weiss-Verhalten

$$\chi/\rho = \frac{C/\rho}{T - \Theta} \quad , \quad C/\rho = \frac{N_L p_{eff}^2}{3 \mu_0 k_B} \cdot \frac{x}{M_{mol}} \quad (4.1)$$

mit einer leicht negativen paramagnetischen Curie-Temperatur Θ ('verdünnter Antiferromagnet').

Messungen von Börgermann [25] an diesem System ergeben, daß das effektive magnetische Moment des Eu-Atoms relativ gut mit dem für einen Spin $S=7/2$ des freien Ions erwarteten Wert von $p_{eff} = g\sqrt{S(S+1)}\mu_B = 7.94\mu_B$ übereinstimmt. Mit diesem Wert läßt sich aus der Steigung der in Abb.4.2 eingezeichneten Geraden und der Gl.(4.1) nachträglich die Eu-Konzentration x bestimmen.

Sowohl die aus den magnetischen Messungen so ermittelten Konzentrationen x_m als auch die aus der chemischen Analyse gewonnenen Werte x_{ch} ergeben gute Übereinstimmung mit der nominellen Konzentration x_n (vgl. Einschub in Abb.4.2).

5. Prinzipieller Ablauf einer TRM-Zerfallsmessung

Die folgende Abb.5.1 zeigt schematisch den prinzipiellen Ablauf der hier vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen.

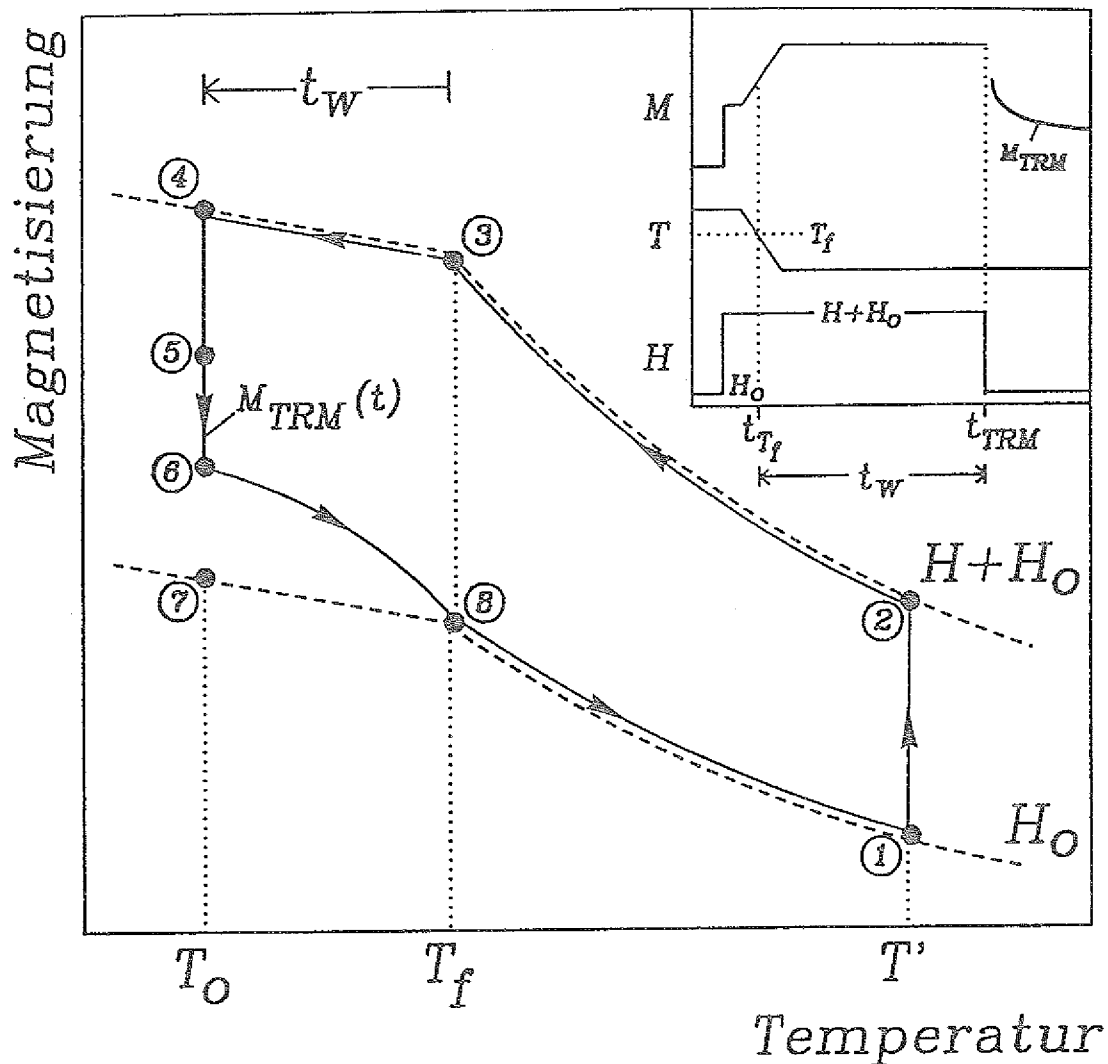


Abb.5.1:

Prinzipieller Ablauf einer TRM-Zerfallsmessung.

Zunächst wird der Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung im Erdfeld H_0 ($\approx 0.5 \text{ Oe}$) aufgenommen (1-8-7). Dieser dient später als Bezugslinie für die Bestimmung des Nullpunktes der Thermo-Remanenten-Magnetisierung. Aus der Lage des Knicks (8) läßt sich die Spinglastemperatur T_f der Probe bestimmen. Die eigentliche TRM-Messung läuft dann folgendermaßen ab:

Bei einer Temperatur T' oberhalb der Spinglastemperatur (hier $T' > 1.5T_f$) wird das äußere Magnetfeld H eingeschaltet (1-2). Dann wird die Probe im Feld $H + H_o$ auf die Temperatur $T_o < T_f$, bei der die Messung erfolgen soll, abgekühlt (2-3-4). Nach der Wartezeit t_w vom Durchfahren der Einfriertemperatur aus gerechnet* und sofern die Temperatur hinreichend stabil ist, wird das Feld H ausgeschaltet. Die Magnetisierung nimmt dann sehr schnell ab (4-5), fällt aber nicht auf den durch das Erdfeld induzierten Anteil (7) ab. Es verbleibt ein remanenter Anteil M_{TRM} , die Thermo-Remanente-Magnetisierung, die mit der Zeit langsam abnimmt.

Zur Aufnahme des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung wird das zur Magnetisierung proportionale SQUID-Ausgangssignal

$$U_{SQUID}(t) = k \cdot M(t) + U_{Offset} \quad (5.1)$$

auf ein Digitalvoltmeter (Keithley, Modell 195A) gegeben, das die Meßwerte in Abhängigkeit von der Zeit registriert und zunächst intern abspeichert. Von Zeit zu Zeit wird dieser Speicher von einem angeschlossenen Computer (Apple IIe) ausgelesen.

Die Magnetisierung zum Zeitpunkt t nach Abschalten des Feldes setzt sich aus der zeitunabhängigen Erdfeldmagnetisierung M_{H_o} und der Remanenz $M_{TRM}(t)$ zusammen:

$$M(t) = M_{H_o} + M_{TRM}(t) \quad (5.2)$$

Dies in Gl.(5.1) eingesetzt ergibt:

$$\begin{aligned} U_{SQUID}(t) &= k (M_{H_o} + M_{TRM}(t)) + U_{Offset} \\ &= k \cdot M_{TRM}(t) + k \cdot M_{H_o} + U_{Offset} \end{aligned} \quad (5.3)$$

Mit $U_{Baseline} = k \cdot M_{H_o} + U_{Offset}$ folgt dann:

$$U_{SQUID}(t) = k \cdot M_{TRM}(t) + U_{Baseline} \quad (5.4)$$

Die Ausgangsspannung am SQUID ist also proportional zur Thermo-Remanenten-Magnetisierung.

* In der Literatur wird mit Wartezeit auch häufiger die Zeit bezeichnet, die das System vor der Messung bei der Meßtemperatur T_o verbracht hat. Wenn die Abkühlrate klein gegenüber der Wartezeit ist, ist diese Bezeichnung mit der hier vorgenommenen identisch.

Zur Bestimmung der Nullage der Thermo-Remanenten-Magnetisierung wird die Probe nach der Messung über die Spinglastemperatur T_f erwärmt und der Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung aufgenommen (6-8-1). Aus der Tatsache, daß dieser Verlauf für $T > T_f$ der der Erdfeldmagnetisierung entspricht, läßt sich dann die Baseline (7) bestimmen (entspricht der Magnetisierung im Erdfeld bei der Temperatur T_0).

Eine Bestimmung des Proportionalitätsfaktors k in Gl.(5.4) war nicht möglich, da sich k von Probeneinbau zu Probeneinbau ändert. Dies liegt daran, daß k Größen beinhaltet, die sich nicht definiert einstellen lassen (z.B. effektive Fläche der Probe im Pickup-System, Induktivität der Zuleitungen zum Flußtransformator [25]).

Auf eine nachträgliche absolute Bestimmung der Magnetisierung in einer anderen Meßapparatur, wie es in [25] vorgenommen wurde, wurde verzichtet, da im wesentlichen nur der Zeitzerfall der Remanenz interessierte und nicht die absolute Größe der Remanenz.

6. Meßergebnisse

Zur Untersuchung der Spindynamik im Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ wurden Messungen des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung an Proben mit Eu-Konzentrationen im Bereich zwischen $x=0.10$ bis $x=0.30$ vorgenommen.

Die TRM-Zerfallsmessungen erstreckten sich über einen Zeitbereich von 1sec bis etwa 10^4 sec. Vielfach wurde der Beobachtungszeitraum bis auf 10^5 sec erweitert, wenn eine quantitative Analyse des TRM-Zerfalls vorgenommen werden sollte (Kap.8). Den Beobachtungszeitraum zu kürzeren Zeiten auszudehnen war nicht möglich, da nach Abschalten des äußeren Magnetfeldes die SQUID-Elektronik eine gewisse Zeit (ca.1-2sec) benötigt, um sich zu 'erholen'.

Die Zeitkonstante der Spule, mit der das äußere Magnetfeld erzeugt wird, wurde auf etwa 40 msec abgeschätzt. Dies ist relativ klein gegenüber dem Beginn der Registrierung des TRM-Zerfalls, so daß davon ausgegangen werden kann, daß nach Abschalten des Spulenstromes bei den ersten Meßwerten kein Restfeld mehr anliegt. Der Nullpunkt der Zeitskala ist damit auch relativ gut festgelegt.

In den Messungen des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung wurden die Temperatur und die Wartezeit variiert. Das äußere Magnetfeld betrug stets $H=10\text{Oe}$. Auf die Kompensation des Erdfeldes $H_0(\approx 0.5\text{Oe})$ wurde verzichtet.

Eine im folgenden oft wiederkehrende Größe wird die Relaxationsrate S des TRM-Zerfalls sein. Diese gibt die Änderung der Thermo-Remanenten-Magnetisierung auf einer logarithmischen Zeitskala an:

$$S(t) = - \frac{1}{H} \frac{dM_{\text{TRM}}(t)}{d \ln t} \quad (6.1)$$

Da alle TRM-Messungen für ein Feld von $H=10\text{Oe}$ vorgenommen wurden, ist der Faktor $1/H$ in obiger Gl.(6.1) im folgenden stets gleich 1 gesetzt worden. Die nach Gl.(6.1) notwendige Differentiation der Meßkurven erfolgte durch Mehrpunkt-Differenzenquotientbildung und anschließender Mittelung.

Bevor die Messungen des TRM-Zerfalls in Abschnitt 6.2 und 6.3 vorgestellt werden, soll zunächst in Abschnitt 6.1 aus dem Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung die Spinglastemperatur der hier untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben ermittelt werden.

6.1 Bestimmung der Spinglastemperatur T_f aus statischen Magnetisierungsmessungen

Die Spinglastemperatur läßt sich experimentell aus dem Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung bestimmen. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ besitzt der Verlauf der feldgekühlten Magnetisierung bei T_f eine ausgeprägte Anomalie in Form eines 'Knicks' [5]. Unterhalb dieses Knicks hat M_{dc} einen deutlich flacheren Verlauf. Bei metallischen Spingläsern nimmt M_{dc} unterhalb T_f i.a. sogar ab.

Abb.6.1 zeigt den Temperaturverlauf der im Erdfeld aufgenommenen statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ für drei verschiedene Eu-Konzentrationen $x=0.30$, $x=0.20$ und $x=0.10$. Da keine Absolutbestimmung der Magnetisierung vorgenommen wurde, ist die Ordinate für jede dieser Kurven unterschiedlich skaliert. Absolute Magnetisierungsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ finden sich bei Börgermann [5]; diese sind zum Vergleich in Abb.6.3 mit abgebildet.

Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ mit $x=0.30$ und $x=0.20$ ist bei tiefen Temperaturen deutlich ein Knick im Verlauf von M_{dc} zu erkennen. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ liegt dieser Knick bei ungefähr 1070mK, bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ bei 500mK. Unterhalb dieses Knicks ist der Anstieg von M_{dc} für abnehmende Temperaturen flacher. M_{dc} besitzt dabei einen leicht konvexen Verlauf.

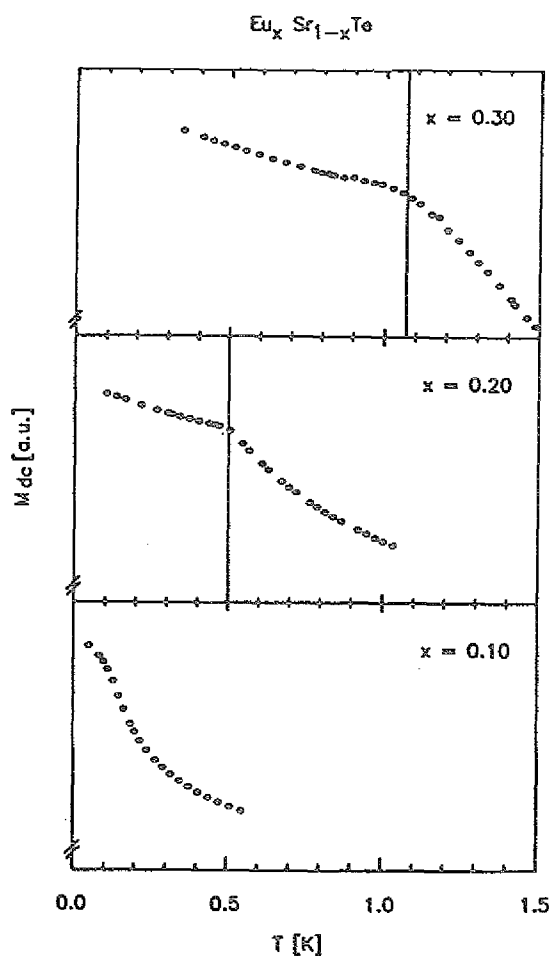
Im Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.10)$ ist dagegen ein solch starker Knick nicht zu erkennen; der Verlauf von M_{dc} zeigt hier nur eine allmähliche Abflachung für Temperaturen unterhalb etwa 120mK. Börgermann berichtet, daß er an der $x=0.10$ -Probe bis hinunter zu 20mK keine Anomalie im Temperaturverlauf von M_{dc} sieht [5].

In Abb.6.2 ist der Bereich zwischen $x=0.10$ und $x=0.20$ nochmals deutlicher herausgestellt.

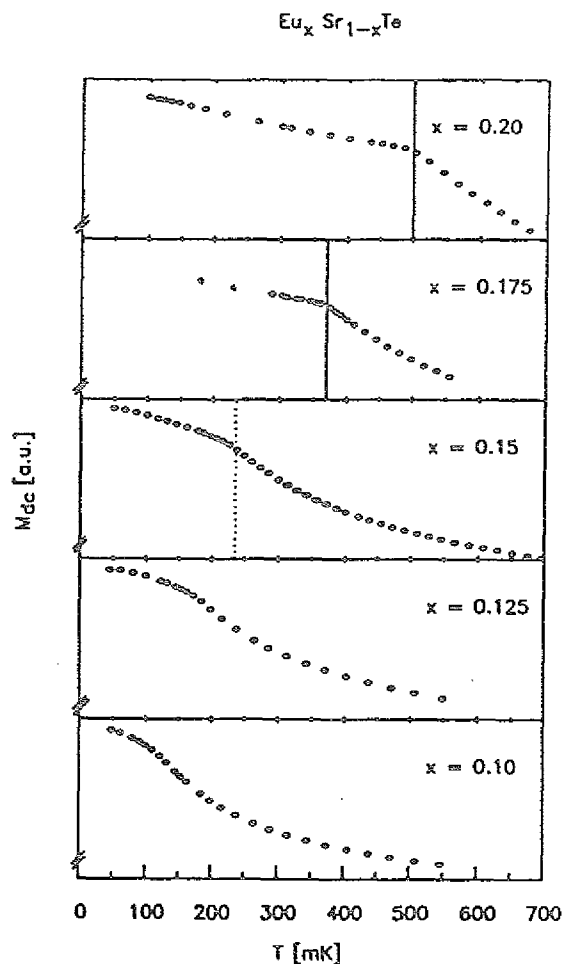
Bei $x=0.20$ und $x=0.175$ erkennt man deutlich den Knick im Temperaturverlauf von M_{dc} . Die sich aus der Lage des Knicks ergebenden Spinglastemperaturen sind in Abb.6.4 bzw. Tab.6.1 aufgeführt.

Bei $x=0.15$ ist die Anomalie im Temperaturverlauf von M_{dc} nicht mehr so ausgeprägt. Für $x < 0.15$ ist dann nur noch ein breiter Buckel zu sehen; die Bestimmung einer Spinglastemperatur ist hier aus den Messungen nicht möglich.

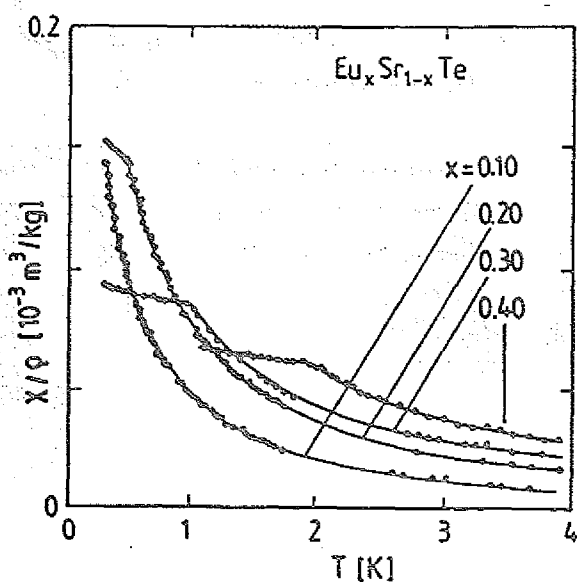
Der qualitative Unterschied im Temperaturverlauf von M_{dc} zwischen $x \geq 0.15$ und $x < 0.15$ und die Tatsache, daß man in dem Bereich um $x=0.15$ die Perkolationsschwelle erwartet bei der der Übergang von Spinglas zu Superparamagnet erfolgt (vgl. magnetisches Phasendiagramm von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$), legt die Vermutung nahe, daß sich in oben beschriebenem Verhalten der Einfluß dieser Perkolation bemerkbar macht. In Kap.7.2 wird dies noch ausführlich diskutiert.

**Abb.6.1:**

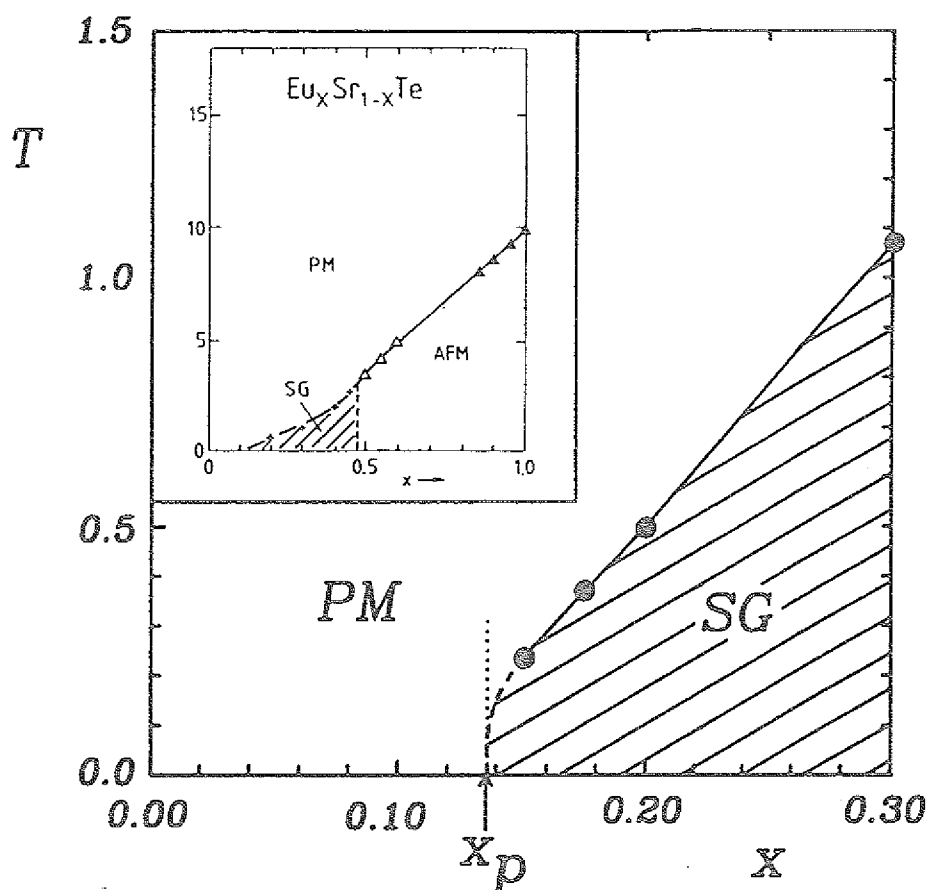
Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ beim Abkühlen im Erdfeld $H_0 \approx 0.50\text{e}$. — Die Ordinate ist für die einzelnen Messungen unterschiedlich skaliert.

**Abb.6.2:**

Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Konzentrationsgebiet von $x=0.10$ bis $x=0.20$, aufgenommen im Erdfeld H_0 .

**Abb.6.3:**

Statische Magnetisierungsmessungen von Börgermann an verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben [5]. — Die Magnetisierung ist hier absolut aufgetragen.

**Abb.6.4:**

Magnetisches Phasendiagramm von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Bereich der Perkolationschwelle $x=x_p=0.136$. — Die Spinglastemperaturen wurden ermittelt aus der Anomalie im Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung beim Abkühlen im Erdfeld.

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ x	$T_f^{dc}[\text{K}]$
0.10	—
0.125	—
0.15	0.235 ± 0.015
0.175	0.370 ± 0.010
0.20	0.500 ± 0.010
0.30	1.070 ± 0.015

Tab.6.1:

Spinglastemperaturen von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ermittelt aus statischen Magnetisierungsmessungen.

6.2 Temperaturabhängigkeit des TRM-Zerfalls

Abb.6.5 zeigt exemplarisch für die hier vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen den Zeitzerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für drei verschiedene Temperaturen $T/T_f=0.80$, 0.85 und 0.90 . Die Spinglastemperatur dieser Probe beträgt 500mK .

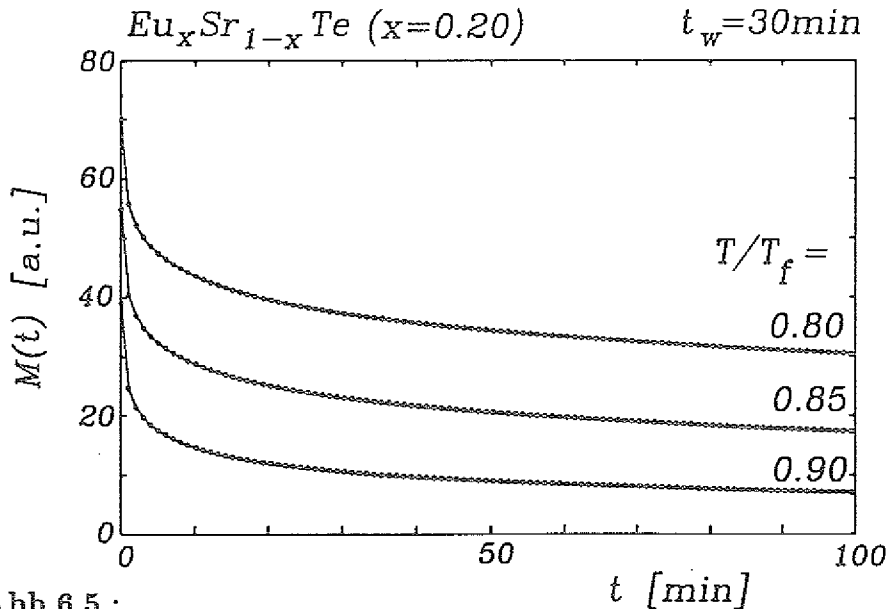


Abb.6.5 :

TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für drei verschiedene Temperaturen $T/T_f=0.80$, 0.85 und 0.90 ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

Der Zerfall der TRM erfolgt nur sehr langsam; auch nach 100min ist die Magnetisierung noch nicht auf Null abgesunken und beträgt bei $T/T_f=0.80$ immer noch 40% der Remanenz direkt nach Abschalten des Feldes. Mit wachsender Temperatur wird die Thermo-Remanente-Magnetisierung dann geringer. Dies ist in Abb.6.6 nochmals deutlicher herausgestellt, in der der Temperaturverlauf der TRM für drei verschiedene feste Beobachtungszeiten t_{obs} aufgetragen ist.

Man erkennt, daß die Thermo-Remanente-Magnetisierung etwa linear mit der Temperatur abnimmt. Die Thermo-Remanente-Magnetisierung ist in der Nähe von T_f auf Null abgesunken. Mit kürzerer Beobachtungszeit verschiebt sich dieser Abfall auf Null zu höheren Temperaturen um etwa 20mK pro Dekade.

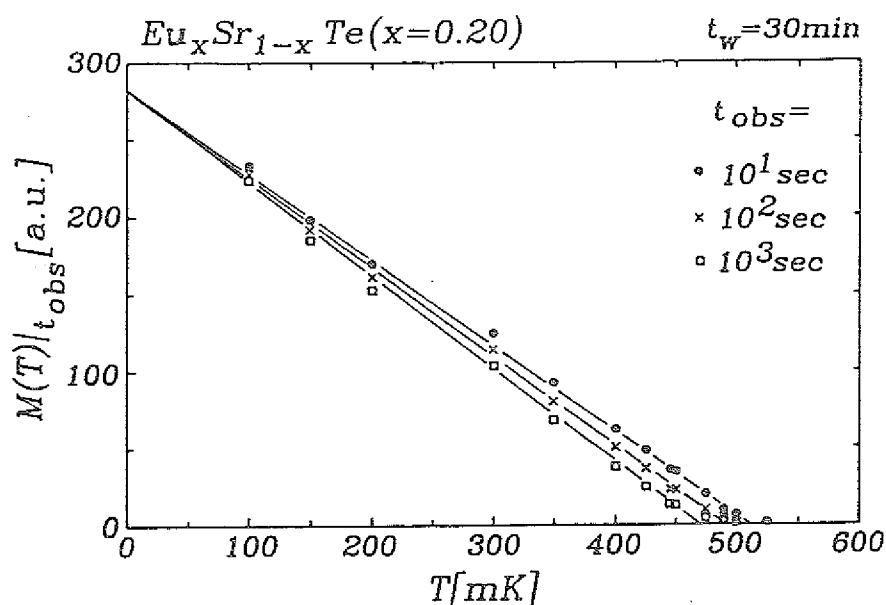
Für $T \rightarrow 0$ läßt sich der Verlauf von $M_{\text{TRM}}(T)|_{t_{\text{obs}}}$ für die einzelnen Beobachtungszeiten auf einen gemeinsamen Wert extrapolieren. Das heißt, daß bei $T=0$ die Relaxationsrate $S = -\frac{1}{H} \frac{dM(t)}{d \ln t}$ verschwindet, die TRM also keinen Zerfall zeigt. Erst mit anwachsender Temperatur setzt der TRM-Zerfall dann ein.

Die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) ist in Abb.6.8 auf Seite 31 dargestellt und in Abb.6.7 für feste Beobachtungszeiten gegen die Temperatur aufgetragen.

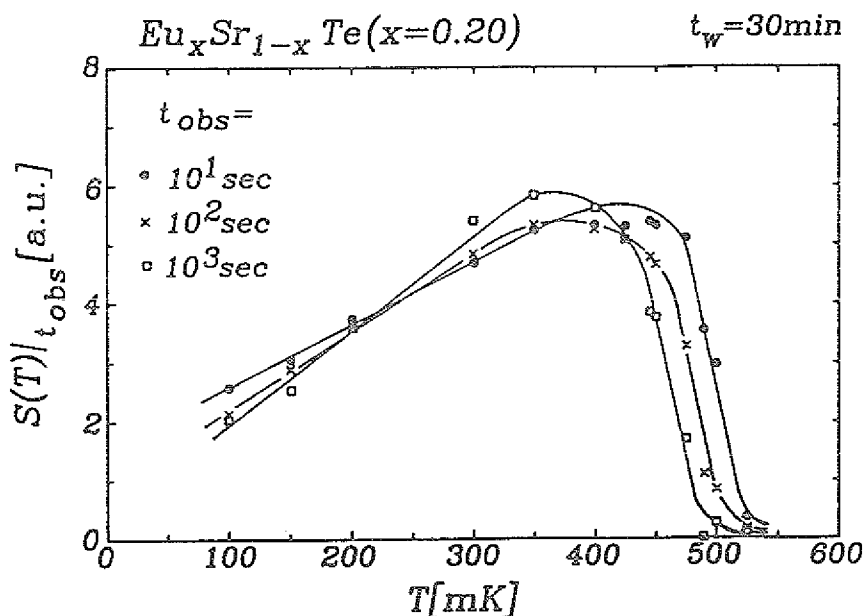
Bei tiefen Temperaturen ist die Relaxationsrate des Zerfalls zunächst relativ gering. Mit ansteigender Temperatur nimmt S im Mittel zu und erreicht bei $T/T_f \approx 0.80$ ihren größten Wert. Bei Annäherung an T_f nimmt S dann wieder ab.

Wie bei dem in Abb.6.7 dargestellten Temperaturverlauf von $M_{\text{TRM}}(T)|_{t_{\text{obs}}}$ verschieben sich auch hier die Meßkurven in der Nähe von T_f mit kürzerer Beobachtungszeit zu höheren Temperaturen. Für $T \rightarrow 0$ scheint S wie erwartet auf Null abzufallen.

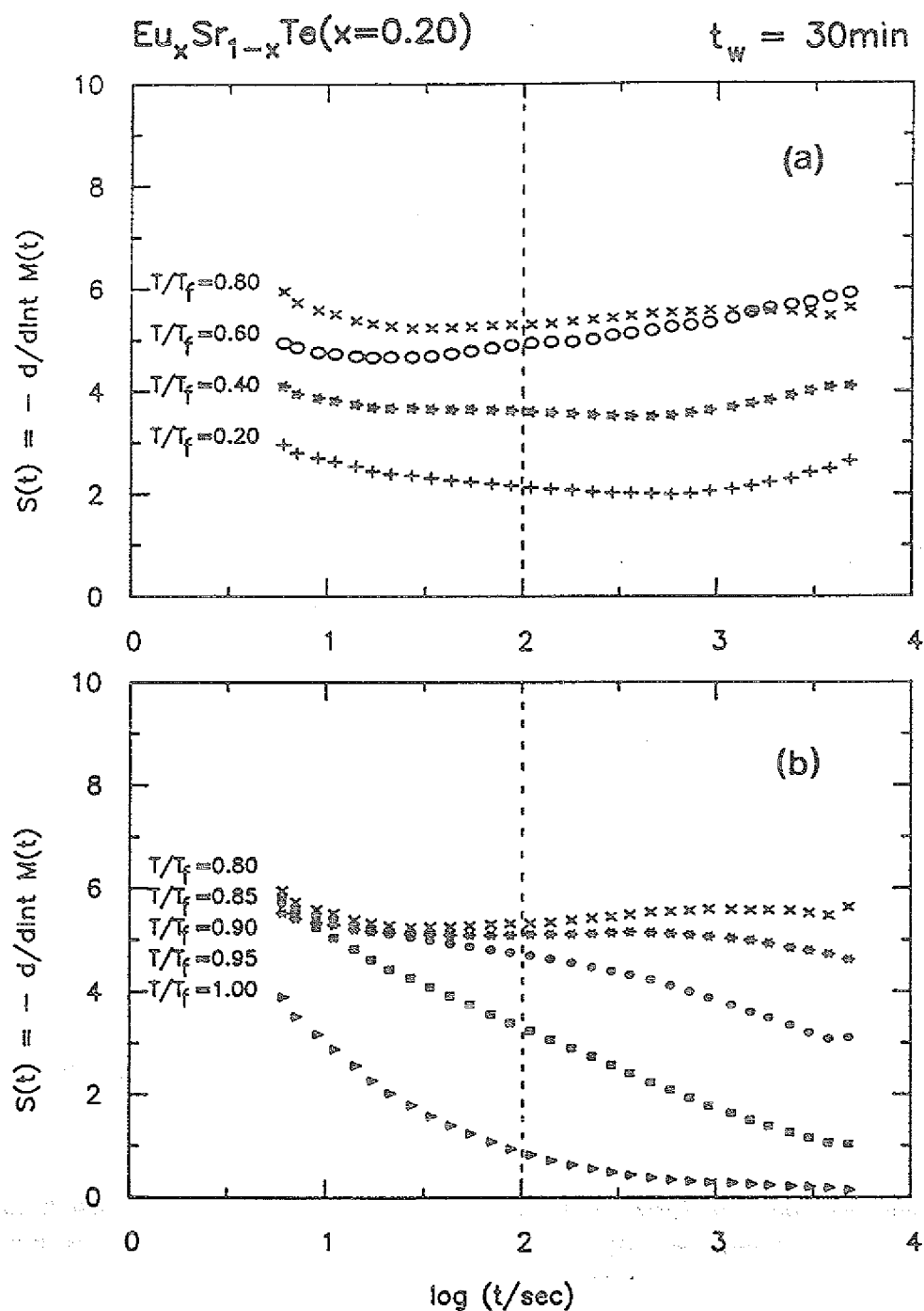
Der Temperaturverlauf von S wird auch an den anderen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben so beobachtet und in Kap.7.2 noch eingehend diskutiert. Messungen von Alba et al. [28] an $\text{CdCr}_x\text{In}_{2-2x}\text{S}_4$ und CsNiFeF_6 zeigen einen vergleichbaren Verlauf von $S(T)|_{t_{\text{obs}}}$.

**Abb.6.6:**

Temperaturabhängigkeit des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} nach Ausschalten des Feldes $H=100\text{e}$ ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

**Abb.6.7:**

Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} nach Ausschalten des Feldes $H=100\text{e}$ ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

**Abb.6.8:**

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ im Temperaturbereich zwischen $T/T_f=0.20$ bis $T/T_f=0.80$ (a) und im Temperaturbereich zwischen $T/T_f=0.80$ bis $T/T_f=1.00$ (b) ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$). — Legt man einen senkrechten Schnitt durch die Abbildungen (gestrichelte Linie), so erhält man den in Abb.6.7 dargestellten Temperaturverlauf von $S(T)$ zu einer festen Beobachtungszeit t_{obs} nach Ausschalten des Feldes.

6.3 Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall

1983 beobachteten Lundgren et al. [7] in Messungen an CuMn, daß der Zeitverlauf der nullfeldgeköhlten Magnetisierung $M_{ZFC}(t)$ davon abhängt, wie lange das System vor der Messung im Spinglaszustand verbracht hat.

Solche und ähnliche Effekte sind inzwischen an vielen anderen Spinglassystemen beobachtet worden. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von 'Alterungseffekten' in Spingläsern.

Alterungseffekte zeigen sich auch hier in den Messungen des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$. Abb.6.9 zeigt Messungen des TRM-Zerfalls an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ bei $T/T_f=0.80$ für drei verschiedene Wartezeiten $t_w=15\text{min}$, 150min und 1500min .

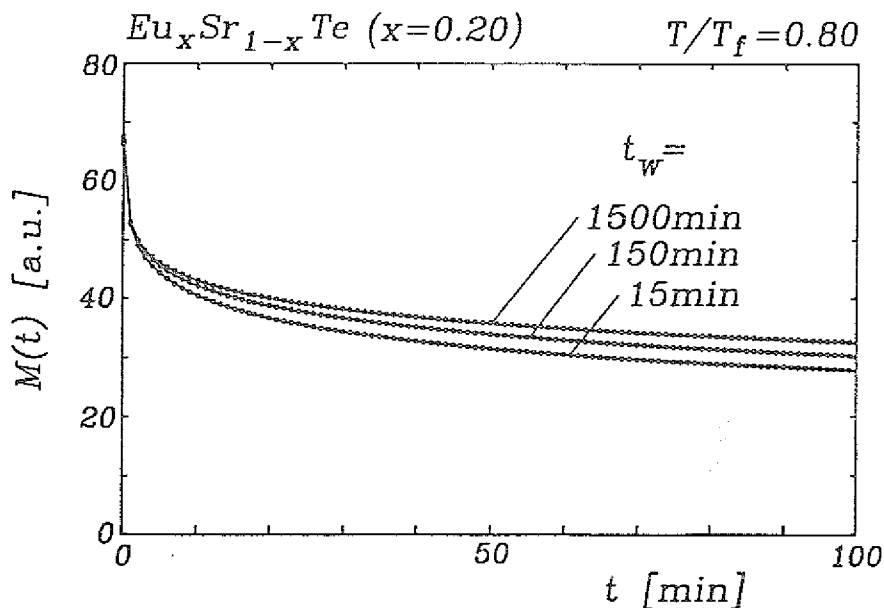


Abb.6.9 :

TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ bei $T/T_f=0.80$ für drei verschiedene Wartezeiten $t_w=15\text{min}$, 150min und 1500min ($T_f=500\text{mK}$).

Man erkennt, daß der Zerfall umso langsamer ist, je länger t_w ist. Nach 100min ist die Thermo-Remanente-Magnetisierung bei der $t_w=15\text{min}$ -Messung um etwa 16% geringer als bei der $t_w=1500\text{min}$ -Messung.

In Abb.6.10 auf Seite 35 sind TRM-Zerfallsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ bei vier verschiedenen Temperaturen dargestellt.

Der Einfluß der Wartezeit zeigt sich hier sehr deutlich; auch in der Nähe von T_f ist dieser noch zu erkennen.

Schaut man sich die Relaxationsrate S des Zerfalls bei dieser Probe an, so zeigt der Einfluß der Wartezeit eine interessante Eigenheit im Verlauf von S . Dies ist in Abb.6.11 dargestellt, in der die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $T=770\text{mK}$ ($T/T_f=0.72$) und $T=880\text{mK}$ ($T/T_f=0.82$) für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten von der kurzstmöglichen Wartezeit bis $t_w=1\text{d}$ aufgetragen ist. Die Pfeile am oberen Rand der Abbildungen markieren jeweils die Lage der Wartezeit t_w auf der Beobachtungszeitskala t des TRM-Zerfalls.

Man erkennt, daß S ein Maximum durchläuft zu einer Zeit, die vergleichbar ist mit der Wartezeit. Diese interessante Eigenschaft ist auch an anderen Systemen beobachtet worden und wird vor allem von Lundgren et al. intensiv untersucht.

Dieses charakteristische Maximum in der Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $t \approx t_w$ zeigt sich auch in den Messungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben mit niedrigeren Eu-Konzentration. In Abb.6.12 ist dies dokumentiert. Dargestellt ist hier für vier verschiedene Konzentrationen zwischen $x=0.15$ bis $x=0.30$ die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $T/T_f \approx 0.80$ für zwei verschiedene Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=1\text{d}$.

Für $t_w=30\text{min}$ erkennt man bei allen vier Proben deutlich ein Maximum im Verlauf von S im Bereich der durch einen Pfeil markierten Wartezeit. Für $t_w=1\text{d}$ ist die Relaxationsrate geringer als bei der $t_w=30\text{min}$ -Messung; erst für $t \rightarrow t_w \approx 10^5\text{sec}$ erkennt man einen Anstieg im Verlauf von S .

Die Größe der Relaxationsrate kann zwischen den einzelnen Proben nicht miteinander verglichen werden, da, wie in Kap.5 schon erwähnt, keine Absolutbestimmung der Magnetisierung vorgenommen wurde. Dennoch läßt sich in einem relativen Vergleich zwischen dem Verlauf von S bei $t_w=30\text{min}$ und $t_w=1\text{d}$ entnehmen, daß sich der Einfluß von t_w auf den TRM-Zerfall bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$) am deutlichsten zeigt und mit abnehmender Eu-Konzentration geringer wird.

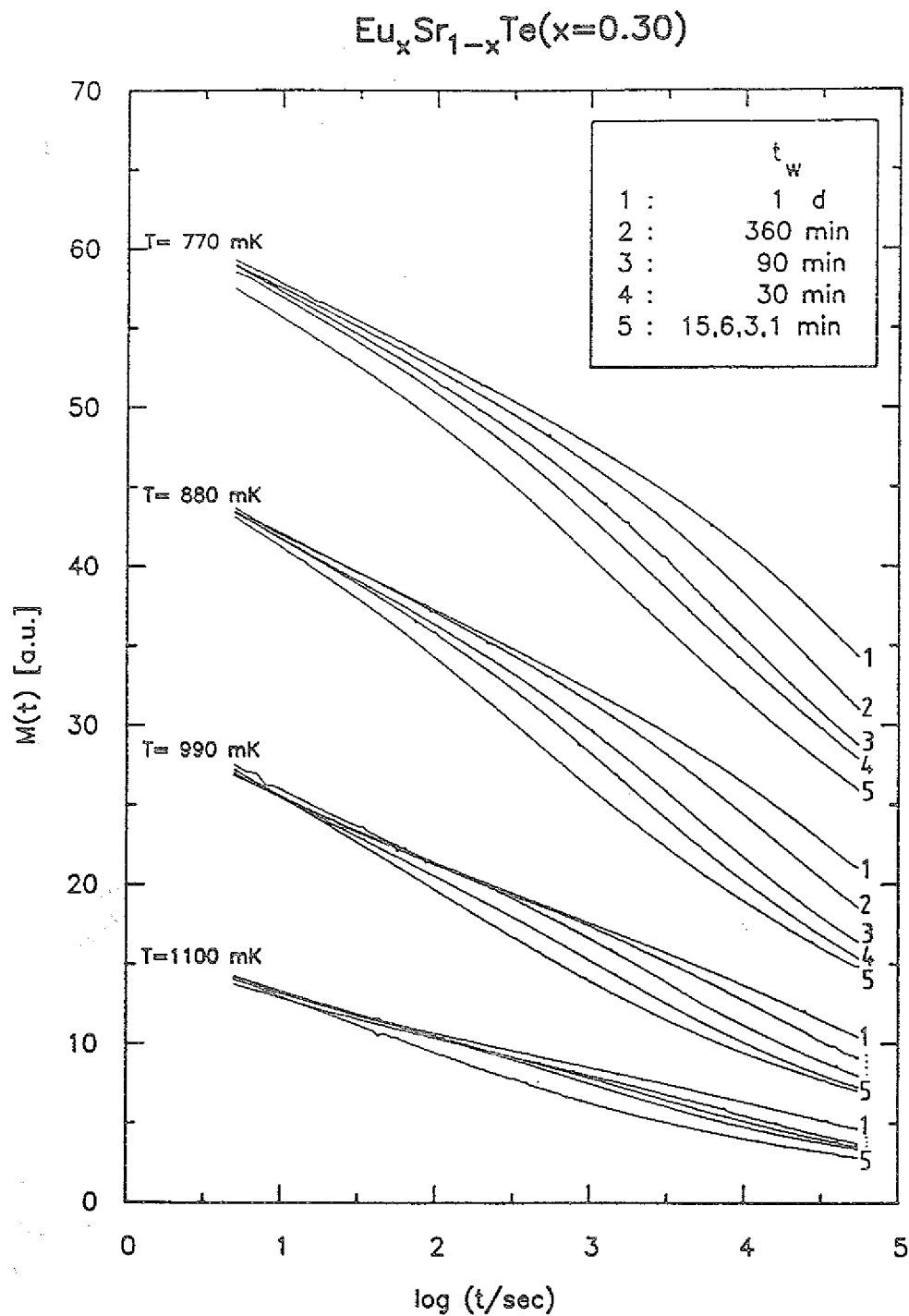
An $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) wurde der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall bei niedrigeren Temperaturen untersucht. In Abb.6.13 ist die Relaxationsrate für zwei verschiedene Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=360\text{min}$ und für vier verschiedene Temperaturen $T/T_f=0.80$, 0.73 , 0.65 und 0.50 dargestellt.

Man erkennt, daß der Einfluß von t_w mit geringer werdender Temperatur abnimmt und bei $T/T_f=0.50$ im Beobachtungszeitraum überhaupt nicht mehr zu erkennen ist. Bei $T/T_f=0.65$ und $T/T_f=0.73$ ist die Relaxationsrate für die $t_w=30\text{min}$ -Messung im Bereich von $t \approx t_w$ nur geringfügig gegenüber der $t_w=1\text{d}$ -Messung erhöht.

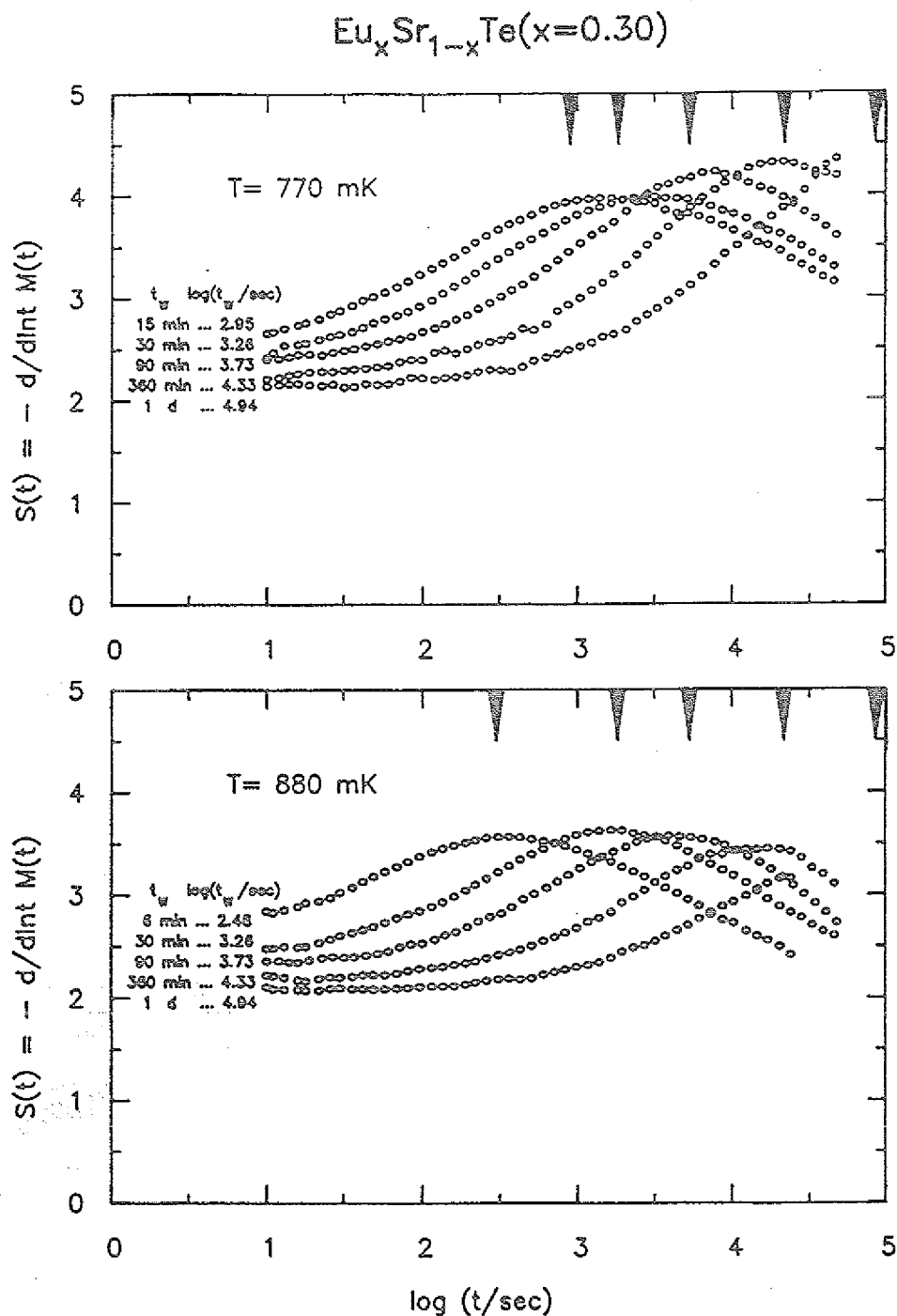
Abb.6.14 zeigt Messungen des TRM-Zerfalls an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) in der Nähe der Spinglastemperatur.

Der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall wird bei $T/T_f=0.80$ deutlich durch das Maximum in der Relaxationsrate bei $t \approx t_w$ angezeigt. Für Temperaturen $T/T_f \geq 0.85$ verschwindet dieses Maximum allmählich. Stattdessen zeigt der Verlauf von S im Beobachtungszeitfenster einen relativ starken Abfall (bei $T/T_f=0.90$ bei $\approx 10^4$ sec), der sich mit Annäherung an T_f zu kürzeren Zeiten verschiebt.

In diesem Abschnitt wurde der Einfluß der Wartezeit t_w auf den Zeitzerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung deutlich gemacht. Dieser t_w -Einfluß ist im wesentlichen durch eine erhöhte Relaxationsrate S im Bereich der Wartezeit t_w gekennzeichnet. Im Temperaturbereich um $T/T_f=0.80$ ist dies durch das Auftreten eines Maximums im Verlauf von S bei $t \approx t_w$ besonders ausgeprägt. Mit abnehmender Eu-Konzentration nimmt der t_w -Einfluß ab.

**Abb. 6.10 :**

TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ für vier verschiedene Temperaturen und für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f = 1070 \text{ mK}$).

**Abb.6.11:**

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ bei $T=770\text{mK}$ ($T/T_f=0.72$) und $T=880\text{mK}$ ($T/T_f=0.82$) für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f=1070\text{mK}$). — Die Pfeile am oberen Rand der Abbildungen markieren die Lage der Wartezeit t_w auf der Beobachtungszeitskala t .

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ $T/T_f \approx 0.80$
 A : $t_w = 30\text{min}$
 B : $t_w = 1\text{d}$

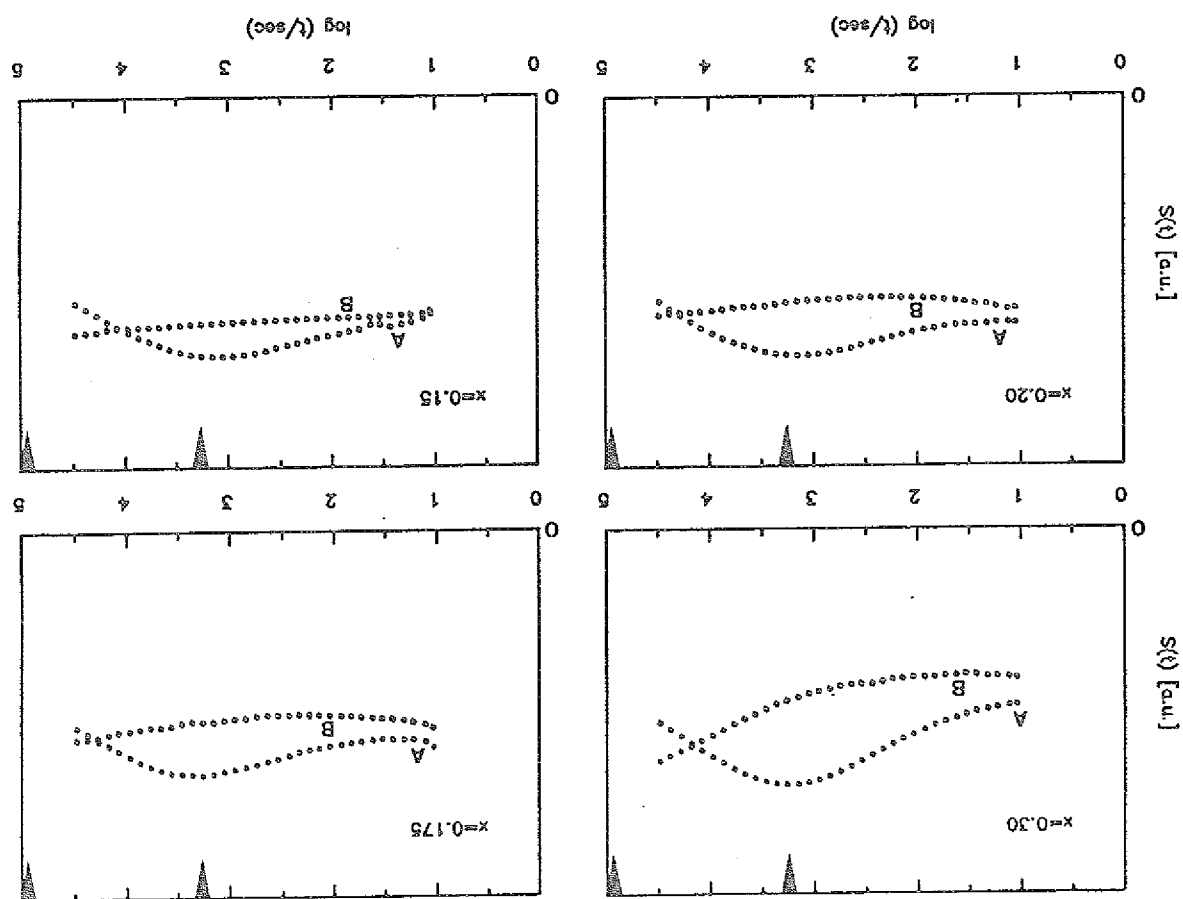
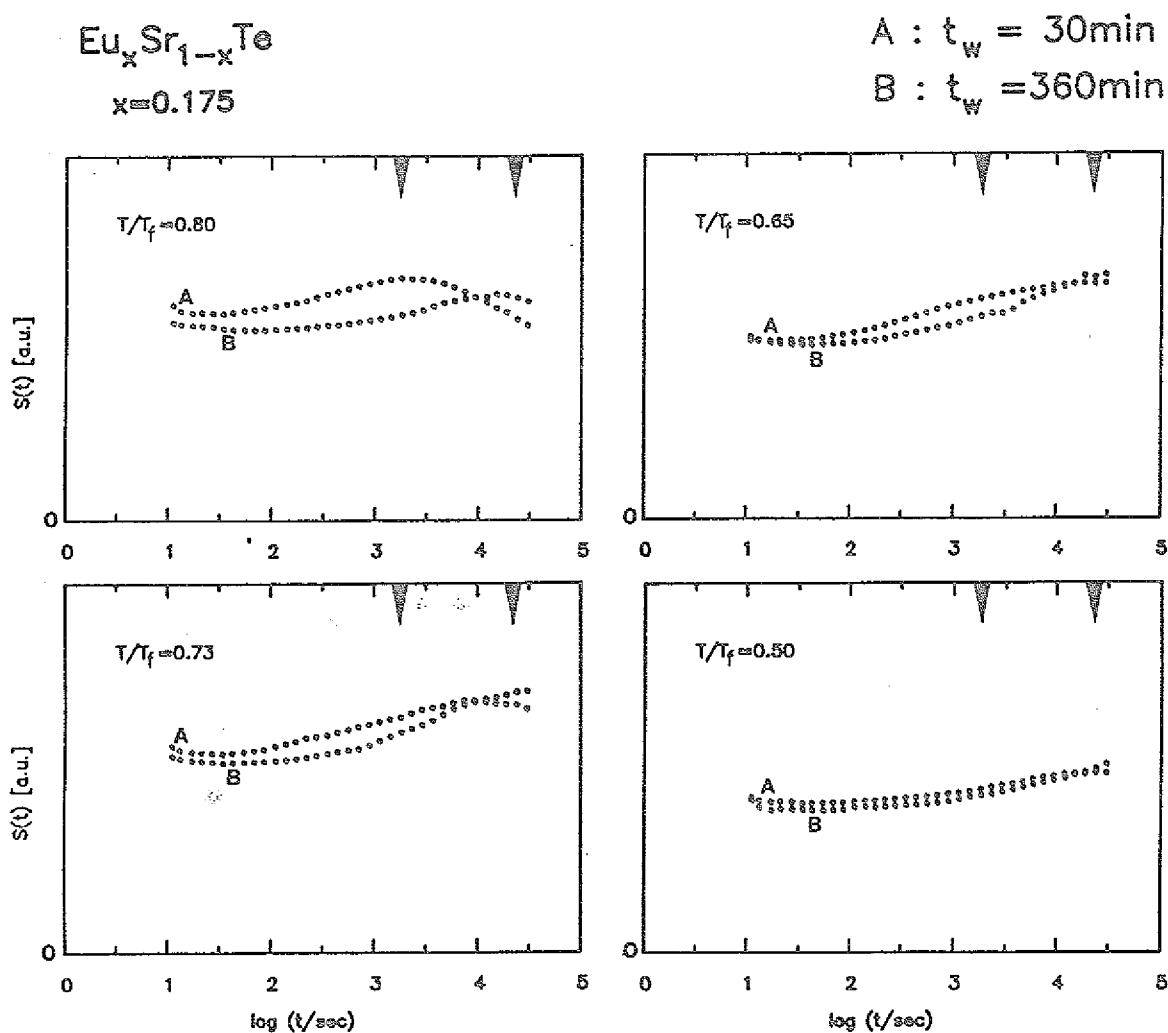
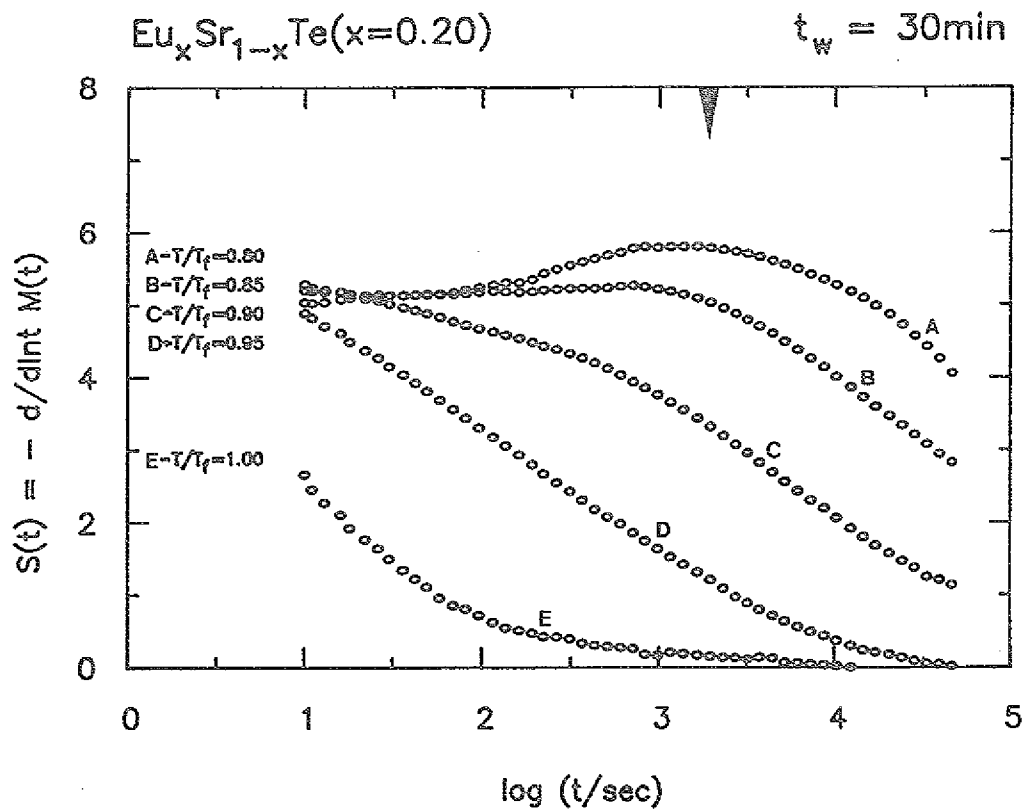


Abb. 6.12:

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben bei einer Temperatur von $T/T_f \approx 0.80$ und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w = 30\text{min}$ und $t_w = 1\text{d}$. — Die Pfeile am oberen Rand der Abbildungen markieren die Lage der Wartezeit t_w auf der Beobachtungszeitskala t .

**Abb.6.13 :**

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) für vier verschiedene Temperaturen und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=360\text{min}$ ($T_f=370\text{mK}$). — Die Pfeile am oberen Rand der Abbildungen markieren die Lage der Wartezeit t_w auf der Beobachtungszeitskala t .

**Abb.6.14 :**

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in der Nähe der Spinglastemperatur ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

7. Auswertung der Meßergebnisse

7.1 Vergleich von TRM-Zerfallsmessungen mit ac-Suszeptibilitätsmessungen

ac-Suszeptibilitätsmessungen wie auch TRM-Zerfallsmessungen sind dynamische Meßmethoden und beinhalten daher Informationen über die Spindynamik in magnetischen Systemen. Durch die beiden Meßarten wird dabei insgesamt ein Zeitbereich von über 10 Größenordnungen abgedeckt (χ_{ac} : $10^{-5} - 10^0 \text{ sec}$, TRM: $10^0 - 10^5 \text{ sec}$). χ_{ac} - und TRM-Messungen bieten daher die besten Voraussetzungen zur Untersuchung der Spindynamik in Spingläsern über einen breiten Beobachtungszeitraum, zumal man im Spinglas auch von einem breiten Relaxationszeitspektrum ausgeht.

Lundgren et al. [29] [30] leiten unter der Annahme eines breiten Relaxationszeitspektrums folgende Beziehung zwischen dem Zeitzerfall der TRM, dem Imaginärteil der ac-Suszeptibilität χ'' und der Dichte der Relaxationszeiten $g(\tau)$ im Spinglaszustand her:

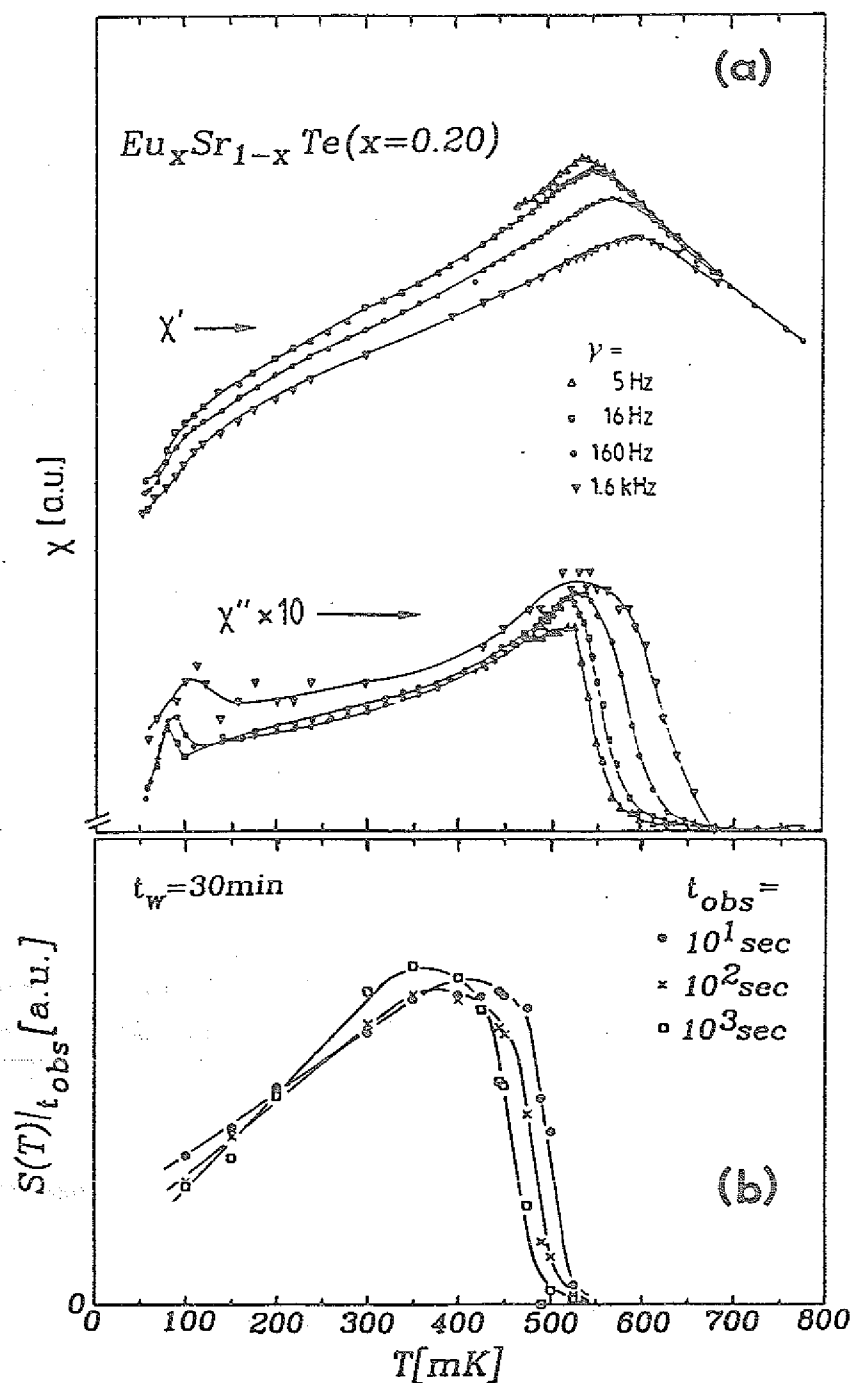
$$S(t)|_{t=t_{obs}} \sim \chi''(\nu)|_{\nu=\frac{1}{2\pi t_{obs}}} \sim g(\tau)|_{\tau=t_{obs}} \quad (7.1)$$

t_{obs} ist die Beobachtungszeit, die bei ac-Messungen durch die Frequenz des angelegten Wechselfeldes und bei TRM-Messungen durch die Zeitskala vorgegeben ist. Relaxationsrate und ac-Suszeptibilität spiegeln also direkt die Dichte der Relaxationszeiten im Relaxationszeitspektrum bei $\tau = t_{obs} = \frac{1}{2\pi\nu}$ wider.

Gl.(7.1) erlaubt einen direkten Vergleich von TRM-Zerfallsmessungen mit ac-Suszeptibilitätsmessungen.

In Abb.7.1b ist die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für drei verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} dargestellt (vgl. Abb.6.7). Abb.7.1a zeigt χ_{ac} -Messungen von Börgermann [5] an derselben Probe für verschiedene Frequenzen ν . Die aus statischen Magnetisierungsmessungen ermittelte Spinglastemperatur der Probe bestimmt sich zu $T_f^{dc}=500\text{mK}$; die χ_{ac} -Messung liefert $T_f^{ac}(\nu=16\text{Hz})=550\text{mK}$.

Der Vergleich von Abb.7.1a und b zeigt deutlich die starke Ähnlichkeit im Temperaturverlauf von Relaxationsrate S und Imaginärteil der ac-Suszeptibilität χ'' . S bzw. χ'' steigen mit abnehmender Temperatur bei Annäherung an T_f stark an und fallen dann allmählich wieder ab. Bei beiden Messungen ist zudem zu erkennen, daß sich die Meßkurven mit kürzeren Beobachtungszeiten t_{obs} bzw. wachsenden Frequenzen ν zu höheren Temperaturen verschieben. Die Verschiebung beträgt bei den TRM-Zerfallsmessungen etwa $\Delta T \approx 25\text{mK}$ pro Dekade und bei

**Abb.7.1:**

(a) Temperaturverlauf der ac-Suszeptibilität bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für verschiedene Meßfrequenzen ν [5]. — (b) Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) für verschiedene Beobachtungszeiten $t_{obs} = \frac{1}{2\pi\nu}$ ($T_f^{ac}(16\text{Hz})=550\text{mK}$, $T_f^{dc}=500\text{mK}$).

den χ_{ac} -Messungen etwa $\Delta T \approx 30\text{mK}$ pro Dekade. Dies entspricht einer relativen Änderung von $\Delta T/T_f \approx 5\%$ pro Dekade.

Bei den χ_{ac} -Messungen erkennt man zudem ein kleines Maximum im Verlauf von χ'' bei etwa 100mK . Das Auftreten dieses Maximums wird in dem folgenden Abschnitt 7.2 Gegenstand der Untersuchung sein.

Der beschriebene Temperaturverlauf von χ_{ac} bzw. S wird i.a. folgendermaßen interpretiert:

Bei hohen Temperaturen können die Spins einer von außen einwirkenden Störung (Wechselfeld bei χ_{ac} -Messungen, Feldänderung bei TRM-Messungen) direkt folgen. Bei Annäherung an T_f kommt es jedoch zu Korrelationen zwischen den Spins und es treten im System Relaxationen auf, die schnell in die Größenordnung der Meßzeit gelangen. Dies wird angedeutet durch die starke Zunahme von S bzw. χ'' bei T_f . Gleichzeitig nimmt die Suszeptibilität ab und führt zu einem Maximum im Temperaturverlauf von χ' . Da mit kürzerer Beobachtungszeit bzw. höherer Frequenz die Relaxationen bereits bei höheren Temperaturen in die Größenordnung der Meßzeit gelangen, verschiebt sich die Meßkurve entsprechend zu höheren Temperaturen. Mit weiter abnehmender Temperatur werden die Relaxationen im System dann immer langsamer und die Relaxationsrate des Zerfalls nimmt ab.

Vielfach wird die Verschiebung der Meßkurve bei T_f mit einem Arrhenius-Gesetz

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{E_a}{k_B T}} \quad (7.2)$$

verglichen, wie es z.B. im Néel'schen Modell der Blockade superparamagnetischer Cluster diskutiert wird (s. Kap.7.2). Gl.(7.2) beschreibt den Spinglasübergang als einen rein dynamischen Einfrierprozeß der magnetischen Momente in die Spinglasstruktur. Für $t_{obs} \rightarrow \infty$ geht T_f nach Gl.(7.2) gegen Null, d.h. erst bei $T=0$ liegt ein thermodynamischer Phasenübergang vor.

Für die Verschiebung der Spinglastemperatur mit der Beobachtungszeit folgt aus Gl.(7.2)

$$\Delta\left(\frac{1}{T_f}\right) = - \frac{1}{E_a[K]} \cdot \Delta(\ln \nu) = \frac{1}{E_a[K]} \cdot \Delta(\ln t_{obs}) \quad (7.3)$$

In ac -Suszeptibilitätsmessungen wird die Verschiebung von T_f durch die Verschiebung des Maximums im Temperaturverlauf von χ' angegeben. Die von Börgermann [5] ermittelten ac -Spinglastemperaturen $T_f^{ac}(\nu)$ der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ -Probe sind in Abb.7.2 gegen die Beobachtungszeit $t_{obs} = \frac{1}{2\pi\nu}$ aufgetragen (gefüllte Symbole).

Um in TRM-Zerfallsmessungen die Verschiebung der Meßkurven mit der Beobachtungszeit zu beschreiben, kann man wie bei χ'' -Messungen die ansteigende Flanke im Temperaturverlauf von $S(T)$ als Anzeichen für den Übergang in die Spinglasstruktur ansehen und die Temperatur, bei der die Flanke auftritt, zur Definition einer 'TRM-Spinglastemperatur' heranziehen. Es gilt dann: $T_f^{TRM}(t_{obs}) = T_f^{ac}(\nu = \frac{1}{2\pi t_{obs}})$. Die TRM-Spinglastemperaturen sind in Abb.7.2 durch die offenen Symbole gekennzeichnet.

Man erkennt, daß $1/T_f$ über den gesamten Beobachtungszeitraum linear mit $\log t_{obs}$ ansteigt. Dabei setzt sich die Verschiebung von T_f offenbar auch unterhalb $T_f^{dc} = 500\text{mK}$ weiter fort. Gl.(7.3) scheint also die Verschiebung von T_f mit der Beobachtungszeit richtig wiederzugeben. Der Spinglasübergang wäre danach wirklich ein rein dynamischer Prozeß.

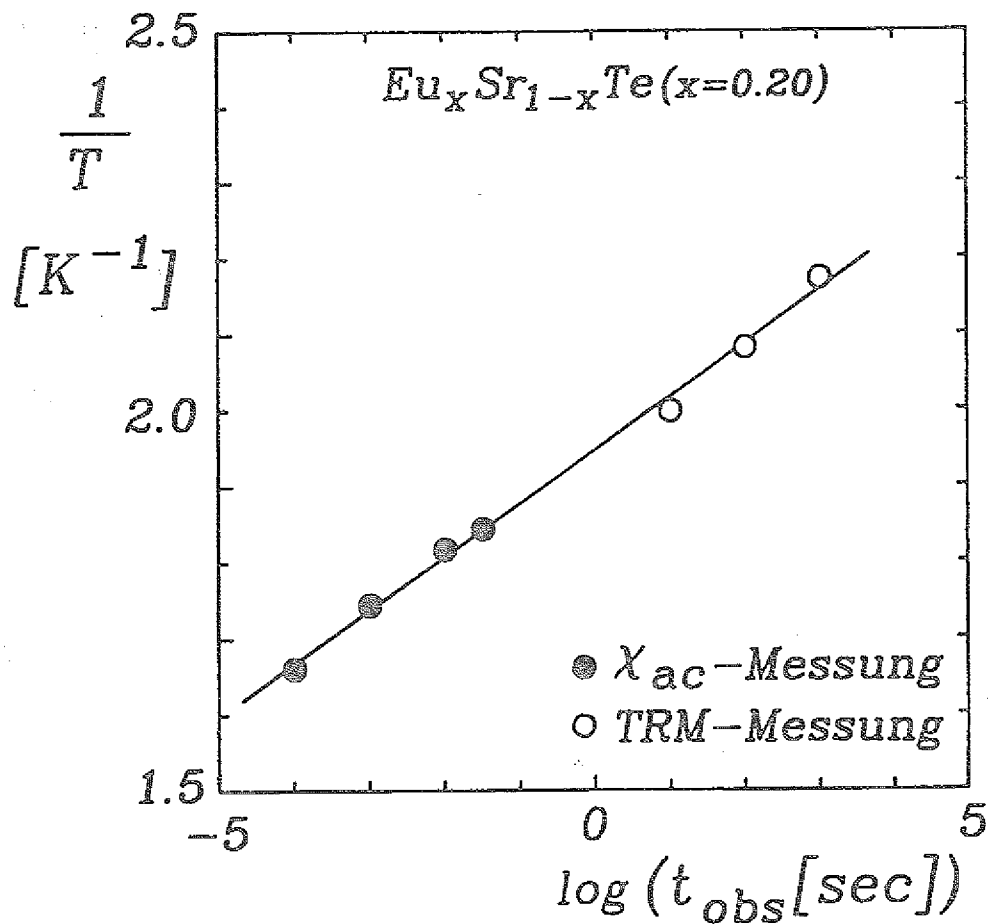
Wertet man jedoch die $T_f(t_{obs})$ -Abhängigkeit auf der Grundlage von Gl.(7.3) quantitativ aus und bestimmt aus der Steigung der in Abb.7.2 eingezeichneten Geraden die Aktivierungsenergie E_a , so erhält man einen viel zu hohen Wert für E_a . E_a beträgt 33K, weit mehr als die thermische Energie $k_B T$ oder die Austauschwechselwirkung J_1 bzw. J_2 . Vergleichbare Auswertungen an anderen Spinglassystemen liefern ebenfalls zu große Werte für E_a [5] [18] (vgl. auch Tab.7.1). Die dynamische Beschreibung (7.3) ist also nicht geeignet, den Spinglasübergang zu charakterisieren*.

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}(x = 0.20)$	:	$E_a = 28\text{K}$	$T_f^{dc} = 0.520\text{K}$	Hüser [18]
$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x = 0.20)$	:	$E_a = 28\text{K}$	$T_f^{dc} = 0.500\text{K}$	Börgermann [5]
"	:	$E_a = 33\text{K}$	$T_f^{dc} = 0.500\text{K}$	Abb.7.2
$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x = 0.175)$	:	$E_a = 19\text{K}$	$T_f^{dc} = 0.370\text{K}$	
$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x = 0.15)$	:	$E_a = 9\text{K}$	$T_f^{dc} = 0.235\text{K}$	

Tab.6.2 :

Anregungsenergien E_a , ermittelt aus der Verschiebung des χ_{ac} - bzw. TRM-Temperaturverlaufs mit der Beobachtungszeit auf der Grundlage eines Arrhenius-Gestzes.

* Von Bontemps et al. [31] wird in ähnlichen Untersuchungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}(x=0.40)$ für Beobachtungszeiten größer 10^2sec eine Abflachung des $1/T_f$ -Anstiegs beobachtet. Der Verlauf von $1/T_f$ scheint dort auf einen endlichen Wert bei T_f^{dc} zu extrapolieren. Maletta [32] wertet dies zusammen mit anderen Untersuchungsergebnissen als Anzeichen für ein kollektives Einfrieren der magnetische Momente in die Spinglasstruktur. Für ein kollektives Verhalten spricht auch der relativ steile Anstieg im Verlauf von S bzw. χ'' bei Durchfahren von T_f .

**Abb.7.2:**

Verschiebung des χ' -Maximums in ac-Suszeptibilitätsmessungen (●) und der $S(T)$ -Flanke in TRM-Zerfallsmessungen (○) mit der Beobachtungszeit.

Ein weiterer Ansatz zur Beschreibung der Frequenzabhängigkeit von T_f findet sich in der Arbeit von Lundgren, in der auch schon Gl.(7.1) abgeleitet wurde. Ausgangspunkt ist wieder eine breites Relaxationszeitspektrum $g(\tau)$, $\tau_{\min} < \tau < \tau_{\max}$. Spinglas(SG), Paramagnet(PM) und der Übergangsbereich SG-PM sind dabei in den dynamischen Messungen gekennzeichnet durch

$$\begin{aligned} \text{SG}(T < T_f) : \quad & \tau_{\min} \ll t_{\text{obs}} \ll \tau_{\max} \\ \text{SG} - \text{PM}(T \approx T_f) : \quad & \tau_{\min} \ll t_{\text{obs}} \approx \tau_{\max} \\ \text{PM}(T > T_f) : \quad & \tau_{\min}, \tau_{\max} \ll t_{\text{obs}} \end{aligned} \quad (7.4)$$

Für die Verschiebung von T_f ist $\tau_{\max}$ die entscheidende Größe, die bei T_f in die Größenordnung der Meßzeit kommt. Der relativ steile Anstieg von χ'' bei T_f deutet daraufhin, daß schon knapp unterhalb T_f $\tau_{\max}$ so groß ist, daß die meisten Spins dem Wechselfeld nicht mehr folgen können und blockiert sind.

Lundgren findet für die Frequenzabhängigkeit des χ' -Maximums in ac-Suszeptibilitätsmessungen mit (7.4):

$$\frac{\partial \chi'}{\partial \ln \omega} \approx \frac{2}{\pi} \chi'' \quad , \quad \omega = 2\pi\nu \quad (7.5)$$

Die Verschiebung des χ' -Maximums ist also direkt mit dem Imaginärteil χ'' verknüpft. Mit der Annahme $\chi' = \chi_0 \sim \frac{1}{T}$ und $\chi'' = \frac{\pi}{2} \chi_0 g(\tau)$ folgt aus Gl.(7.5):

$$\Delta\left(\frac{1}{T_f}\right) = \frac{1}{T_f} g(\tau) \Delta(\ln t_{\text{obs}}) \quad , \quad \tau = t_{\text{obs}} \quad (7.6)$$

Im Unterschied zu Gl.(7.3) hängt hier die Frequenzverschiebung von T_f neben der individuellen Form des Relaxationsprozesses vor allem von der Dichte der Relaxationszeiten $g(\tau)$ in der Nähe von $\tau = \tau_{\max} \approx t_{\text{obs}} = \frac{1}{2\pi\nu}$ ab. Nur für $g(\tau) = \text{konst.}$ und einem Arrhenius-Ansatz für $\tau_{\max}$ ist Gl.(7.6) identisch mit Gl.(7.3). Da $g(\tau)$ bei Spingläsern i.a. nicht bekannt ist, kann die Diskussion hier nur qualitativ sein.

In diesem Abschnitt wurde in einem Vergleich zwischen TRM- und χ_{ac} -Messungen versucht, etwas über die Natur des Spinglasüberganges zu erfahren. Dabei zeigte sich, daß die dynamische Beschreibung des Spinglasüberganges auf der Grundlage eines Arrhenius-Ansatzes nicht geeignet ist, die Messungen zu erklären. Der Spinglasübergang ist eher durch ein kollektives Einfrieren der magnetischen Momente in die Spinglasstruktur geprägt, wie es von Maletta in [32] herausgestellt wird.

7.2 Einfluß superparamagnetischer Cluster auf die Spindynamik in der Nähe der Perkolationsschwelle $x=x_p=0.136$

Im vorigen Abschnitt 7.1 wurde darauf hingewiesen, daß in den ac-Suszeptibilitätsmessungen von Börgermann an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) ein kleines Maximum im Temperaturverlauf von χ'' bei tiefen Temperaturen ($\approx 100\text{mK}$) auftritt (vgl. Abb.7.1). Ein solches Maximum wird auch von Hüser im Verlauf von χ'' bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ ($x=0.20$) im selben Temperaturbereich beobachtet [18].

Da, wie in Abschnitt 7.1 herausgestellt, χ'' und der Relaxationsrate S die gleiche Bedeutung zukommt (Maß für die Dichte der Relaxationszeiten bei $t=\frac{1}{2\pi\nu}$), sollte sich dieses Maximum auch in den TRM-Zerfallsmessungen zeigen. Dies ist auch der Fall, wie man in Abb.7.3 erkennt, in der der Temperaturverlauf von S für $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.10$) dargestellt ist.

Man erkennt bei beiden Proben ein Maximum im Temperaturbereich um $T=55\text{mK}$. Dieses Maximum verschiebt sich mit der Beobachtungszeit t_{obs} bei beiden Proben um etwa 5mK pro Dekade. Bei der $x=0.10$ -Probe ist dieses Maximum besonders ausgeprägt.

Börgermann und Hüser führen das Maximum in ihren χ'' -Messungen bei tiefen Temperaturen auf die Existenz einer geringen Zahl kleinerer superparamagnetischer Cluster im Spinglaszustand zurück. Im folgenden sollen die TRM-Zerfallsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ mit $x=0.175$ und $x=0.10$ Eu-Anteil unter diesem Gesichtspunkt näher untersucht werden.

Unter einem superparamagnetischen (spm.) Cluster versteht man mehrere magnetische Momente, die untereinander relativ stark gekoppelt sind aber unabhängig von der übrigen magnetischen Struktur sind. Größe und Anzahl dieser spm. Cluster hängen stark von der Konzentration der magnetischen Momente und von der Reichweite der magnetischen Wechselwirkungen im System ab. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ erwartet man spm. Cluster vor allem unterhalb der Perkolationsschwelle x_p , die sich unter der Annahme nur nächster und übernächster Nachbarwechselwirkung zwischen den Eu-Atomen zu 0.136 berechnet [6]. Man wird aber sicherlich auch oberhalb x_p im Spinglasbereich von einer endlichen Zahl kleinerer spm. Cluster bei tiefen Temperaturen ausgehen können.

Die Dynamik der spm. Cluster wird beschrieben durch das Néel'sche Modell [33]:

Legt man von außen eine Störung an das System z.B. bei TRM-Zerfallsmessungen durch das Ausschalten des äußeren Magnetfeldes, so müssen die Cluster lokale Energiebarrieren E_a überwinden. Dies erfolgt mit einer mittleren Rate R bzw.

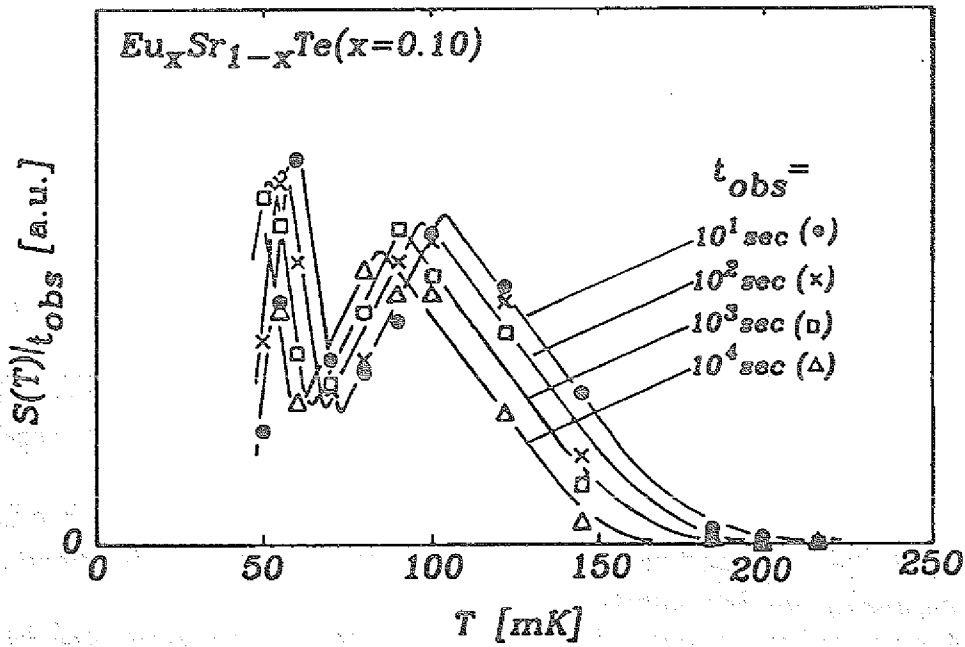
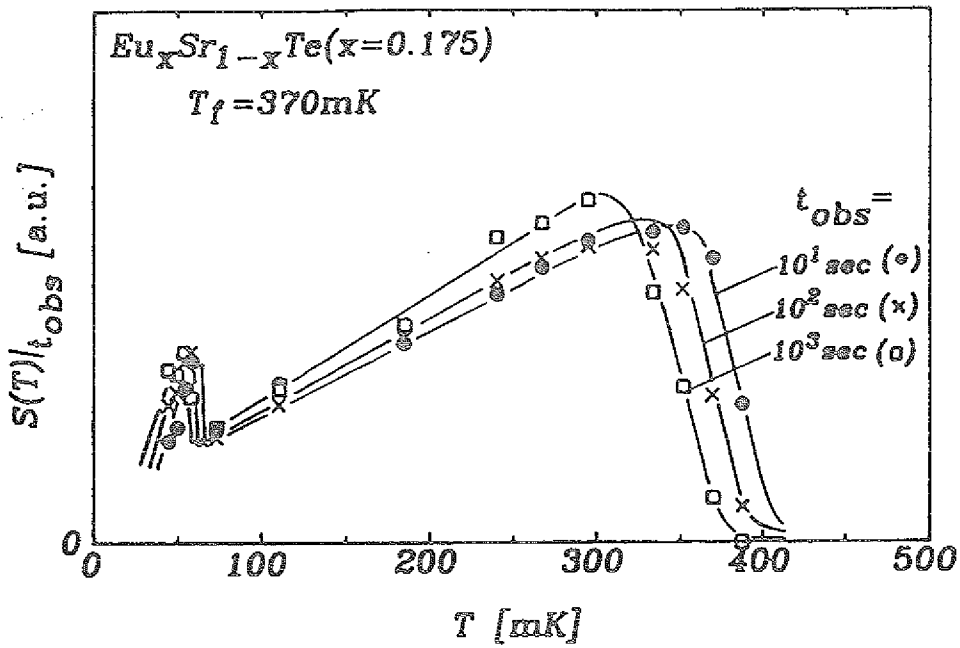


Abb.7.3 :

Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.10$) für verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} .

mittleren Zeit $\tau=1/R$, die in dem Modell von Néel eine Temperaturabhängigkeit gemäß einem Arrhenius-Gesetz besitzt:

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{E_a}{k_B T}} \quad (7.7)$$

Cluster, deren Relaxationszeit bei tiefen Temperaturen größer als die Beobachtungszeit t_{obs} ist, erscheinen blockiert. Erst wenn τ mit wachsender Temperatur in die Größenordnung von t_{obs} kommt, können die Cluster die Energiebarriere überwinden und relaxieren. Dies führt bei TRM- bzw. χ_{ac} -Messungen zu einer erhöhten Relaxationsrate bzw. einem Maximum im Verlauf von S bzw. χ'' bei

$$T_\tau = \frac{E_a [K]}{\ln(\tau/\tau_0)} \quad (7.8)$$

Diese Gleichung beinhaltet auch, daß sich das Maximum mit wachsender Beobachtungszeit zu tieferen Temperaturen verschiebt. Aus der Temperaturverschiebung von T_τ mit τ läßt sich aus Gl.(7.8) die Energiebarriere E_a bestimmen. Man erhält aus den Messungen an $Eu_xSr_{1-x}Te(x=0.10)$ und $Eu_xSr_{1-x}Te(x=0.175)$ einen Wert für E_a von 1.4K.

Die Ursache für das Auftreten von Energiebarrieren ist nach [34] im wesentlichen in Anisotropien infolge der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten innerhalb der Cluster zu sehen.

Die Wechselwirkung zwischen zwei Dipolen $\vec{m}_1$ und $\vec{m}_2$ am Ort $\vec{r}_1$ und $\vec{r}_2$ berechnet sich zu

$$E^{dd} = \frac{1}{4\pi\mu_0} \left(\frac{\vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2}{r_{12}^3} - 3 \frac{(\vec{m}_1 \cdot \vec{r}_1)(\vec{m}_2 \cdot \vec{r}_2)}{r_{12}^5} \right) \quad (7.9)$$

mit $r_{12} = |\vec{r}_2 - \vec{r}_1|$. Die Anisotropie der spm. Cluster wird durch den hinteren Term in Gl.(7.9) verursacht.

In Anlehnung an [34] sind die Anisotropiebarrieren E_a^{dd} der 11 kleinsten Cluster auf der Grundlage von Gl.(7.9) berechnet worden und in Tab.(7.2) zusammengestellt.

Man erkennt, daß E_a^{dd} für die aufgeführten Cluster im Bereich zwischen 0 K und 2.4 K liegt. Der aus dem Experiment ermittelte Wert von $E_a=1.4K$ stimmt größenordnungsmäßig mit E_a^{dd} überein.

In [34] wird anhand analytisch-numerischer Rechnungen gezeigt, daß bei geringen Eu-Konzentrationen der größte Einfluß vor allem von den ferromagnetisch koppelnden Spinpaaren (Cluster 2 in Tab.7.2) herrührt. Dies erscheint plausibel, denn Cluster 2 ist der neben den Einzelspins zahlenmäßig am stärksten vertretene Clustertyp. Die Zuordnung der Messungen zu diesem Clustertyp ist hier allerdings zu vage auch wenn der ermittelte Wert für E_a von 1.4K relativ gut mit dem berechneten Wert von $E_a^{dd}=1.2K$ übereinstimmt.

Konsistent mit der Beschreibung durch spm. Cluster auf der Grundlage des Néel'schen Modells ist weiterhin die Tatsache, daß sowohl bei der $x=0.10$ -Probe als auch bei der $x=0.175$ -Probe das Maximum in der Relaxationsrate im selben Temperaturbereich liegt und sich auch bei beiden Proben um denselben Betrag mit der Beobachtungszeit verschiebt. Denn die Dynamik eines spm. Clusters hängt nicht von der Konzentration an magnetischen Momenten im System ab.

Einfluß hat die Konzentration allerdings auf die Häufigkeit einzelner Clustertypen. So kommt es, daß das Maximum im Temperaturlauf von S bei der $x=0.10$ -Probe wesentlich ausgeprägter ist als bei der $x=0.175$ -Probe. Dies liegt daran, daß die relative Häufigkeit kleinerer spm. Cluster mit abnehmender Eu-Konzentration größer wird. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) sind etwa 4% aller Spins in Clustern bestehend aus einem, zwei oder drei magnetischen Momenten gruppiert, während es bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.10$) insgesamt 23% aller magnetischen Momente sind (siehe Tab.7.2).

Tab.7.2 :

Anisotropiebarrieren superparamagnetischer Cluster in $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$.
(— : ferromagnetische Kopplung, ... : antiferromagnetische Kopplung).

k		$n_k[\%]$		$E_a^{dd}[\text{K}]$
		$x=0.10$	$x=0.175$	
1		15.0	3.1	0
2		3.9	0.7	1.2
3		1.3	0.2	0
4		0.3	<0.1	1.7
5		0.3	<0.1	1.0
6		0.7	0.1	1.4
7		0.2	<0.1	2.4
8		0.5	<0.1	1.1
9		0.4	<0.1	0.9
10		0.2	<0.1	0.3
11		<0.1	<0.1	0
		$\Sigma=23\%$	$\Sigma=4\%$	

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß die erhöhte Relaxationsrate in den TRM-Zerfallsmessungen im Temperaturbereich um $T=55\text{mK}$ auf die Dynamik kleinerer spm. Cluster zurückgeführt werden kann.

Ungeklärt ist aber noch, woher die erhöhte Relaxationsrate bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.10)$ -Probe im Temperaturbereich um 100mK herrührt.

Bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ -Probe ist der Anstieg der Relaxationsrate bei 370mK auf das Einfrieren magnetischer Momente in die Spinglasstruktur zurückzuführen (vgl. Kap.7.1). Der hierzu qualitativ sehr ähnliche $S(T)$ -Verlauf suggeriert bei der $x=0.10$ -Probe ebenfalls einen Übergang in die Spinglasstruktur bei $T \approx 120\text{mK}$. Diese Probe kann aber kein Spinglas sein, da die Konzentration x hier unter der Perkolationsschwelle $x_p=0.136$ liegt. Die $x=0.10$ -Probe sollte ausschließlich spm. Verhalten zeigen.

Ob die $x=0.10$ -Probe nun wirklich als Superparamagnet anzusehen ist oder aber auch hier ein Spinglas vorliegt, soll im folgenden diskutiert werden.

Angenommen, der Anstieg in der Relaxationsrate im Temperaturbereich um 120mK markiere bei der $x=0.10$ -Probe wirklich den Übergang in die Spinglasstruktur; die $x=0.10$ -Probe sei also ein Spinglas. Dann kann die Perkolationsschwelle nicht bei $x=0.136$ liegen sondern muß tiefer liegen. Das ist dann möglich, wenn die Reichweite der magnetischen Wechselwirkung nicht, wie hier immer angenommen, nur bis zu übernächsten Nachbarn geht sondern darüber hinaus. Die Perkolationsschwelle für Wechselwirkung bis zu drittnächsten Nachbarn im fcc-Kristall wird in [34] mit 0.061 angegeben, liegt also weit unterhalb $x=0.10$. n -Streumessungen an dem vergleichbaren System EuS [10] zeigen aber, daß die magnetische Wechselwirkung im wesentlichen auf nächste und übernächste Nachbarwechselwirkung beschränkt bleibt. Es werden an EuS zwar auch Wechselwirkungen bis zu fünftnächsten Eu -Nachbarn beobachtet; die Stärke dieser längerreichweitigen Wechselwirkung ist allerdings gegenüber J_1 und J_2 relativ gering und sollte daher keine große Rolle spielen.

Inwieweit diese Aussagen nun auch auf EuTe zutreffen, mag dahingestellt sein. Leider gibt es bislang keine vergleichbaren n -Streudaten für EuTe . EuS und EuTe sind zwar sehr ähnliche Systeme. Dies berechtigt aber noch nicht zu dem Schluß, daß bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ die Perkolationsschwelle ebenfalls bei 0.136 liegt.

Es gibt allerdings weitere experimentelle Anzeichen, die bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ für den Übergang in den spm. Bereich bei $x \approx 0.136$ sprechen. So zeigt der in Abb.6.2 dargestellte Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung ein qualitativ unterschiedliches Verhalten für $x > x_p$ und $x < x_p$.

Oberhalb $x=0.15$ erkennt man im Verlauf von M_{dc} eine ausgeprägte Anomalie, die den Übergang in die Spinglasstruktur angibt.

Unterhalb $x=0.15$ erkennt man dagegen nur eine allmähliche Abflachung von M_{dc} mit abnehmender Temperatur. Ein solcher Verlauf deutet nicht auf einen kollektiven Einfrierprozeß der magnetischen Momente in die Spinglasstruktur hin sondern eher auf einen in einem breiten Temperaturbereich ablaufenden Prozeß, wie er z.B. durch das Ausbilden spm. Cluster hervorgerufen wird. Bei der $x=0.10$ -Probe

setzt der flachere Verlauf von M_{dc} bei ungefähr 120mK ein in einem Bereich, wo auch in dem $S(T)$ -Verlauf der Anstieg in der Relaxationsrate auftritt. Wertet man in diesem Bereich die Verschiebung der $S(T)$ -Kurven mit der Beobachtungszeit auf der Grundlage von Gl.(7.8) aus, so erhält man eine Energie von $E_a=4K$. Einen vergleichbaren Wert erhält man auch aus der Frequenzverschiebung des χ' -Maximums in χ_{ac} -Messungen an dieser Probe ($\nu=16Hz$: χ' max. bei $T \approx 153mK$; $\nu=160Hz$: χ' max. bei $T \approx 166mK \Rightarrow E_a = 4.5K$). Bei vergleichbaren Auswertungen an $Eu_xSr_{1-x}Te$ -Proben mit $x > 0.136$ findet man dagegen i.a. unphysikalisch hohe Werte für E_a (vgl. Kap.7.1). Bei der $x=0.10$ -Probe liegt E_a allerdings in einer Größenordnung, in der man Anisotropiebarrieren spm. Cluster durchaus noch erwarten kann. Dies müssen auf alle Fälle größere Cluster sein als in Tab.7.2 aufgelistet. Dies ist aber auch zu erwarten, denn knapp unterhalb der Perkolationsschwelle werden die Cluster im Mittel relativ groß sein und dementsprechend auch die Anregungsenergien, wobei die ermittelte Anregungsenergie von 4K sicherlich keinem bestimmten Clustertyp zugeordnet werden kann sondern eher einem mittleren Wert einer breiten Clusterverteilung entspricht. Stärker als bei den kleineren Clustern wird die Dynamik der größeren Cluster sicherlich auch noch durch Frustrationseffekte beeinflusst sein. Dies kann ebenfalls zu höheren Anregungsenergien führen.

Die erhöhte Relaxationsrate bei der $x=0.10$ -Probe im Temperaturbereich um 100mK kann also durch spm. Verhalten erklärt werden. Die $x=0.10$ -Probe ist danach kein Spinglas.

In [32] diskutiert Maletta in ähnlicher Weise wie hier die Frequenzabhängigkeit des χ' -Maximums verschiedener $Eu_xSr_{1-x}S$ -Proben und kommt ebenfalls zu dem Schluß, daß unterhalb $x=0.136$ die Dynamik durch spm. Cluster beschrieben werden kann, wohingegen für $x > 0.136$ die Dynamik durch Spinglasverhalten zu erklären ist.

Die Untersuchung der an $Eu_xSr_{1-x}Te(x=0.10)$ und $Eu_xSr_{1-x}Te(x=0.175)$ vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen bestätigt die von Börgermann und Hüser ausgesprochene Vermutung, daß sich bei tiefen Temperaturen kleinere spm. Cluster in den dynamischen Messungen widerspiegeln. Die Messungen lassen sich sehr gut auf der Grundlage des Néel'schen Modells erklären, wobei die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten innerhalb der Cluster für Anisotropiebarrieren sorgen. Bei der $x=0.10$ -Probe wurden Evidenzen dafür aufgezeichnet, daß die erhöhte Relaxationsrate im Temperaturbereich um 100mK ebenfalls auf die Dynamik spm. Cluster zurückgeführt werden kann. Die $x=0.10$ -Probe ist danach kein Spinglas sondern ein Superparamagnet. Die Perkolationsschwelle für den Übergang in den Spinglaszustand liegt dann bei $Eu_xSr_{1-x}Te$ wie bei $Eu_xSr_{1-x}S$ bei $x_p=0.136$.

7.3 Alterungseffekte im Spinglaszustand

Die in Kap.6.3 vorgestellten Messungen zeigen deutlich einen Einfluß der Wartezeit auf den Zeitzerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung. Der Zeitzerfall der TRM ist umso langsamer, je größer die Verweildauer des Systems vor der Messung im Spinglaszustand war. Charakteristisch hierbei ist eine erhöhte Relaxationsrate S des TRM-Zerfalls zu einer Beobachtungszeit t , die vergleichbar ist mit der Wartezeit t_w . In einem Temperaturbereich um $T/T_f=0.80$ zeigt sich dies besonders deutlich durch ein Maximum im Verlauf von S bei $t \approx t_w$.

Solche Alterungseffekte findet man nicht nur in Spingläsern sondern auch in anderen Systemen. Z.B. treten in den viskoelastischen Eigenschaften amorpher Polymere vergleichbare Alterungseffekte auf. Diese sind von Strijk intensiv studiert worden [35].

1988 wurden von Rossel, Maeno und Morgenstern an YBaCuO-Einkristallen Alterungseffekte im Zeitverhalten der nullfeldgeköhlten Magnetisierung beobachtet [36]. Interessant ist, daß sich auch dort der Einfluß der Wartezeit durch eine erhöhte Relaxationsrate bei $t \approx t_w$ bemerkbar macht.

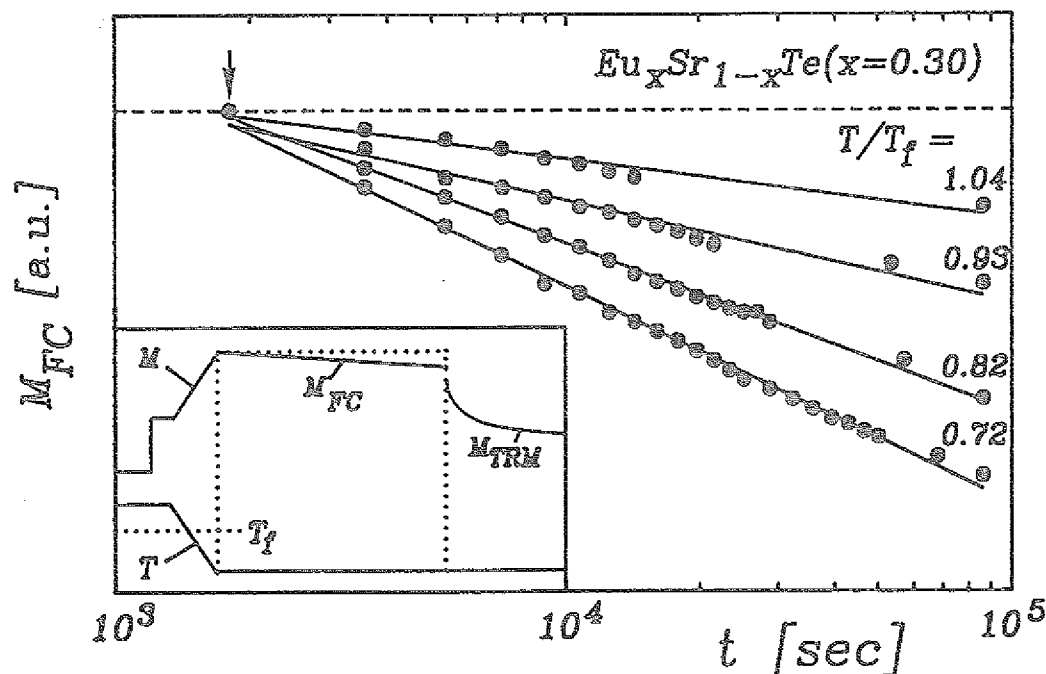
Man sieht, daß Alterungsprozesse nicht nur in Spingläsern auftreten sondern auch in ganz anderen Systemen vorkommen.

Im folgenden soll in einer zunächst phänomenologischen Betrachtung der Frage nachgegangen werden, worauf die Alterungsprozesse im Spinglaszustand zurückzuführen sind.

Die Tatsache, daß der Spinglaszustand Alterungsprozessen unterliegt, deutet daraufhin, daß der Spinglaszustand kein Gleichgewichtszustand ist. Als besonders starkes Indiz hierfür kann die hier in den Messungen beobachtete und in Abb.7.4 für $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$) dargestellte Zeitabhängigkeit der feldgeköhlten Magnetisierung M_{FC} gewertet werden.

Man erkennt, daß M_{FC} nicht konstant ist, wie man vielleicht erwarten würde, sondern mit der Zeit abnimmt. Diese Abnahme ist allerdings äußerst gering; die Zeitabhängigkeit von M_{FC} beträgt im Vergleich zur Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $T/T_f=0.82$ nur etwa $S_{M_{FC}}/S_{TRM} \approx 6\%$.

Erklärt werden kann die Zeitabhängigkeit der feldgeköhlten Magnetisierung dadurch, daß das Spinsystem nicht wie in Kap.2.3b geäußert beim Abkühlen in den Spinglaszustand direkt die Gleichgewichtskonfiguration einnimmt sondern zunächst in einem metastabilen Zustand hängenbleibt. Möglich ist aber auch, daß durch die Temperaturänderung im Spinglaszustand das System in einen metastabilen Zustand angehoben wird. Experimentelle Hinweise hierauf ergeben sich z.B. aus einem Einfluß der Abkühlrate auf den Verlauf von M_{FC} [37].

**Abb.7.4:**

Zeitabhängigkeit der feldgekühlten Magnetisierung M_{FC} bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$).
 — Der Verlauf von M_{FC} ist für die verschiedenen Temperaturen auf einen festen Wert 30min nach Durchfahren der Spinglastemperatur bzw. bei $T/T_f=1.04$ 30min nach Erreichen der Meßtemperatur bezogen (s. Pfeil).

Mit der Zeit strebt das System dem Gleichgewichtszustand entgegen, indem das Spinsystem sich in den Spinstellungen ständig umordnet. Dies äußert sich in der Abnahme der feldgekühlten Magnetisierung. Erst nach sehr langer Zeit wird das System das Gleichgewicht erreichen.

In ähnlicher Weise argumentieren Lundgren et al. [7] [20], die an AuFe ebenfalls eine Zeitabhängigkeit von M_{FC} beobachten*.

Mit der zeitlichen Veränderung der Spinstruktur im Spinglaszustand ist auch eine Veränderung der Spinkorrelationen im System zu erwarten. Das Relaxationszeitspektrum wird deshalb kein statisches Spektrum sein sondern ein Spektrum, das sich mit dem Alter des Spinglaszustandes ändert. Um dies zu dokumentie-

* Chamberlain weist in [38] daraufhin, daß er in seinen Messungen an AgMn eine solche Zeitabhängigkeit nicht sieht. Er äußert die Vermutung, daß die von Lundgren beobachtete Zeitabhängigkeit von M_{FC} möglicherweise von einem Abkühlen der Probe in einem nicht konstanten lokalen Feld herrührt.

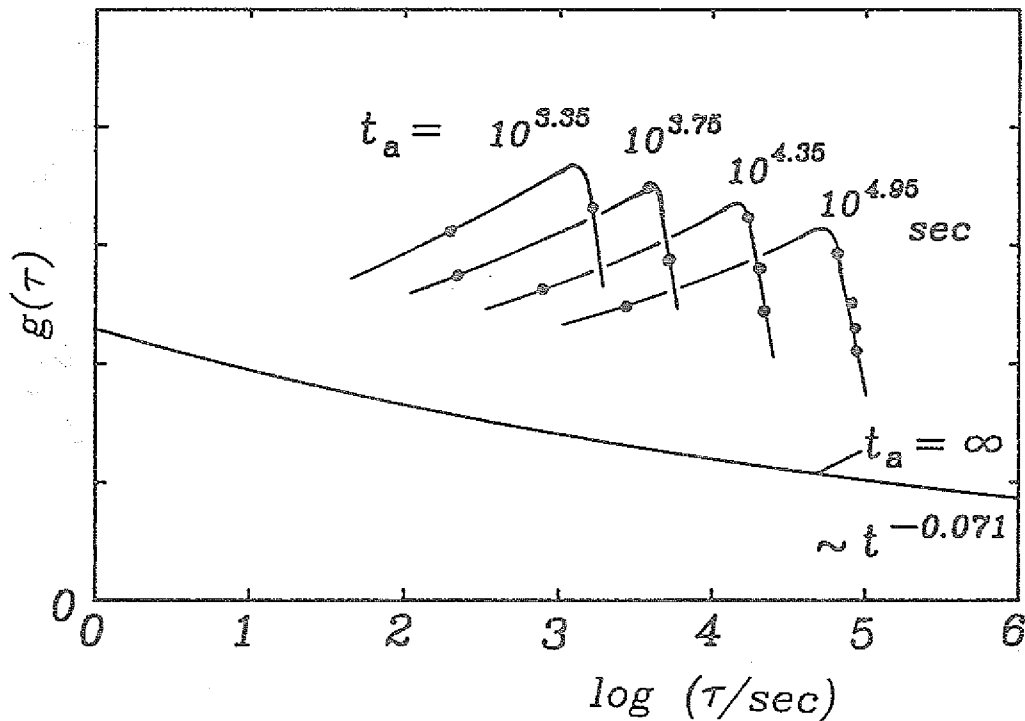


Abb.7.5:

Entwicklung des Relaxationszeitspektrums $g(\tau)$ mit dem Alter des Spinglaszustandes $t_a = t_w + t_{\text{obs}}$, ($t_{\text{obs}} = \tau$). — Das Spektrum wurde ermittelt aus TRM-Zerfallsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$) ($T/T_f=0.82$) auf der Grundlage von Gl.(7.10).

ren ist in Abb.7.5 die zeitliche Entwicklung des Relaxationszeitspektrums von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$) bei $T/T_f=0.82$ aufgetragen. Das Relaxationszeitspektrum wurde dabei in Anlehnung an [7] aus folgender Beziehung ermittelt:

$$g(\tau)|_{t_a=t_w+t_{\text{obs}}} \sim S(t)|_{t=t_{\text{obs}}}, \quad \tau = t_{\text{obs}} \quad (7.10)$$

(vgl. Gl.(7.1)), wobei S die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls ist, τ der Beobachtungszeit t_{obs} entspricht und $t_a = t_w + t_{\text{obs}}$ das Alter des Spinglaszustandes angibt. Das Gleichgewichtsspektrum ist hier unter der Annahme eines Potenzzerfalls der TRM für $t_a \rightarrow \infty$ ($t_w \gg t$) der quantitativen Analyse der TRM-Zerfallsmessungen in Kap.8 vorweggenommen.

Man erkennt in Abb.7.5, daß sich das Relaxationszeitspektrum mit dem Alter des Spinglaszustandes ändert und wie eine 'Welle' mit t_a zu größeren Zeiten schiebt. Die Front dieser Welle liegt etwa bei t_w . Für $t_a \rightarrow \infty$ wandert diese Welle aus dem Beobachtungszeitfenster und man erhält den relativ flachen Potenzverlauf von $g(\tau)$. Erst für sehr lange Wartezeiten wird man in den Messungen dieses Gleichgewichtsspektrum sehen.

Die Wartezeitabhängigkeit des TRM-Zerfalls ist also zunächst in Zusammenhang mit einem sich mit dem Alter des Spinglaszustandes verändernden Relaxationszeitspektrum zu sehen [7]. Mögliche Ursache für das sich zeitlich verändernde Relaxationszeitspektrum kann in Veränderungen der Spinkorrelationen im System in Folge von Umordnungsprozessen liegen. Die Abnahme der feldgeköhlten Magnetisierung mit der Zeit deutet auf solche Nichtgleichgewichtsprozesse hin*.

Eine nicht nur phänomenologische Beschreibung der oben beschriebenen Alterungseffekte ist bislang im wesentlichen in zwei theoretischen Modellen vorgenommen worden, in einem 'Droplet'-Modell von Fisher u. Huse [40] und in einem 'Domänen'-Modell von Koper u. Hilhorst [41]. Beide Modelle sind in vielen Punkten sehr ähnlich und beruhen auf einer mesoskopischen Betrachtung der Dynamik kleinerer Spinbereiche (Droplets, Domänen) im Spinglaszustand. Diese Spinbereiche sind dadurch gekennzeichnet, daß in ihnen Spinkorrelationen auftreten, deren Dynamik nicht unterscheidbar ist von der im Gleichgewicht. Diese Gleichgewichtsspinkorrelationen erstrecken sich auf einer Längenskala R , die — und das ist grundlegend in beiden Modellen — mit dem Alter des Spinglaszustandes kontinuierlich anwächst. Dies impliziert direkt ein zeitabhängiges Relaxationszeitspektrum, wie es oben schon diskutiert wurde**.

Nach einer Zeit t_w besitzen diese Domänen bzw. Droplets einen charakteristischen Durchmesser R_w . Stört man das System jetzt von außen, so wird die Dynamik des Systems in bestimmter Weise von R_w abhängen.

* Als einen weiteren Hinweis auf ein zeitabhängiges Relaxationszeitspektrum lassen sich χ_{ac} -Messungen von Lundgren et al. [39] an CuMn werten. Sie beobachten, daß χ'' bei einer Temperaturänderung im Spinglaszustand zunächst steil ansteigt und dann allmählich wieder abfällt und sich dem Gleichgewichtswert nähert. Da $\chi'' \sim g(\tau)$ ist, deutet dies auf ein sich mit der Zeit veränderndes Relaxationszeitspektrum $g(\tau)$ hin.

** Eine weitere wichtige Größe in diesen Modellen spielt eine sog. Überlapp-Länge $I(\Delta T, \Delta H)$, die eine maximale Längenskala angibt, auf der das Spinsystem ähnliche Spinkorrelationen aufweist einmal bei der Temperatur T und dem äußeren Magnetfeld H und einmal bei $T + \Delta T$ und $H + \Delta H$. I ist umso kleiner, je größer ΔT und ΔH sind. Die für die Dynamik des Systems relevante Größe der Droplets bzw. Domänen ist $\min(R, I)$. Bei TRM-Zerfallsmessungen mit $\Delta T = 0$ ist bei kleinen Feldänderungen ΔH i.a. $R < I(\Delta H)$.

In dem Modell von Fisher u. Huse wird für das Anwachsen der Droplets ein Gesetz der Form

$$R \sim [\ln(t_a/\tau_0)]^{1/\xi} \quad , \quad t_a = t_w + t \quad (7.11)$$

angesetzt, wobei t_a das Alter des Spinglaszustandes ist, τ_0 eine mikroskopische Zeitkonstante darstellt und ξ das Anwachsen von Clusterenergiebarrieren mit deren Größe beschreibt.

Weiterhin wird vorausgesetzt, daß sich in den Messungen Korrelationen widerspiegeln auf einer Längenskala L , die in ähnlicher Weise mit der Beobachtungszeit anwächst wie R :

$$L \sim [\ln(t/\tau_0)]^{1/\xi} \quad (7.12)$$

Bei kurzen Beobachtungszeiten $t \ll t_w$ werden deshalb im wesentlichen Gleichgewichtskorrelationen beobachtet ($L \ll R_w$). Sobald die Beobachtungszeit jedoch in die Größenordnung der Wartezeit kommt, wird die Dynamik durch Nichtgleichgewichtsprozesse geprägt sein ($L \approx R_w$). Der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall wird im Modell von Fisher u. Huse qualitativ durch den Übergang von (Quasi-)Gleichgewichtsdynamik ($t \ll t_w$) zu Nichtgleichgewichtsdynamik ($t \gg t_w$) begründet.

In dem Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst wird die Dynamik auf der Grundlage eines 'dynamisierten' fraktalen Clustermodells abgeleitet. Für das Wachstum der Domänen wird dabei ein Potenzverhalten angenommen:

$$R \sim t^p \quad (7.13)$$

Koper u. Hilhorst gelangen zu einer relativ komplizierten Formel für den Zeitzerfall der TRM. Diese Formel beschreibt den Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall allerdings qualitativ sehr gut und soll deshalb in Kap.8 noch ausführlicher diskutiert werden.

Zum Schluß dieses Abschnitts soll der Frage nachgegangen werden, warum der Einfluß der Wartezeit in den TRM-Zerfallsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Temperaturbereich um $T/T_f \approx 0.80$ am stärksten ist und mit abnehmender Eu-Konzentration und abnehmender Temperatur geringer wird. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) ist der t_w -Einfluß bei $T/T_f=0.50$ in den Messungen sogar überhaupt nicht mehr zu erkennen. Lundgren et al. [42] berichten dagegen, daß sich in ihren Messungen an CuMn auch noch bei $T/T_f=0.10$ Wartezeiteffekte zeigen.

Interessant ist in diesem Zusammenhang, daß auch in Messungen der viskoelastischen Eigenschaften amorpher Polymere von Strijk [35] ebenfalls ein Verschwinden der Alterungseffekte bei tiefen Temperaturen beobachtet wird. Dies wird von Strijk dadurch erklärt, daß bei tiefen Temperaturen die größeren Moleküle nicht den Platz finden und auch nicht die Beweglichkeit besitzen, sich umzuordnen und deshalb nicht zu Alterungseffekten beitragen.

Die Ursache für die Abnahme des t_w -Einflusses bei tiefen Temperaturen kann durch eine geringere thermische Aktivierung der Nichtgleichgewichtsprozesse im System erklärt werden.

Bei tiefen Temperaturen werden Umordnungsprozesse im System nur wenig thermisch unterstützt. Der TRM-Zerfall zeigt nur eine geringe Wartezeitabhängigkeit. Mit wachsender Temperatur nehmen die Nichtgleichgewichtsprozesse im System dann zu und der t_w -Einfluß wird deutlicher*.

In der Nähe von T_f werden diese Prozesse dann durch die immer stärker werdenden thermischen Fluktuationen überlagert und gestört, so daß der Einfluß der Wartezeit wieder abnimmt**.

Im Temperaturbereich um $T/T_f=0.80$ zeigt sich der Einfluß der Wartezeit am deutlichsten.

Die thermische Aktivierung der dynamischen Prozesse im Spinglas hängt aber nicht nur von der relativen Temperatur T/T_f ab, sondern auch von der absoluten Temperatur. Da mit wachsender Eu-Konzentration x die Spinglastemperatur T_f ansteigt, wird verständlich, warum bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ der Einfluß der Wartezeit (bei gleicher relativer Temperatur T/T_f) deutlicher ist als bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.15)$ -Probe.

Daß Lundgren an CuMn auch noch bei $T/T_f=0.10$ Wartezeiteffekte beobachtet, hier an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ dagegen bereits bei $T/T_f=0.50$ kein t_w -Einfluß mehr zu erkennen ist, liegt daran, daß die Spinglastemperatur der von Lundgren untersuchten CuMn-Probe 45.3K beträgt, also wesentlich größer ist als bei den hier untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben. Bei $T/T_f=0.10$ beträgt dort die thermische Energie immer noch 4.5K, während bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ mit einer Spinglastemperatur von $T_f=370\text{mK}$ diese bei $T/T_f=0.50$ nur etwa 0.2K beträgt.

* In Messungen an der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ -Probe wird eine Zunahme der Zeitabhängigkeit der feldgekühlten Magnetisierung von $T/T_f=0.50$ nach $T/T_f=0.80$ beobachtet.

** Die Zeitabhängigkeit von $M_{FC}(t)$ nimmt bei Annäherung an T_f wieder ab (vgl. Abb.7.4).

8. Quantitative Beschreibung des TRM-Zerfalls

In den letzten Jahren sind einige Modelle entwickelt worden, die den Zeitzerfall der Thermo-Remanenten-Magnetisierung nicht nur qualitativ sondern auch quantitativ zu beschreiben versuchen. So werden für den TRM-Zerfall Beschreibungen z.B. durch ein Potenzgesetz, ein logarithmisches Zerfallsgesetz oder ein sog. gestrecktes Exponentialgesetz (GEG) vorgeschlagen. Auch eine Kombination dieser Gesetze findet man in der Literatur.

Das Potenzgesetz und das logarithmische Zerfallsgesetz beschreiben hier allerdings nicht den TRM-Zerfall, wie man relativ schnell durch entsprechende (halb)logarithmische Auftragung der TRM-Zerfallsdaten nachprüfen kann (vgl. Abb.8.1 und [5]). Auf das GEG wird in Abschnitt 8.1 noch ausführlicher eingegangen.

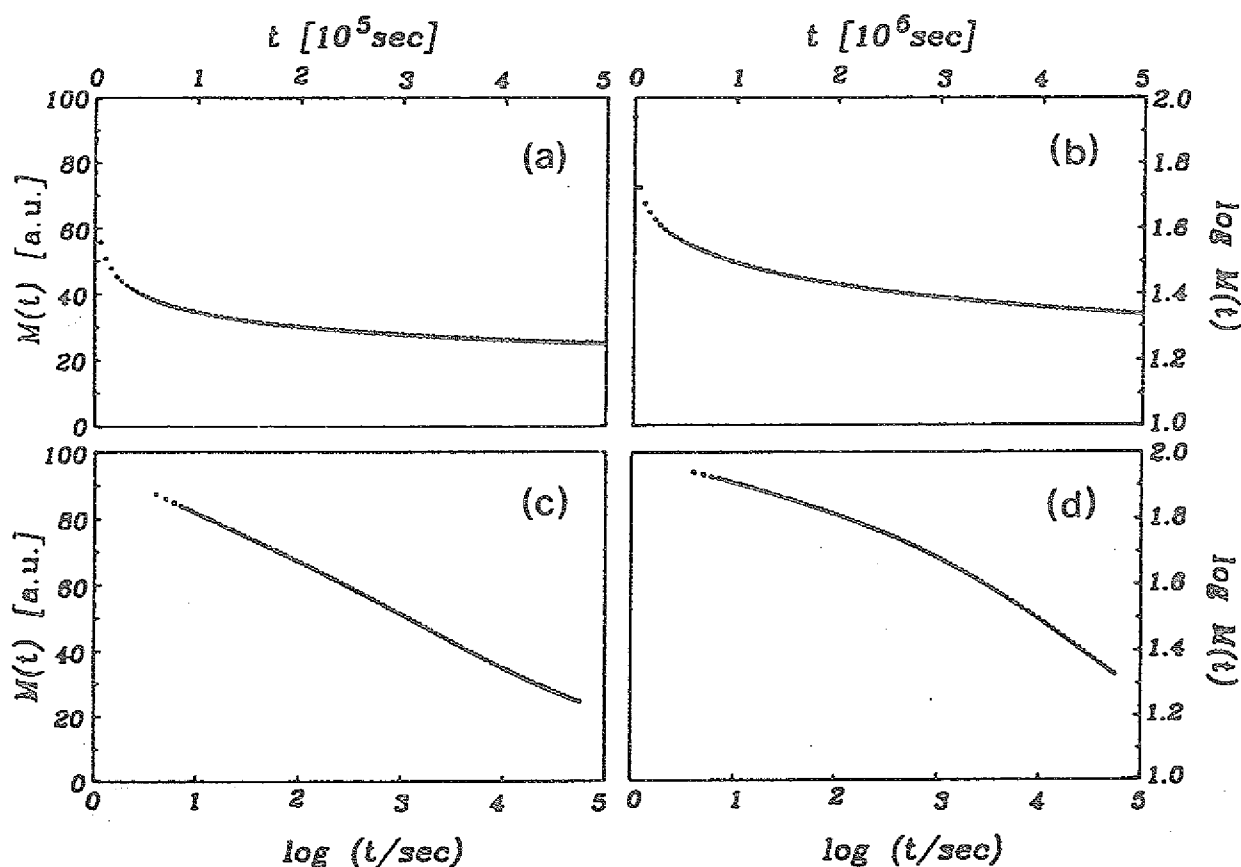
Viele der Beschreibungen beruhen immer noch auf einer stark phänomenologischen Betrachtung der Spindynamik im Spinglas. Meist wird in den Modellen auch nur die Gleichgewichtsdynamik behandelt, weil diese leichter zu handhaben ist. Nichtgleichgewichtseffekte, wie sie in Kap.7.3 herausgestellt wurden, sind bislang im wesentlichen nur in dem schon erwähnten Droplet-Modell von Fisher u. Huse und in dem Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst enthalten. Beide Modelle werden in Abschnitt 8.2 nochmals aufgegriffen.

Ein eigener phänomenologischer Ansatz für die Beschreibung des t_w -Einflusses auf den TRM-Zeitzerfall wird in Abschnitt 8.3 vorgenommen.

Neben den theoretischen Modellen und phänomenologischen Ansätzen gibt es neuerdings auch aufwendige Computersimulationen von Ogielski [43] zur Beschreibung der Spindynamik im Spinglas. Ein Vergleich mit diesen Computersimulationen erfolgt ebenfalls in Abschnitt 8.3.

Um eine genaue quantitative Analyse vornehmen zu können, wurde der TRM-Zerfall in einem möglichst großen Beobachtungszeitraum aufgenommen (teilweise bis zu $10^5 \text{ sec} \simeq 1 \text{ d}$). Für die notwendigen Fitprozeduren wurde auf eine nicht-lineare Least-Square-Fitroutine (VAO5FD) der in der KFA zur Verfügung stehenden IMSL-Bibliothek zurückgegriffen. Die Fitanpassungen erfolgten auf dem IBM-Großrechner der KFA-Jülich.

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20) : T/T_f=0.80 \quad , \quad t_w=30\text{min}$



(a) TRM-Zerfall

(b) exponentieller Zerfall : $\log M \sim -\frac{1}{\tau} t$
 $(M(t) \sim e^{-t/\tau})$

(c) logarithmischer Zerfall : $M \sim -S \log t$
 (Relaxationsrate $S=\text{konst.}$)

(d) Potenzzerfall ($M(t) \sim t^{-\alpha}$) : $\log M \sim -\alpha \log t$

Abb.8.1:

TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in verschiedenen (halb)logarithmischen Auftragungen ($T/T_f=0.80$, $T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

8.1 Gestrecktes Exponentialgesetz (GEG)

Zerfallsprozesse in der Physik lassen sich vielfach durch ein einfaches Exponentialgesetz $e^{-(t/\tau)}$ mit nur einer charakteristischen Relaxationszeit τ beschreiben. Daß der TRM-Zerfall hier einem solchen exponentiellen Zerfallsgesetz nicht folgt, erkennt man in Abb.8.1. Die Daten müßten in der einfachlogarithmischen Darstellung ($\log M - t$) auf einer Geraden liegen, sollte ein Exponentialgesetz den Zerfall beschreiben. Daß dies nicht so ist, verwundert nicht, denn bislang wurde immer herausgestellt, daß die Dynamik im Spinglas geprägt ist durch ein breites Relaxationszeitspektrum und nicht durch einen einzigen Relaxationsprozeß.

In den letzten Jahren wird der Zeitzerfall der TRM häufig mit einem gestreckten Exponentialgesetz (GEG) verglichen:

$$M(t) = M(0) \cdot \exp [-(t/\tau)^{1-n}] \quad (8.1)$$

Dieses Gesetz beinhaltet gegenüber dem normalen Exponentialgesetz einen weiteren Parameter, den sogenannten 'time-stretched-Exponenten' n .

$n=0$ entspricht dem normalen Exponentialgesetz; für $n=1$ ist $M(t)$ konstant. $n > 1$ würde ein Anwachsen von $M(t)$ mit zunehmender Zeit bedeuten, was hier für den TRM-Zerfall unphysikalisch ist.

In der Analyse des TRM-Zerfalls auf der Grundlage von Gl.(8.1) wird i.a. ein Wert für n im Bereich zwischen 0.6 bis 0.8 gefunden. Wenn man formal von einem breiten Relaxationszeitspektrum $g(\tau)$ im Spinglas ausgeht, folgt aus der Identität $\int g(\tau) e^{-(t/\tau)} d\ln\tau = \exp[-(t/\tau)^{(1-n)}]$, daß n ein Maß für die Breite des Relaxationszeitspektrums um die charakteristische Relaxationszeit $t=\tau$ ist.

Das GEG ist erstmals 1847 von Kohlrausch [44] zur Beschreibung sehr langsamer Relaxationsprozesse in komplexen, stark wechselwirkenden Systemen vorgeschlagen worden. Gl.(8.1) wird deshalb auch oftmals als Kohlrausch-Gesetz bezeichnet. Dieses Gesetz ist später zur Beschreibung einer Vielzahl anderer Relaxationsphänomene in den unterschiedlichsten Systemen herangezogen worden z.B. bei Relaxationen in Dielektrika, Kernspinrelaxationen, Generations-Rekombinationsrauschen, Viskoelastizität etc.. 1984 haben dann Chamberlain et al. [45] TRM-Zerfallsmessungen an den Spinglassystemen CuMn und AgMn mit dem GEG verglichen und eine gute Anpassung der Daten hiermit erhalten. In der Folgezeit konnten auch andere Gruppen ihre TRM-Zerfallsmessungen an ein solches Gesetz anfitzen [46]. Inzwischen sind auch einige Modelle entwickelt worden, aus denen ein solches Gesetz abgeleitet werden kann (vgl. z.B. Modell hierarchischer Clusterdynamik von Palmer et al. [47] oder De Dominicis et al. [48]).

Das GEG ist das in den letzten Jahren mit am häufigsten diskutierte Gesetz zur Beschreibung des TRM-Zerfalls.

Ob das GEG auch hier den Zeitzerfall der TRM beschreibt, soll im folgenden nachgeprüft werden. Am besten ist es, wenn man sich den Zeitzerfall der TRM dafür in einer speziellen Auftragung ansieht, in einer doppeltlogarithmischen Auftragung von $-d/dt \ln M(t)$ gegen die Zeit t . Wenn das GEG gilt, sollten die Daten in dieser Darstellung auf einer Geraden liegen. Die Steigung der Geraden entspricht dabei $-n$; ein Exponentialgesetz ($n=0$) ergäbe also eine Horizontale.

In Abb.8.2 ist diese Darstellung für den TRM-Zerfall von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$, $T/T_f=0.80$, für zwei verschiedene Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=1\text{d}$ vorgenommen worden.

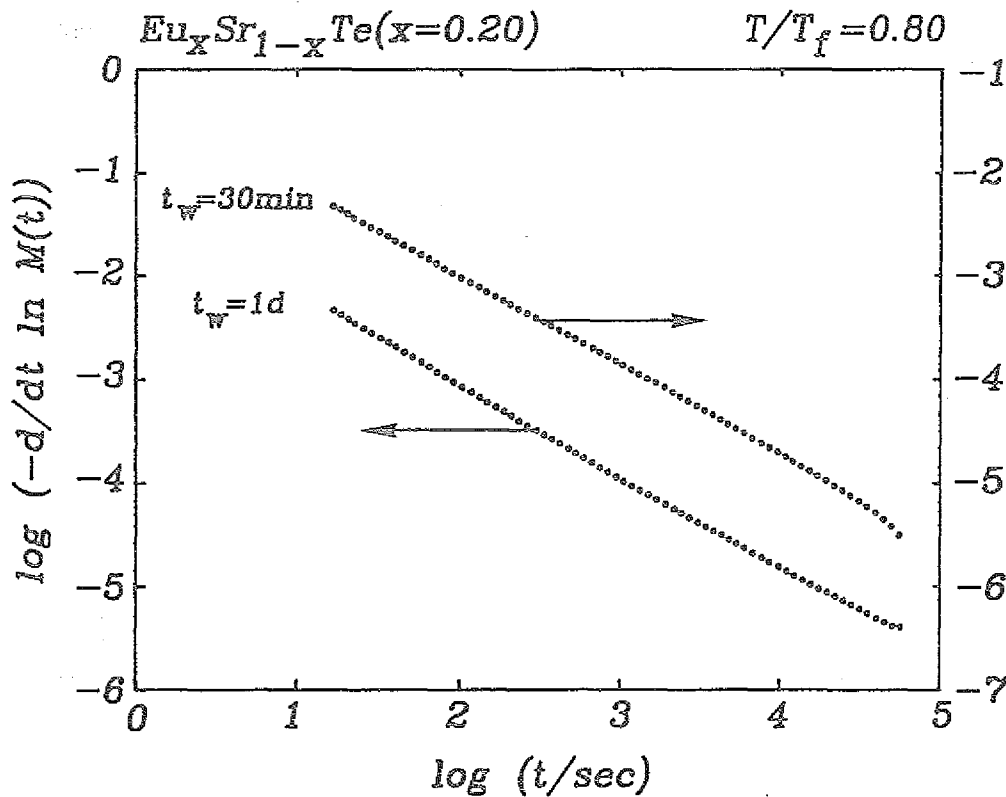
Bei der $t_w=30\text{min}$ -Messung liegen die Daten über einen relativ großen Zeitbereich bis $t = 10^4\text{sec}$ sehr gut auf einer Geraden, dann allerdings weicht der Verlauf von einer Geraden ab. Bei der $t_w=1\text{d}$ -Messung ist ebenfalls ein Abweichen von einer Geraden zu erkennen. Der Zeitzerfall der TRM läßt sich hier also nicht durch ein GEG beschreiben. Dies zeigen auch die graphischen Tests bei anderen Temperaturen und an den anderen Proben.

Börgermann, der den Zerfall der TRM an der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.40)$ -Probe untersucht hat, bekommt dagegen mit Gl.(8.1) eine gute Anpassung seiner Daten. Allerdings ist dort der Zerfall der TRM nur etwa 100min lang ($\approx 10^{3.8}\text{sec}$) aufgenommen worden. Eine Abweichung von einem GEG wäre dort möglicherweise bei größeren Beobachtungszeiten zu sehen gewesen.

Der Einfluß der Wartezeit in den TRM-Zerfallsbeschreibungen von Chamberlain durch ein GEG macht sich im wesentlichen nur im Parameter τ bemerkbar aber nicht im Amplitudenfaktor $M(0)$ und nicht im time-stretched Exponenten n . Chamberlain und auch Börgermann finden in ihren Messungen im Wartezeitbereich $5\text{min} < t_w < 60\text{min}$, daß τ etwa exponentiell mit t_w zunimmt: $\tau \sim e^{(t_w/t_0)}$ (*).

Das GEG hat nun die Eigenschaft, in der Relaxationsrate ein Maximum bei $t=\tau$ zu zeigen. Die Lage dieses Maximums sollte sich nach Gl.(*) also etwa exponentiell mit t_w zu höheren Zeiten verschieben. Dies wird hier aber nicht beobachtet; vielmehr liegt das Maximum stets in der Größenordnung der Wartezeit ($\tau \approx t_w$). Lundgren et al. führen daher die Beschreibung des TRM-Zerfall durch ein GEG bei vielen Gruppen auf eine Mißinterpretation der Alterungseffekte im Spinglas zurück [49]. Sie behaupten, daß das GEG allein den Zeitzerfall der TRM noch nicht beschreibt. Das GEG trägt nur dem Einfluß der Wartezeit Rechnung.

Auch wenn das GEG allein den TRM-Zerfall nicht beschreibt, wird dieses Gesetz im folgenden noch eine Rolle spielen.



GEG : $M(t) = M(0) \cdot \exp[-(t/\tau)^{1-n}]$

$$\log(-d/dt \ln M(t)) = a \cdot \log t + b$$

mit $a = -n$ und $b = \log\left(\frac{1-n}{\tau^{1-n}}\right)$

Abb.8.2:

TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in einer doppeltlogarithmischen Auftragung von $-d/dt \ln M(t)$ gegen t ($T/T_f=0.80$, $T_f=500\text{mK}$). — Für ein gestrecktes Exponentialgesetz $M(t) = M(0) \cdot \exp[-(t/\tau)^{1-n}]$ müßten die Daten in dieser Darstellung auf einer Geraden liegen.

8.2 Beschreibung des TRM-Zerfalls im Droplet-Modell von Fisher u. Huse und im Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst

Die wesentlichen Grundzüge des Droplet-Modells von Fisher u. Huse [40] und des Domänen-Modells von Koper u. Hilhorst [41] sind bereits in Kap. 7.3 herausgestellt worden. Die entscheidende Größe in beiden Modellen ist die lineare Dimension R der Droplets bzw. Domänen, die mit dem Alter des Spinglaszustandes kontinuierlich anwächst: $R=R(t)$. Der Zeitzerfall der TRM hängt von $R(t)$ maßgeblich ab.

a) Droplet-Modell von Fisher u. Huse

In dem Modell von Fisher u. Huse wird folgender Zusammenhang zwischen dem Zeitzerfall der TRM und der Größe der Droplets angenommen:

$$M(t) \sim R(t)^{-\lambda} \quad (8.2)$$

wobei λ ein dynamischer Exponent ist. Mit $R(t) \sim [\ln(t/\tau_0)]^{1/\xi}$ (Gl.(7.11)) folgt daraus für lange Zeiten $t \gg t_w$:

$$M(t) \sim [\ln(t/\tau_0)]^{-\lambda/\xi} \quad (8.3)$$

Für kurze Zeiten $t \ll t_w$ spiegeln sich in den Messungen nur Korrelationen auf einer Längenskala $L(t) \ll R(t)$ wider. Man erhält hier für die (Quasi)Gleichgewichtsdynamik einen Zerfall

$$M_{qe}(t) \sim L(t)^{-\Theta} \quad (8.4)$$

mit einem Exponenten $\Theta \leq \lambda$. Mit $L(t) \sim [\ln(t/\tau_0)]^{1/\xi}$ (Gl.(7.12)) ist dann:

$$M_{qe}(t) \sim [\ln(t/\tau_0)]^{-\Theta/\xi} \quad (8.5)$$

Gl.(8.3) bzw. Gl.(8.5) beschreiben nicht die hier vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen. Dies erkennt man sofort, wenn man sich die Größe $(-d \ln M(t)/d \ln t)^{-1}$ anschaut, die für den durch Gl.(8.3) und Gl.(8.5) gegebenen Zerfall proportional $\ln(t/\tau_0)$ ist, also eine mit $\ln t$ monoton wachsende Funktion. Die Messungen zeigen aber, daß $(-d \ln M(t)/d \ln t)^{-1}$ mit $\ln t$ abfällt (hier nicht dargestellt). Der Zerfall kann also quantitativ nicht durch das Modell von Fisher u. Huse beschrieben werden. Vergleichbare Untersuchungen von De Fotis [50] führen zu dem gleichen Ergebnis*.

* Das Droplet-Modell von Fisher u. Huse wird dennoch in letzter Zeit bei der Interpretation einer Vielzahl von Experimenten an Spingläsern, die Nichtgleichgewichtseffekte beinhalten, herangezogen (vgl. z.B. [51]).

b) Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst

Im Modell von Koper u. Hilhorst wird für das Wachstum der Domänen ein Potenzgesetz

$$R = R_o (t/\tau_o)^p \quad (8.6)$$

angesetzt, wobei τ_o eine mikroskopische Zeitkonstante ist und der mit der Temperatur ansteigende Exponent p das thermisch unterstützte Wachstum der Domänen charakterisiert. Die Relaxationszeit τ' der Domänen hängt mit deren Größe über

$$\tau' = \tau_o' (R/R_o)^z \quad (8.7)$$

zusammen.

Auf der Grundlage eines fraktalen Clustermodells mit einer zeitabhängigen Cluster- bzw. Domänengröße leiten Koper u. Hilhorst folgende Gleichung für den TRM-Zerfall her:

$$M(t) = M(0) \cdot t^{-\alpha} \cdot \exp \left[- \left\{ \left(\frac{t+t_w}{\tau} \right)^{1-n} - \left(\frac{t_w}{\tau} \right)^{1-n} \right\} \right] \quad (8.8)$$

wobei $n = p \cdot z$ ist und $\tau = \left(\tau_o' \tau_o^{-n} (1-n) \right)^{\frac{1}{1-n}}$ eine für den Zeitzerfall charakteristische Zeitkonstante darstellt. Gl.(8.8) beinhaltet dabei explizit die Wartezeit t_w .

Für kurze Zeiten $t \ll t_w$ wird der TRM-Zerfall durch ein Potenzgesetz $t^{-\alpha}$ beschrieben. Dieses Potenzgesetz folgt allerdings nicht aus dem Modell sondern wird von Koper u. Hilhorst für die Gleichgewichtsdynamik vorausgesetzt. Die Singularität des $t^{-\alpha}$ -Zerfalls für $t \rightarrow 0$ kann durch eine Substitution von $t^{-\alpha}$ durch $(1+t/\tau_o)^{-\alpha}$ behoben werden.

Für lange Zeiten $t \gg t_w$ ist die Dynamik im wesentlichen durch ein GEG gegeben.

Es läßt sich zeigen, daß die Relaxationsrate des durch Gl.(8.8) gegebenen Zerfalls für $\alpha \ll 1$, $n \approx 1$ und τ nicht zu groß ($\tau \lesssim t_w$) ein Maximum bei $t \approx t_w$ besitzt, so wie es auch hier in den Messungen beobachtet wird. In Abb.8.3a ist dies dargestellt mit $\alpha = 0.07$, $n = 0.70$, $\tau = 10^2 \text{ sec}$ und für drei verschiedene Wartezeiten $t_w = 10^2 \text{ sec}$, 10^3 sec und 10^4 sec . Mit dem Auftreten eines Maximums in der Relaxationsrate bei $t \approx t_w$ ist das Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst das erste theoretische Modell, das den Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall qualitativ richtig beschreibt.

Interessant ist auch, wenn man sich überlegt, wie sich die Parameter mit der Temperatur ändern und wie dann der Verlauf der Relaxationsrate nach Gl.(8.8)

aussehen wird.

Mit abnehmender Temperatur werden die dynamischen Prozesse im System langsamer. Dies wird sich sicherlich in einer Abnahme des Parameters α und in einer Zunahme der charakteristischen Relaxationszeit τ widerspiegeln. In Abb.8.3b ist der Zerfall für $\alpha = 0.04$, $n=0.7$ und $\tau = 10^8 \text{ sec}$ dargestellt.

Man erkennt, daß der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall fast völlig verschwunden ist. Dies steht im Einklang mit dem, was an der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$)-Probe bei tiefen Temperaturen beobachtet wird und in Kap.7.3 herausgestellt wurde.

In der Nähe von T_f beschreibt Gl.(8.8) den TRM-Zerfall qualitativ nicht richtig. Hier mögen andere Effekte eine Rolle spielen (z.B. thermische Fluktuationen), die in dem Modell nicht berücksichtigt sind.

Obwohl Gl.(8.8) die meisten der hier beobachteten Effekte qualitativ richtig beschreibt, lassen sich die TRM-Zerfallsdaten mit Gl.(8.8) quantitativ nicht anpassen.

$$M(t) = M(0) * t^{-\alpha} * \exp[-\{(\frac{t+t_w}{\tau})^{1-n} - (\frac{t_w}{\tau})^{1-n}\}]$$

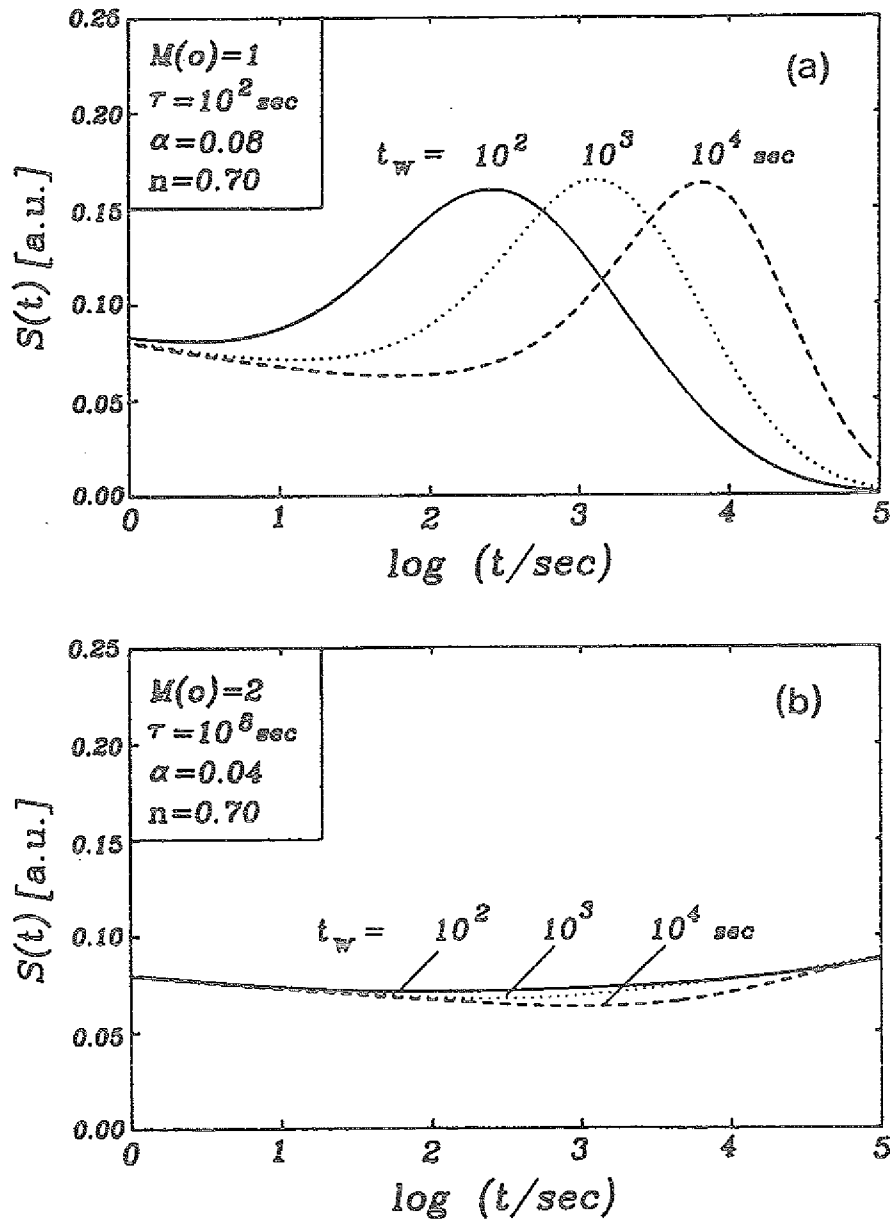


Abb.8.3 :

Relaxationsrate des TRM-Zerfalls im Modell von Koper u. Hilhorst [41].

8.3 Phänomenologischer Ansatz für die Beschreibung des TRM-Zerfalls

In den ersten beiden Abschnitten dieses 8. Kapitels wurde der TRM-Zerfall mit verschiedenen Zerfallsgesetzen verglichen. Es konnte jedoch keine Anpassung der Daten mit einem dieser Gesetze erzielt werden. Das Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst gibt allerdings eine gute qualitative Beschreibung des TRM-Zerfalls. In diesem Abschnitt soll nun eine eigene quantitative Beschreibung des TRM-Zerfalls entwickelt werden.

Die erste Frage, die sich dabei stellt, ist, in welcher Form der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall berücksichtigt werden kann. Charakteristisch für den t_w -Einfluß ist nach Kap.6.3 eine erhöhte Relaxationsrate des Zerfalls zu einer Beobachtungszeit t , die der Wartezeit t_w entspricht. Eine Funktion mit der dies wiedergegeben werden kann, ist das gestreckte Exponentialgesetz mit einer Zeitkonstante $\tau = \tau_w \approx t_w$:

$$M_w(t) = M_w(0) \cdot \exp \left[-(t/\tau_w)^{1-n_w} \right] \quad , \quad \tau_w \approx t_w \quad (8.9)$$

Die Relaxationsrate des durch Gl.(8.9) gegebenen Zerfalls besitzt ein Maximum bei $t = \tau_w \approx t_w$.

Gl.(8.9) ist ein rein phänomenologischer Ansatz für den Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall. Dieser Ansatz wurde 1986 von Lundgren et al. [52] vorgeschlagen, ist dann aber nicht weiter verfolgt worden.

Gl.(8.9) beschreibt Nichtgleichgewichtseffekte bedingt durch die endliche Wartezeit, die das System vor der Messung im Spinglaszustand verbracht hat.

Für die Gleichgewichtsdynamik wird in der Literatur häufig ein Potenzgesetz $t^{-\alpha}$ angesetzt. Computersimulationen von Binder [53] und Ogielski [43] deuten ebenfalls auf einen potenzartigen TRM-Zerfall im Gleichgewicht hin. Deshalb soll auch hier für den Gleichgewichtszerfall zunächst ein Potenzgesetz angenommen werden:

$$M_{eq}(t) = M_\alpha(0) \cdot t^{-\alpha} \quad (8.10)$$

Der Zeitzerfall der TRM soll sich nun aus dem Gleichgewichtsanteil $M_{eq}(t)$ und dem wartezeitabhängigen Anteil $M_w(t)$ additiv zusammensetzen, so daß sich insgesamt folgender funktionaler Zusammenhang ergibt:

$$M(t) = M_{eq}(t) + M_w(t) = M_\alpha(0) \cdot t^{-\alpha} + M_w(0) \cdot \exp \left[-(t/\tau_w)^{1-n_w} \right] \quad (8.11)$$

Gl.(8.11) beinhaltet insgesamt 5 freie Fitparameter $M_\alpha(0)$ und α aus dem Potenzgesetz und $M_w(0)$, τ_w und n_w aus dem GEG. Der Parameter τ_w besitzt dabei die Einschränkung, daß er in der Größenordnung von t_w liegen muß.

Es wurde zunächst versucht, die TRM-Zerfallsmessungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ mit Gl.(8.11) anzufitten. An dieser Probe zeigt sich der Einfluß der Wartezeit von allen gemessenen Proben am deutlichsten (vgl. Kap.6.3). Da hier auch die Wartezeit am häufigsten variiert wurde (vier verschiedene Temperaturen, jeweils mindestens fünf verschiedene Wartezeiten von der kürzt möglichen Wartezeit bis $t_w=1\text{d}$), sollte sich an dieser Probe am ehesten abzeichnen, ob der Ansatz (8.11) geeignet ist, den TRM-Zerfall zu beschreiben.

Es wurde eine gute Anpassung fast aller 21 Datensätze mit Gl.(8.11) erzielt; nur für die kürzesten Wartezeiten war der Fit nicht immer befriedigend.

Bei den Fits wurde darauf geachtet, daß die die Gleichgewichtsdynamik charakterisierenden Fitparameter $M_\alpha(0)$ und α nicht mit der Wartezeit variieren. Die sich unter dieser Einschränkung ergebenden Fitparameter sind in Tab.8.11 aufgelistet. Man erkennt, daß der Fitparameter τ_w erwartungsgemäß etwa in der Größenordnung der Wartezeit liegt. Nur für die kurzen Wartezeiten liegt τ_w etwas zu hoch. Der Parameter n_w variiert nicht systematisch mit der Wartezeit und liegt bei allen vier Temperaturen für die längeren Wartezeiten etwa im Bereich zwischen 0.5-0.6. Der Parameter α liegt in der Größenordnung 0.1 und steigt mit der Temperatur an.

$M(t) = M(0) \cdot t^{-\alpha} + M_w(0) \cdot \exp[-(t/\tau_w)^{1-n_w}]$								
T/T_f	$t_w[\text{min}]$	$\log(t_w/\text{sec})$	$\log M(0)$	α	$\log M_w(0)$	$\log(\tau_w/\text{sec})$	n_w	$\sqrt{\chi^2}$
0.72	15	2.45	1.62	0.052	1.33	3.64	0.67	0.12
	30	3.26	1.68	0.051	1.23	3.82	0.60	0.08
	90	3.73	1.68	0.051	1.20	4.00	0.52	0.04
	360	4.33	1.66	0.050	1.23	4.46	0.53	0.03
	1440	4.94	1.67	0.051	1.22	4.94	0.51	0.06
0.82	6	2.56	1.49	0.073	1.29	3.08	0.71	0.11
	30	3.26	1.52	0.073	1.17	3.56	0.57	0.08
	90	3.73	1.53	0.072	1.15	3.86	0.55	0.05
	360	4.33	1.53	0.071	1.14	4.31	0.54	0.02
	1440	4.94	1.52	0.071	1.15	4.83	0.58	0.03
0.93	3	2.26	1.33	0.106	1.10	2.68	0.73	0.06
	30	3.26	1.35	0.106	0.93	3.41	0.58	0.06
	90	3.73	1.36	0.103	0.92	3.73	0.55	0.07
	360	4.33	1.35	0.105	0.92	4.41	0.57	0.08
	1440	4.94	1.35	0.107	0.92	4.89	0.62	0.02
1.04	1	1.78	1.02	0.127	0.98	2.03	0.79	0.04
	5	2.48	1.04	0.125	0.79	2.80	0.69	0.04
	30	3.26	1.10	0.127	0.63	3.42	0.59	0.04
	90	3.56	1.09	0.124	0.62	3.73	0.59	0.02
	360	4.33	1.09	0.131	0.58	4.25	0.53	0.04
	1440	4.94	1.10	0.126	0.59	4.76	0.59	0.02

Tab.8.1 :

Fitparameter für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ mit Gl.(8.11). — χ^2 : normierte Fehlerquadratsumme.

Im weiteren wurde dann versucht, auch die Messungen an den anderen Proben mit Gl.(8.11) zu beschreiben. Dies gelang jedoch nicht immer, bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ -Probe z.B. war in der Nähe von T_f keine Anpassung zu erreichen.

Bei den beiden anderen Spinglasproben mit $x=0.175$ - und $x=0.15$ -Eu-Anteil treten ebenfalls Schwierigkeiten bei der Anpassung der Daten mit Gl.(8.11) auf.

Es stellt sich deshalb die Frage, ob Gl.(8.11) wirklich die richtige Form besitzt, um den TRM-Zerfall zu beschreiben, oder, da bei der $x=0.30$ -Probe teilweise schon eine relativ gute Anpassung erzielt wurde, Gl.(8.11) nur etwas modifiziert werden muß. Wie soll diese Modifikation aber aussehen bzw. gerechtfertigt werden?

Eine mögliche Modifikation ergibt sich, wenn man sich die TRM-Zerfallsbeschreibung im Modell von Koper u. Hilhorst ansieht (Gl.(8.8)). In dieser Beschreibung geht der TRM-Zerfall von einem Potenzgesetz bei kurzen Beobachtungszeiten zu einem GEG bei großen Beobachtungszeiten über. Berücksichtigt werden kann dies, indem man ein GEG an den Gleichgewichtsanteil $t^{-\alpha}$ in Gl.(8.11) multipliziert. Man erhält dann folgende Beschreibung des TRM-Zerfalls:

$$M(t) = M_\alpha(0) \cdot t^{-\alpha} \cdot \exp[-(t/\tau)^{1-n}] + M_w(0) \cdot \exp[-(t/\tau_w)^{1-n_w}] \quad (8.12)$$

Diese Gleichung besitzt eine relativ komplizierte Struktur mit dem Auftreten zweier gestreckter Exponentialterme. Das Potenzgesetz in Gl.(8.12) beschreibt wie bisher die Gleichgewichtsdynamik für kurze Zeiten ($t \ll \tau$). Das hieran multiplizierte GEG liefert für $\frac{1-n}{\alpha} \geq 4$ einen Anstieg der Relaxationsrate für $t \rightarrow \tau$. Für $t \geq \tau$ bewirkt das GEG dann einen relativ schnellen Abfall der Relaxationsrate. Ein solcher Abfall von S wird auch bei TRM-Zerfallsmessungen in der Nähe von T_f beobachtet (vgl. Abb.6.14). Es ist daher zu erwarten, daß der Parameter τ in der Nähe von T_f in die Größenordnung der Meßzeit kommt.

Der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall steckt weiterhin nur in dem hinteren GEG.

Gl.(8.12) besitzt insgesamt 7(6) freie Fitparameter $M_\alpha(0)$, α , τ und n und für den Einfluß der Wartezeit die Parameter $M_w(0)$, (τ_w) und n_w . Da die TRM-Zerfallskurven relativ strukturlose Kurven sind, ist es bei dieser großen Anzahl an Parametern sehr schwer, die 'richtigen' Parametersätze aus den Fits zu bestimmen. Zudem hängen die Parameter stark voneinander ab*.

* Dies zeigt z.B. die bei den Fits mit bestimmte Korrelationsmatrix der Fitparameter.

Um diese Schwierigkeiten etwas zu umgehen, wurde die Fitroutine dahingehend erweitert, daß die Möglichkeit bestand, mehrere Datensätze simultan anzufitten. Man konnte dann mehrere Messungen, die sich nur in der Wartezeit unterscheiden, gleichzeitig anfitten, wobei die wartezeitunabhängigen Fitparameter ($M_0(0)$, α , τ , n , teilweise auch n_w) für alle Datensätze gleich bleiben. Man erreicht damit eine Verringerung der effektiven Anzahl der freien Fitparameter pro Datensatz.

Bei einigen Datensätzen wurde nicht die TRM sondern die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls angefitet. Dies hat den Vorteil, daß mögliche geringe Fehler in der Baselinebestimmung keine Rolle mehr spielen. Vor allem bei den simultanen Fitprozeduren war dies hilfreich.

Mit Gl.(8.12) konnten nun die Messungen an der $x=0.15$ - und $x=0.175$ -Probe angefitet werden. Bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ -Probe erhielt man ebenfalls gute Fits jetzt auch in der Nähe von T_f . Daraufhin wurden die Messungen an $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ auch nochmal angefitet, diesmal mit Gl.(8.12) auch wenn mit Gl.(8.11) schon eine relativ gute Anpassung erzielt wurde. Der Fit war diesmal noch besser und auch bei kurzen Wartezeiten erreichte man eine gute Anpassung. In Tab.8.2 sind alle Fitparameter zusammengestellt. Die Güte der Fits ist anhand der Relaxationsrate in Abb.8.5 bis Abb.8.8 für verschiedene Konzentrationen, Temperaturen und Wartezeiten dargestellt. Die gefittete Kurve (dünne durchgezogene Linie) ergibt sich dabei als Summe des wartezeitunabhängigen Anteils (1. Summand in Gl.(8.12) = dicke durchgezogene Linie) und des wartezeitabhängigen Anteils (2.Summand in Gl.(8.12) = gestrichelte Linien).

Man erkennt in allen vier Abbildungen, daß der Fit sehr gut ist. Der wartezeitabhängige Anteil besitzt stets ein Maximum zu einer Zeit, die vergleichbar ist mit der Wartezeit, angedeutet durch die Pfeile am oberen Rand der Abbildungen. In Abb.8.6 und Abb.8.7 wird auch deutlich, daß der wartezeitabhängige Anteil mit abnehmender Konzentration und abnehmender Temperatur geringer wird, wie es qualitativ schon in Kap.6.3 herausgestellt wurde.

Interessant ist auch, daß bei der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ -Probe bei $T/T_f=0.50$, wo zwischen der $t_w=30\text{min}$ -Messung und der $t_w=360\text{min}$ -Messung nahezu kein Unterschied im Verlauf der Relaxationsrate zu erkennen ist, wo sich also kein t_w -Einfluß zeigt, auch nur der wartezeitunabhängige Anteil in Gl.(8.12) ausreicht, um den Zerfall zu beschreiben. Bei $T/T_f=0.65$ und $T/T_f=0.73$ wird der Einfluß der Wartezeit immer deutlicher. Gleichzeitig nimmt dann auch der wartezeitabhängige Anteil zu.

Bemerkt werden soll in diesem Zusammenhang, daß ein reines Potenzgesetz für den wartezeitunabhängigen Anteil, wie es in Gl.(8.11) angenommen wird, niemals den Zerfall bei $T/T_f=0.50$ hätte beschreiben können. Denn die Relaxationsrate eines Potenzzerfalls folgt wieder einem Potenzgesetz, ist also eine monoton fallende Funktion. Bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$, $T/T_f=0.50$, ist aber S monoton steigend.

Lundgren et al. [52] behaupten dagegen, daß experimentell ein Ansteigen der Relaxationsrate für den Gleichgewichtszерfall der TRM nicht beobachtet wird. Sie folgern daraus umgekehrt, daß ein Produkt aus Potenz- und gestrecktem Exponentialgesetz nicht geeignet ist, den TRM-Zerfall zu beschreiben, denn für gewisse Parameter α und n liefert dieses Gesetz einen ansteigenden Verlauf der Relaxationsrate. Diesem Schluß kann hier nicht gefolgt werden und wird auch durch die Messungen eindeutig widerlegt.

In Abb.8.4 sind die Fitparameter α , τ , n und n_w aller Fit Anpassungen gegen die relative Temperatur T/T_f graphisch aufgetragen. Die eingetragenen Fehlerbalken sind geschätzte Fehler für die Fitparameter.

Die mit relativ großen Fehlern behafteten Fitparameter n und n_w ($\Delta n \approx 0.1$) zeigen keine signifikante Abhängigkeit weder von Temperatur, Eu-Konzentration noch Wartezeit. n_w liegt im Bereich um 0.5–0.6. In diesem Bereich liegen auch die von Lundgren in [52] ermittelten Werte von n_w mit dem gleichen phänomenologischen Ansatz (8.10) für die Beschreibung des t_w -Einflusses. Der Parameter n ist etwas größer als n_w und liegt im Mittel bei 0.7.

Die Fitparameter α und τ hängen von der Temperatur ab. Dabei ist $\alpha(T/T_f)$ und $\tau(T/T_f)$ offenbar unabhängig von der Eu-Konzentration. τ nimmt mit der Temperatur stark ab. Bei Annäherung an T_f kommt τ in die Größenordnung der Meßzeit bei TRM-Zerfallsmessungen. α nimmt mit der Temperatur zu und liegt bei T_f bei etwa 0.1.

Aufwendige Computersimulationen (MC-Simulationen) von Ogielski [43] zur Untersuchung der Gleichgewichtsdynamik in einem 3d-Ising-System ergeben für die Selbstkorrelationsfunktion $q(t) = \langle S_i(0), S_i(t) \rangle_T$ (die Zeitabhängigkeit von q entspricht der von M_{TRM}) eine Zeitabhängigkeit, die im Spinglasbereich einem Potenzgesetz $t^{-\alpha_q}$ folgt*. Die von Ogielski ermittelte Temperaturabhängigkeit von α_q zeigt dabei qualitativ den gleichen Verlauf wie er hier für α festgestellt wird und liegt auch in einer vergleichbaren Größenordnung.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß sich die hier vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen im Spinglasbereich sehr gut durch ein Gesetz der Form (8.12) beschreiben lassen. Der Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall kann dabei durch den rein phänomenologischen Ansatz eines GEG mit $\tau \approx t_w$ berücksichtigt

* Für $T \geq T_f$ findet Ogielski interessanterweise, daß $q(t)$ sich durch ein Produkt aus Potenz- und gestrecktem Exponentialgesetz beschreiben läßt, genauso wie es hier für den TRM-Zerfall angesetzt wird. Continentino und Malozzernoff [54] leiten auf der Grundlage eines fraktalen Clustermodells ebenfalls eine solche Zeitabhängigkeit ab. Allerdings gilt diese wiederum erst für $T \geq T_f$.

werden.

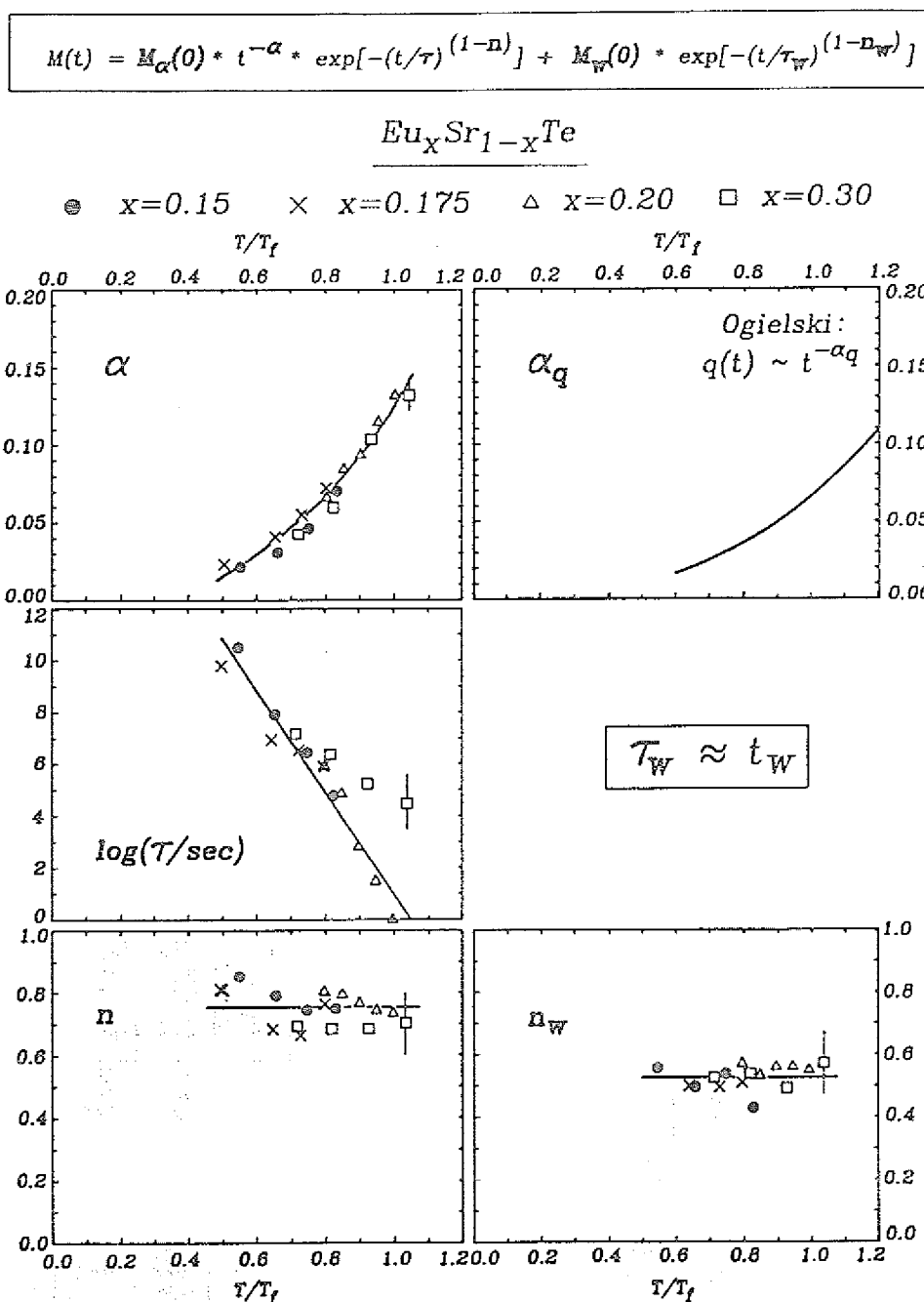
Die Fitanpassungen liefern konsistente Ergebnisse; die ermittelte Temperaturabhängigkeit des Exponenten α steht im Einklang mit Computersimulationen von Ogielski.

I.a. ist man zwar an einer möglichst einfachen Beschreibung des TRM-Zerfalls interessiert. Diese ist sicherlich nicht durch Gl.(8.12) gegeben. Die dynamischen Prozesse im Spinglas scheinen aber so kompliziert zu sein, daß einfachere Beschreibungen, wie in Kap.8.1 und 8.2 vorgestellt, nicht ausreichen.

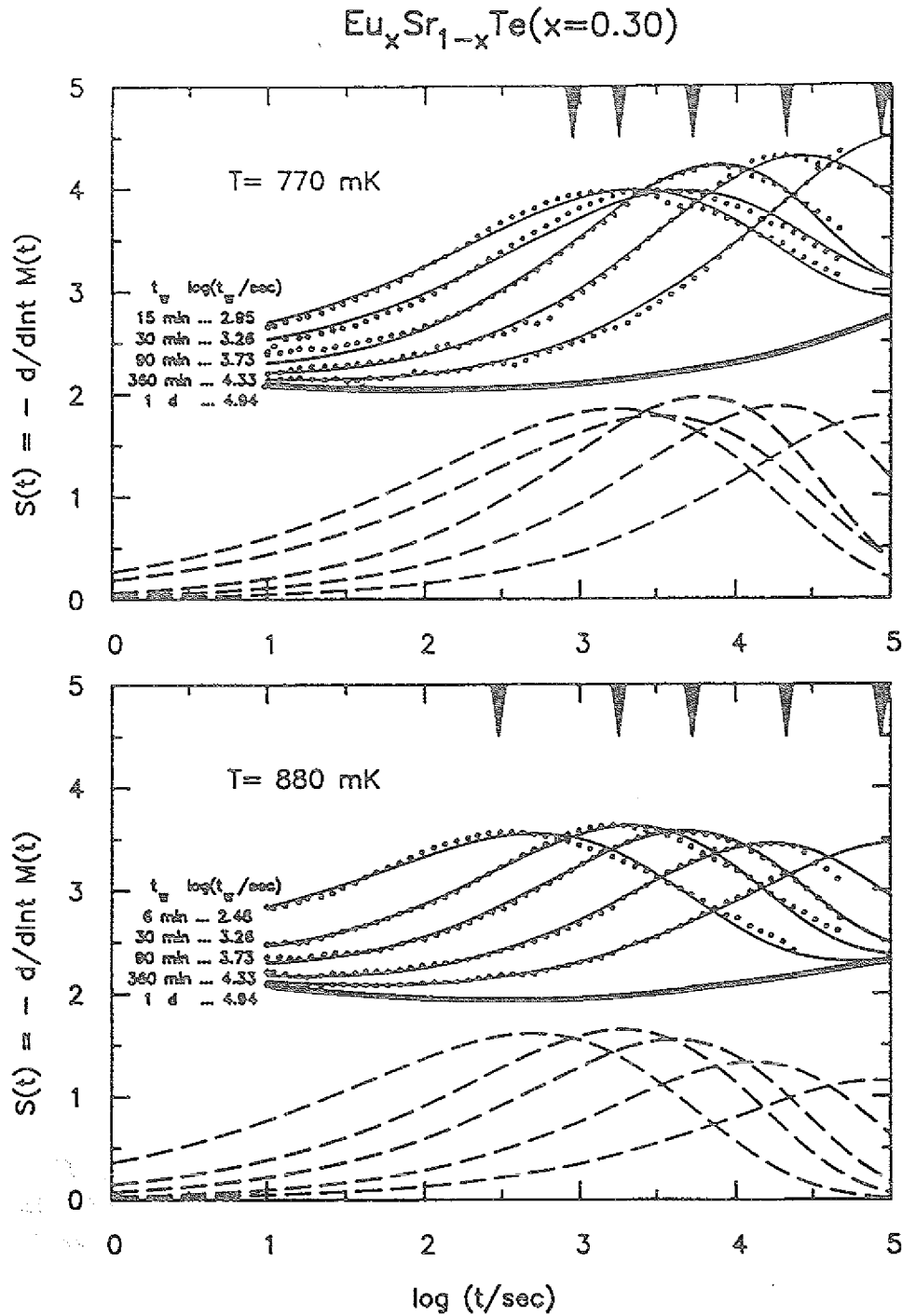
$M(t) = M(0) \cdot t^{-\alpha} \cdot \exp[-(t/\tau)^{1-n}] + M_W(0) \cdot \exp[-(t/\tau_W)^{1-n_W}]$											
x	T/T _f	t _w (min)	log (t _w /sec)	log M(0)	log (τ/sec)	n	α	log M _α (0)	log (τ _w /sec)	n _w	√x ²
0.15	0.55	100	3.78	2.27	10.50	0.85	0.020	0.24	2.86	0.56	
	0.66	60	3.56	2.19	7.95	0.79	0.029	0.54	3.22	0.50	
	0.75	30 360	3.26 4.33	2.10	6.45	0.74	0.045	0.89 0.79	3.36 4.19	0.54 0.54	
	0.83	30 1440	3.26 4.94	2.00	4.80	0.75	0.060	0.81 0.72	3.21 4.94	0.43	
0.175	0.50	30 360	3.26 4.33	2.34	9.80	0.81	0.021	— —	— —	— —	
	0.65	30 360	3.26 4.33	2.20	7.00	0.68	0.039	0.89 0.80	3.26 4.33	0.50 0.50	
	0.73	30 360	3.26 4.33	2.12	6.56	0.66	0.053	0.92	3.60 4.33	0.50	
	0.80	30 360 1440	3.26 4.33 4.94	2.00	5.94	0.76	0.070	1.20 1.11 1.11	3.48 4.34 5.13	0.52 0.50 0.50	
0.20	0.80	30 1440	3.26 4.33	2.00	5.94	0.80	0.065	1.22 1.15	3.43 5.10	0.56 0.58	
	0.85	30	3.26	1.93	4.88	0.79	0.083	1.08	3.16	0.53	
	0.90	30 60 360 1440	3.26 3.56 4.33 4.94	1.83	2.82	0.76	0.092	0.71 0.70 0.69 0.70	3.10 3.56 4.33 4.70	0.56	
	0.95	30 1440	3.26 4.94	1.76	1.50	0.74	0.113	0.46 0.58	3.00 4.58	0.56	
	1.00	30	3.26	1.55	0.00	0.73	0.130	-0.10	3.26	0.55	
0.30	0.72	15 30 90 360 1440	2.95 3.26 3.73 4.33 4.94	2.15	7.20	0.69	0.041	1.52 1.49 1.44 1.40 1.36	3.22 3.50 3.79 4.26 4.94	0.60 0.59 0.50 0.47 0.43	
	0.82	6 30 90 360 1440	2.56 3.26 3.73 4.33 4.94	2.00	6.40	0.68	0.058	1.48 1.42 1.38 1.29 1.26	2.70 3.28 3.61 4.12 4.94	0.61 0.55 0.52 0.50 0.54	
	0.93	3 30 90 360 1440	2.26 3.26 3.73 4.33 4.94	1.77	5.25	0.68	0.102	1.31 1.22 1.14 1.02 0.94	2.40 3.28 3.61 4.23 4.75	0.66 0.61 0.48 0.40 0.40	
	1.04	1 5 30 90 360 1440	1.78 2.48 3.26 3.73 4.33 4.94	— — 1.47	— — 4.50	— — 0.70	— — 0.130	— — 1.01 0.98 0.94 0.97	— — 3.42 3.80 4.22 4.91	— — — — 0.57	

Tab.8.2 :

Fitparameter für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12). — Zum besseren Vergleich sind die Fitparameter $M_{\alpha}(0)$ und $M_W(0)$ für die einzelnen Konzentrationen auf $\log M_{\alpha}(0)=2$ bei $T/T_f \approx 0.80$, $t_w=30\text{min}$ normiert. Wegen der simultanen Fitprozeduren wurde auf die Angabe einer Fehlerquadratsumme für die einzelnen Datensätze verzichtet. Die Güte der Fits ist in den nachfolgenden Abbildungen demonstriert.

**Abb.8.4 :**

Temperaturabhängigkeit der Fitparameter α , τ , n und n_W für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen an Gl.(8.12). — Die eingetragenen Fehlerbalken sind geschätzte Fehler.

**Abb.8.5:**

Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ bei $T=770\text{mK}$ ($T/T_f=0.72$) und $T=880\text{mK}$ ($T/T_f=0.82$) für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f=1070\text{mK}$).

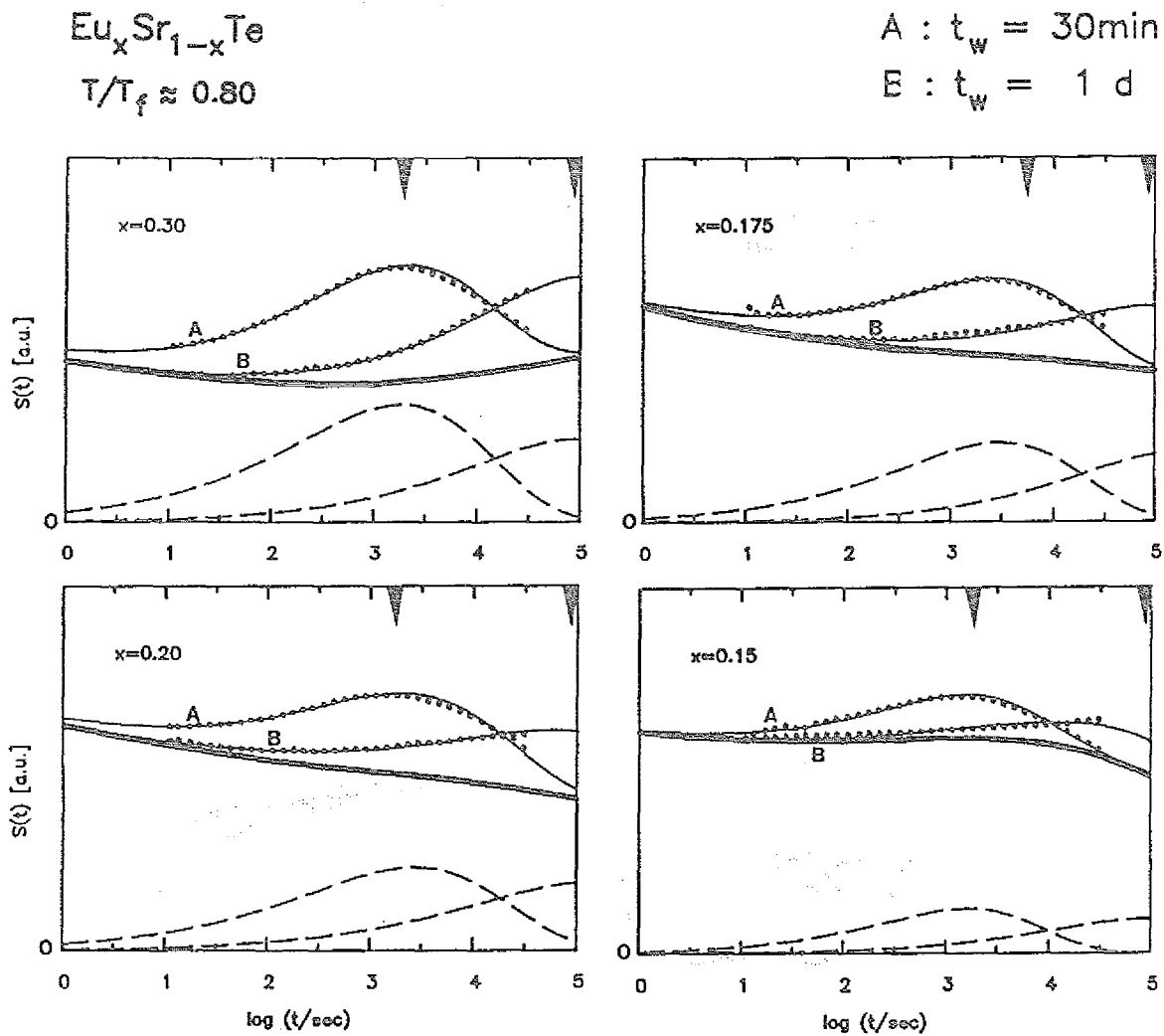
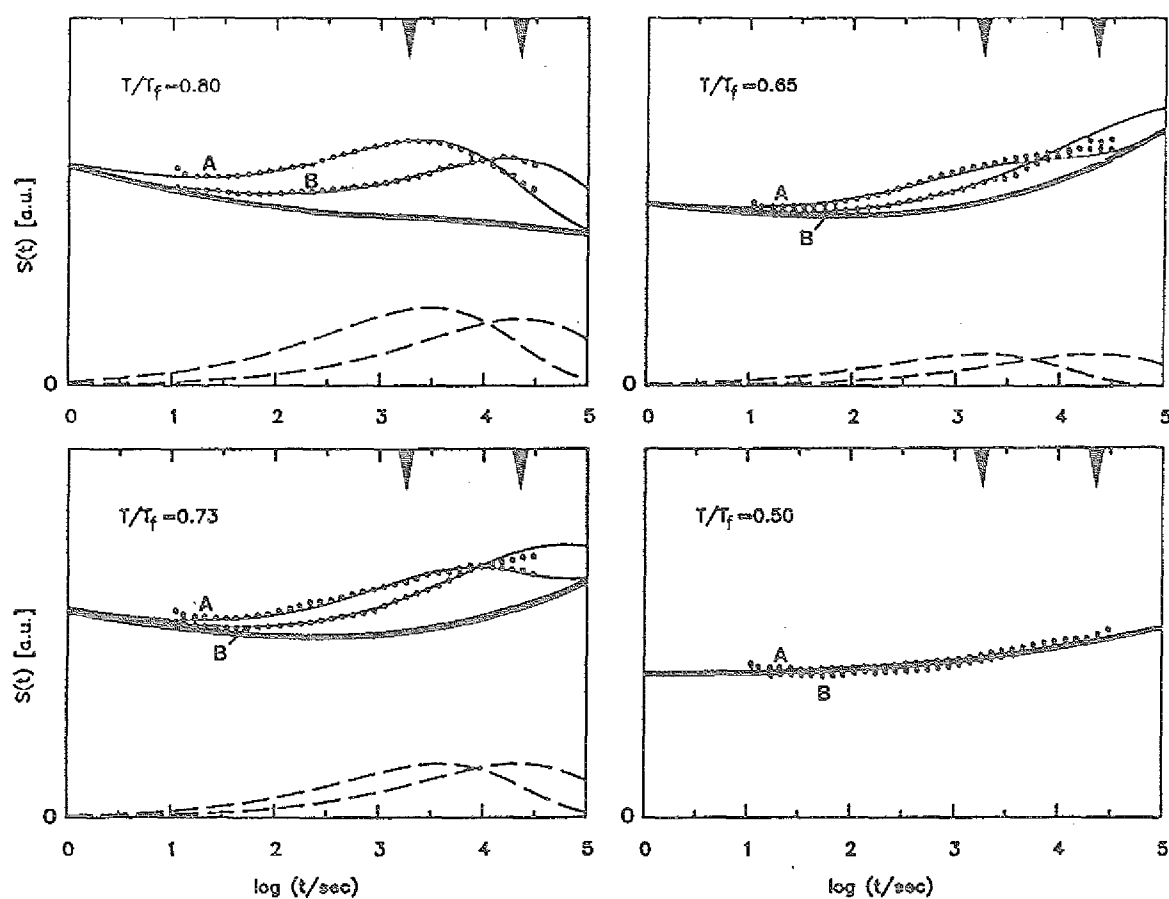
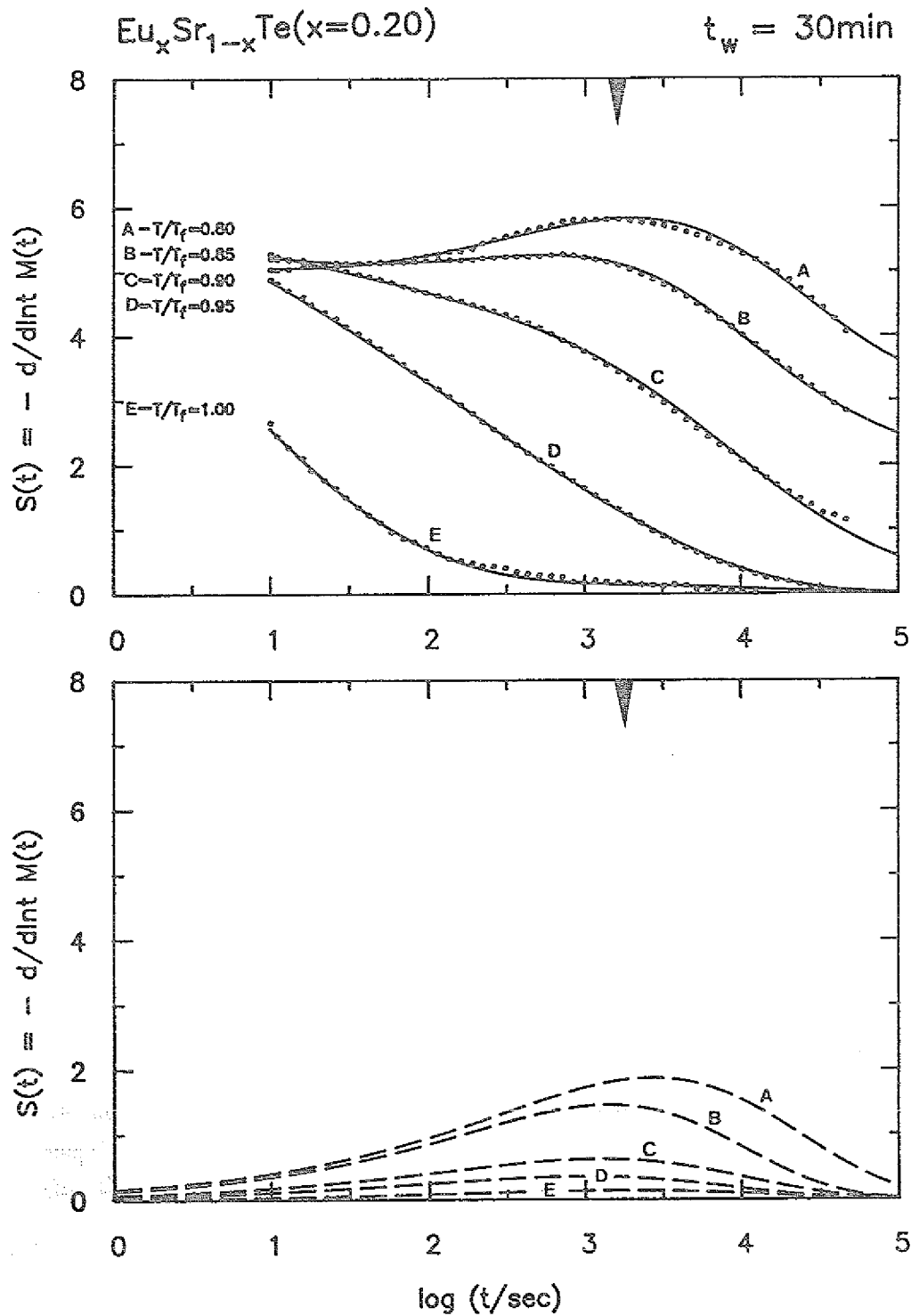


Abb.8.6 :

Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben bei einer Temperatur von $T/T_f \approx 0.80$ und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w = 30\text{min}$ und $t_w = 1\text{d}$.

$\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ $x=0.175$ A : $t_w = 30\text{min}$ B : $t_w = 360\text{min}$ **Abb.8.7:**

Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) für vier verschiedene Temperaturen und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=360\text{min}$ ($T_f=370\text{mK}$).

**Abb.8.8 :**

Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in der Nähe der Spinglastemperatur ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$). — In dem unteren Bild ist nur der warzeitabhängige Anteil für die verschiedenen Temperaturen aufgeführt. Der Gleichgewichtsanteil ist der Übersichtlichkeit wegen nicht mit eingetragen.

9. Zusammenfassung

Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit lag auf der Untersuchung der Spindynamik im Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$. Hierfür wurden Messungen des Zeitzerfalls der Thermo-Remanenten-Magnetisierung an Proben mit Eu-Konzentrationen zwischen $x=0.10$ und $x=0.30$ vorgenommen. Bei der Auswertung der Daten standen folgende Punkte im Vordergrund:

1. Die Spindynamik in der Nähe der Perkolationsschwelle
2. Alterungseffekte im Spinglassystem
3. Quantitative Beschreibung des TRM-Zerfalls

ad1.: Im Übergangsbereich von Spinglas zu Superparamagnet bei der Perkolationsschwelle $x_p=0.136$ macht sich in den TRM-Zerfallsmessungen bei tiefen Temperaturen der Einfluß kleinerer superparamagnetischer Cluster bemerkbar. So wird sowohl bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.10$) als auch im Spinglasbereich bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.175$) im Temperaturbereich um $T=55\text{mK}$ ein Maximum im Verlauf der Relaxationsrate S des TRM-Zerfalls beobachtet. Erklären läßt sich diese erhöhte Relaxationsrate qualitativ und auch quantitativ auf der Grundlage des Néel'schen Modells der Blockade superparamagnetischer Cluster:

Die spm. Cluster besitzen Anisotropien infolge von Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten innerhalb der Cluster. Zur Überwindung dieser Anisotropiebarrieren benötigen sie eine thermische Aktivierung, $E_a[\text{K}] = T \cdot \frac{1}{\ln(t/\tau_0)}$ (Arrhenius-Ansatz). Cluster, die diese Energie überwinden, können frei rotieren. Dies führt in den Messungen zu dem Maximum im Temperaturverlauf der Relaxationsrate S . Aus der Verschiebung des $S(T)$ -Maximums mit der Beobachtungszeit läßt sich die Energie E_a bestimmen. Es ist $E_a = 1.4\text{K}$. Dieser Wert stimmt größenordnungsmäßig mit den hierzu vorgenommenen theoretischen Berechnungen überein.

In Zusammenhang mit den TRM-Zerfallsmessungen an der $x=0.10$ - und der $x=0.175$ -Probe wurde weiterhin untersucht, ob und wie sich der Übergang von Spinglas zu Superparamagnet in den Messungen widerspiegelt. Da die Messungen an diesen beiden Proben qualitativ sehr ähnlich aussehen, hat es dabei zunächst den Anschein, daß die $x=0.10$ -Probe wie die $x=0.175$ -Probe ein Spinglas ist, der Spinglasbereich bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ also nicht nur bis $x=0.136$ geht sondern sich noch zu niedrigeren Eu-Konzentrationen erstreckt.

Die Diskussion der Messungen in dieser Hinsicht ergibt aber, daß die Perkolationschwelle bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ wie bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ bei $x=0.136$ liegt.

So läßt sich bei der $x=0.10$ -Probe die Verschiebung der TRM-Meßkurven mit der Beobachtungszeit wie bei den spm. Clustern durch ein thermisches Aktivierungsgesetz beschreiben, wohingegen dies bei den Proben mit $x \geq 0.15$ zu unphysikalisch hohen Parametern führt.

Weiterhin wird beobachtet, daß für $x \geq 0.15$ im Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} eine ausgeprägte Anomalie auftritt, die das kollektive Einfrieren der magnetischen Momente in die Spinglasstruktur anzeigt. Für $x < 0.15$ erkennt man dagegen nur eine allmähliche Abflachung des M_{dc} -Verlaufs mit abnehmender Temperatur. Dieser Verlauf spricht eher für einen dynamischen Einfrierprozeß, wie er bei dem Ausbilden spm. Cluster vorliegt.

ad2.: Die Messungen an den Spinglasproben zeigen einen Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall: der Zerfall ist umso langsamer, je länger das System vor der Messung im Spinglaszustand verbracht hat. Charakteristisch hierbei ist eine erhöhte Relaxationsrate zu einer Zeit t , die der Wartezeit t_w entspricht. Im Temperaturbereich um $T/T_f=0.80$ zeigt sich dies besonders deutlich durch ein Maximum im Verlauf von S bei $t \approx t_w$. Mit abnehmender Temperatur und Eu-Konzentration wird der t_w -Einfluß geringer.

Als Ursache für die Wartezeitabhängigkeit des TRM-Zerfalls ist in Anlehnung an Arbeiten von Lundgren et al. [7] ein zeitabhängiges Relaxationszeitspektrums im Spinglas diskutiert worden. Für ein solch zeitabhängiges Relaxationszeitspektrum können z.B. Umordnungsprozesse im System in Frage kommen, wie sie z.B. neuerdings auch in zwei theoretischen Modellen von Fisher u. Huse und Koper u. Hilhorst diskutiert werden. Für solche Umordnungsprozesse spricht auch eine hier beobachtete Zeitabhängigkeit der feldgekühlten Magnetisierung M_{FC} .

ad3.: Ein besonderer Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der quantitativen Analyse des TRM-Zerfalls zumal es bis heute in der Literatur keine einheitliche Beschreibung hierzu gibt. Es wurde deshalb zunächst ein Vergleich der hier vorgenommenen TRM-Zerfallsmessungen mit verschiedenen aktuellen Zerfallsgesetzen vorgenommen. Aber weder Potenzgesetz, logarithmisches Zerfallsgesetz oder Exponentialgesetz bzw. gestrecktes Exponentialgesetz (GEG) noch die aus dem Droplet-Modell von Fisher u. Huse und dem Domänen-Modell von Koper u. Hilhorst folgenden Beschreibungen passen hier die TRM-Zerfallsdaten an. Das Modell von Koper u. Hilhorst gibt aber den Einfluß der Wartezeit auf den TRM-Zerfall qualitativ richtig wieder. Ein großes Problem bei der quantitativen Analyse des TRM-Zerfalls liegt

darin, die Wartezeiteffekte in einer geeigneten Beschreibung zu erfassen. Man ist zunächst noch auf phänomenologische Ansätze angewiesen.

Mit dem eigenen Ansatz

$$M(t) = M_\alpha(0) \cdot t^{-\alpha} \cdot \exp [-(t/\tau)^{1-n}] + M_w(0) \cdot \exp [-(t/\tau_w)^{1-n_w}]$$

bestehend aus einem wartezeitunabhängigen Teil (Potenzgesetz · GEG) und einem wartezeitabhängigen Anteil (GEG mit $\tau_w \approx t_w$) gelang eine sehr gute und auch konsistente Beschreibung der TRM-Zerfallsdaten aller untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Spinglasproben.

Das GEG im hinteren Term obiger Gleichung sorgt für eine erhöhte Relaxationsrate bei $t = \tau_w \approx t_w$, wie es auch hier beobachtet wird.

Das Potenzgesetz im ersten Term beschreibt die Gleichgewichtsdynamik bei kurzen Beobachtungszeiten. α nimmt mit der Temperatur zu und liegt bei T_f in der Größenordnung von 0.1. Die Temperaturabhängigkeit von α steht dabei in Einklang mit Computersimulationen von Ogielski.

Das GEG bei dem Potenzgesetz bewirkt einen Abfall der Relaxationsrate bei $t \approx \tau$. τ nimmt mit der Temperatur ab und liegt bei T_f in der Größenordnung der Meßzeit.

α und τ hängen nicht von der Eu-Konzentration ab sondern nur von T/T_f . Die beiden time-stretched-Exponenten n und n_w zeigen keine signifikante Abhängigkeit weder von der Temperatur, der Eu-Konzentration noch der Wartezeit. n liegt bei etwa 0.7, n_w im Bereich zwischen 0.5 – 0.6.

Die Ergebnisse dieser Arbeit haben gezeigt, daß Spingläser immer noch ein sehr reizvolles und interessantes Forschungsgebiet darstellen. Im Hinblick auf die hier vorgenommenen Untersuchungen darf man vor allem auf die weitere Entwicklung theoretischer Modelle zur quantitativen Beschreibung des TRM-Zerfalls gespannt sein. Für das Spinglassystem $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ erscheint eine Ausweitung der Messungen auf den unteren Konzentrationsbereich $x \leq 0.10$ sinnvoll, um hier die Dynamik im superparamagnetischen Bereich näher zu untersuchen. In dieser Richtung laufen momentan weitere Vorbereitungen.

Literaturverzeichnis

- [1] V. Cannella, J.A. Mydosh :
Phys. Rev. B **6**(11) , 4220 (1972)

- [2] 'inspec'-Literaturrecherche vom 14.08.1989

- [3] J.J. Hopfield : *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **79** , 2554 (1982)
P.W. Anderson : *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **80** , 3386 (1983)

- [4] F.-J. Börgermann, H. Maletta, W. Zinn :
JMMM **54-57** , 71 (1986)

- [5] F.-J. Börgermann, H. Maletta, W. Zinn :
Phys. Rev. B **35**(16) , 8454 (1987)

- [6] N.W. Dalton, C. Domb, M.F. Sykes :
Proc. Phys. Soc. **83**, 496 (1964)

- [7] L. Lundgren, P. Svedlindh, P. Nordblad, O. Beckman :
Phys. Rev. Lett. **51**(10) , 911 (1983)

- [8] H. Maletta, W. Felsch :
Phys. Rev. B **20**(3) , 1245 (1979)

- [9] G. Toulouse :
Comm. Phys. **2**, 115 (1977)

- [10] H.G. Bohn, W. Zinn, B. Dorner, A. Kollmar :
J. Appl. Phys. **52**(3) , 2228 (1981)

- [11] T. Kasuya :
CRC Crit. Rev. in Solid State Sciences **3**, 131 (1972)

- [12] P. Wachter : *CRC Crit. Rev. in Solid State Sciences* **3**, 189 (1972)
P. Wachter : 'Eu-Monochalcogenides : EuO, EuS, EuSe and EuTe',
Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earth, ed. K.A. Gschneid-
ner, Jr. and L. Eyring, North-Holland Publ. Comp. **2**, 507 (1979)

- [13] W. Zinn :
JMMM **3** , 23 (1976)

- [14] H. Maletta, W. Zinn : 'Spin Glasses',
Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earth, ed. K.A. Gschneid-
ner, Jr. and L. Eyring, North-Holland Publ. Comp. **12**(1986)
- [15] W.F. Wolff, J. Zittartz :
Zeitschrift für Physik **B60**, 185 (1985)
- [16] H. Maletta, W. Felsch, J.L. Tholence :
JMMM **9** , 41 (1978)
- [17] U. Baumann, D. Schubert, A. Schwotzer, G. Weber :
JMMM **45** , 179 (1984)
- [18] D. Hüser, L.E. Wenger, A.J. van Duyneveldt, J.A. Mydosh :
Phys. Rev. **B27**(5) , 3100 (1983)
- [19] S. Nagato, P.H. Keesam, H.R. Harrison :
Phys. Rev. **B19**(3) , 1633 (1979)
- [20] L. Lundgren, P. Nordblad, P. Svedlindh, O. Beckman :
J. Appl. Phys. **57**(1) , 3371 (1985)
- [21] W. Kinzel, H. Maletta :
Sonderdruck aus IFF-Bulletin **26** (1985) der KFA-Jülich
- [22] K. Binder, A.P. Young :
Rev. Mod. Physics **58**(4) , 801 (1986)
- [23] W. Buckel : 'Supraleitung , Grundlagen und Anwendungen',
Physik-Verlag Weinheim , 3.Aufl. (1986)
- [24] O.V. Lounasmaa : 'Experimental Methods and Principles below 1K',
Academic Press London, New York (1974)
- [25] F.-J. Börgermann :
'Spinglasverhalten des verdünnten Antiferromagneten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ',
Dissertation Univ. Köln (1986)
- [26] D. Shannon :
Acta Cryst. **A32**, 751 (1976)
- [27] Landolt - Börnstein, : Vol. III, Bd.12c (1982)
Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York

- [28] M. Alba, J. Hamman :
JMMM 54-57 , 213 (1986)
- [29] L. Lundgren, P. Svedlindh, O. Beckman :
JMMM 25 , 33 (1981)
- [30] L. Lundgren, P. Svedlindh, O. Beckman :
Phys. Rev. B 26(7) , 3990 (1982)
- [31] N. Bontemps, J.C. Rivoal, M. Billardon, J. Rajchenbach, J. Ferre :
J. Appl. Phys. 52(3) , 1760 (1981)
- [32] H. Maletta :
JMMM 24 , 179 (1981)
- [33] L. Néel : *Ann. Geophys.* 5, 99 (1949)
L. Néel : *Adv. Phys.* 4, 191 (1955)
- [34] G. Eiselt, J. Kötzler, H. Maletta, D. Stauffer , K. Binder :
Phys. Rev. B 19(5) , 2664 (1979)
- [35] L.C.E. Strijk : 'Physical Aging in Amorphous Polymers and other Materials',
Elsevier, New York (1978)
- [36] C. Rossel, Y. Maeno, I. Morgenstern :
Phys. Rev. Lett. 62(3) , 681 (1989)
- [37] L.E. Wenger, J.A. Mydosh :
J. Appl. Phys. 55, 1717 (1984)
- [38] R.V. Chamberlain :
Phys. Rev. B 30(9) , 5393 (1984)
- [39] L. Lundgren, P. Svedlindh, O. Beckman :
JMMM 31-34 , 1349 (1983)
- [40] D.S. Fisher, D.A. Huse :
Phys. Rev. B 38(1) , 373,386 (1988)
- [41] G.J.M. Koper, H.J. Hilhorst :
J. Phys. France 49, 429 (1988)
- [42] P. Nordblad, P. Svedlindh, P. Granberg, L. Lundgren :
Phys. Rev. B 35(13) , 7181 (1987)

- [43] A.T. Ogielski :
Phys. Rev. B **32**(11) , 7384 (1985)
- [44] R. Kohlrausch :
Ann. Phys. (Leipzig) **12**, 393 (1847)
- [45] R.V. Chamberlain, G. Mozurkewich, R. Orbach :
Phys. Rev. B **52**(10) , 867 (1984)
- [46] R. Hoogerbeets, Wei-Li Luo, R. Orbach :
Phys. Rev. B **34**(3) , 1719 (1986)
- [47] R.G. Palmer, D.L. Stein, E. Abrahams, P.W. Anderson :
Phys. Rev. Lett. **53**(10) , 958 (1984)
- [48] C. De Dominicis, H. Orland, F. Lainée : *J. Phys. Lett.* **46**, L463 (1985)
C. De Dominicis, M. Schreckenberg : *Proc. Heidelberg Colloq. on Glassy Dynamics , Lecture Notes in Physics* **275**, 255 (1986)
- [49] L. Lundgren, P. Nordblad, P. Svedlindh, :
Phys. Rev. B **34**(11) , 8164 (1986)
- [50] G.C. De Fotis, D.S. Mantus, E.M. Mc Ghee, K.R. Echols, R.S. Wiese :
Phys. Rev. B **38**(16) , 11486 (1988)
- [51] L. Sandlund, P. Svedlindh, P. Granberg, P. Nordblad, L. Lundgren :
J. Appl. Phys. **64**(10) , 5616 (1988)
- [52] P. Nordblad, P. Svedlindh, L. Lundgren, L. Sandlund :
Phys. Rev. B **33**(1) , 645 (1986)
- [53] K. Binder, K. Schröder :
Phys. Rev. B **14**(5) , 2142 (1976)
- [54] M.A. Continentino, A.P. Malozemoff :
Phys. Rev. B **33**(5) , 3591 (1986)

Abbildungsverzeichnis

- 1) Abb.1.1 : Magnetisches Phasendiagramm von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ [5].
- 2) Abb.2.1 : Spinstellungen von Ferromagnet, Antiferromagnet, Spinglas und Paramagnet im Vergleich.
- 3) Abb.2.2 : (a) Magnetische Austauschwechselwirkungen zwischen den Eu-Atomen in EuX -Verbindungen ($X=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) (nach [11]).
(b) Abhängigkeit der Austauschparameter J_r vom gegenseitigen Eu-Eu-Abstand R_r ($r=1,2$) [10].
- 4) Abb.2.3 : Magnetische Phasendiagramme von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ (schematisch [14]), $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ [8] und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ [5].
- 5) Abb.2.4 : Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} und Real- und Imaginärteil der ac-Suszeptibilität χ_{ac} von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.20$) beim Abkühlen im Feld $H=5\text{Oe}$.
- 6) Abb.2.5 : Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung M_{dc} für Field Cooling (FC) und Zero Field Cooling (ZFC) (schematisch).
- 7) Abb.2.6 : Schematische Darstellung der Freien Energie F eines Spinglases.
- 8) Abb.3.1 : Ankopplung eines SQUID an einen Schwingkreis mit der Resonanzfrequenz ω_r und zusätzlicher Kompensationsspule KS (schematisch [23]).
- 9) Abb.3.2 : Messung von Magnetisierungsänderungen einer Probe in einer SQUID-Anordnung bestehend aus Proben-Pickupspule, SQUID-Signalspule und rf-Schwingkreis (schematisch).
- 10) Abb.4.1 : Quarzgefäß für die Züchtung der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben.
- 11) Abb.4.2 : Temperaturverlauf der inversen, auf die Dichte normierten Suszeptibilität ρ/χ für die untersuchten $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben.
- 12) Abb.5.1 : Prinzipieller Ablauf einer TRM-Zerfallsmessung.

- 13) Abb.6.1 : Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ beim Abkühlen im Erdfeld $H_0 \approx 0.5\text{Oe}$.
- 14) Abb.6.2 : Temperaturverlauf der statischen Magnetisierung von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Konzentrationsgebiet von $x=0.10$ bis $x=0.20$, aufgenommen im Erdfeld H_0 .
- 15) Abb.6.3 : Statische Magnetisierungsmessungen von Börgermann an verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben [5].
- 16) Abb.6.4 : Magnetisches Phasendiagramm von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ im Bereich der Perkolationsschwelle $x=x_p=0.136$.
- 17) Abb.6.5 : TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ für drei verschiedene Temperaturen $T/T_f=0.80$, 0.85 und 0.90 ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 18) Abb.6.6 : Temperaturabhängigkeit des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ für verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} nach Ausschalten des Feldes $H=10\text{Oe}$ ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 19) Abb.6.7 : Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ für verschiedene Beobachtungszeiten t_{obs} nach Ausschalten des Feldes $H=10\text{Oe}$ ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 20) Abb.6.8 : Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ im Temperaturbereich zwischen $T/T_f=0.20$ bis $T/T_f=0.80$ (a) und im Temperaturbereich zwischen $T/T_f=0.80$ bis $T/T_f=1.00$ (b) ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 21) Abb.6.9 : TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ bei $T/T_f=0.80$ für drei verschiedene Wartezeiten $t_w=15\text{min}$, 150min und 1500min ($T_f=500\text{mK}$).
- 22) Abb.6.10: TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ für vier verschiedene Temperaturen und für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f=1070\text{mK}$).
- 23) Abb.6.11: Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ bei $T=770\text{mK}$ ($T/T_f=0.72$) und $T=880\text{mK}$ ($T/T_f=0.82$) für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f=1070\text{mK}$).

- 24) **Abb.6.12:** Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben bei einer Temperatur von $T/T_f \approx 0.80$ und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=1\text{d}$.
- 25) **Abb.6.13:** Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ für vier verschiedene Temperaturen und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=360\text{min}$ ($T_f=370\text{mK}$).
- 26) **Abb.6.14:** Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in der Nähe der Spinglastemperatur ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 27) **Abb.7.1 :** (a) Temperaturverlauf der ac-Suszeptibilität bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ für verschiedene Meßfrequenzen ν [5].
(b) Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ für verschiedene Beobachtungszeiten $t_{\text{obs}} = \frac{1}{2\pi\nu}$.
- 28) **Abb.7.2 :** Verschiebung des χ' -Maximums in ac-Suszeptibilitätsmessungen und der $S(T)$ -Flanke in TRM-Zerfallsmessungen mit der Beobachtungszeit.
- 29) **Abb.7.3 :** Temperaturverlauf der Relaxationsrate bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ und $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.10)$ für verschiedene Beobachtungszeiten.
- 30) **Abb.7.4 :** Zeitabhängigkeit der feldgeköhlten Magnetisierung M_{FC} bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$.
- 31) **Abb.7.5 :** Entwicklung des Relaxationszeitspektrums $g(\tau)$ mit dem Alter des Spinglaszustandes $t_a=t_w+t_{\text{obs}}$, ($t_{\text{obs}}=\tau$).
- 32) **Abb.8.1 :** TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in verschiedenen (halb)logarithmischen Auftragungen ($T/T_f=0.80$, $T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).
- 33) **Abb.8.2 :** TRM-Zerfall bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in einer doppellogarithmischen Auftragung von $-d/dt \ln M(t)$ gegen t ($T/T_f=0.80$, $T_f=500\text{mK}$). — Für ein gestrecktes Exponentialgesetz $M(t) = M(0) \cdot \exp [-(t/\tau)^{1-n}]$ müßten die Daten in dieser Darstellung auf einer Geraden liegen.
- 34) **Abb.8.3 :** Relaxationsrate des TRM-Zerfalls im Modell von Koper u. Hilhorst [41].

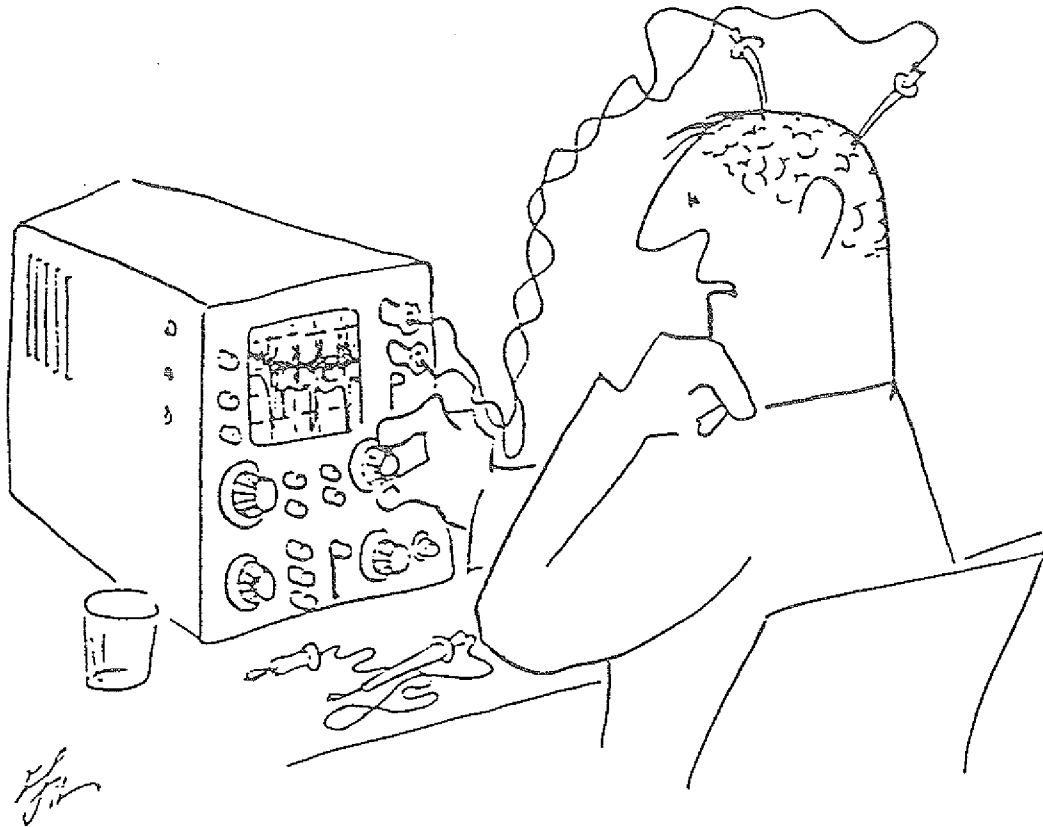
- 35) Abb.8.4 : Temperaturabhängigkeit der Fitparameter α , τ , n und n_w für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen an Gl.(8.12).
- 36) Abb.8.5 : Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.30)$ bei $T=770\text{mK}$ ($T/T_f=0.72$) und $T=880\text{mK}$ ($T/T_f=0.82$) für jeweils fünf verschiedene Wartezeiten ($T_f=1070\text{mK}$).
- 37) Abb.8.6 : Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei verschiedenen $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben bei einer Temperatur von $T/T_f \approx 0.80$ und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=1\text{d}$.
- 38) Abb.8.7 : Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.175)$ für vier verschiedene Temperaturen und zwei verschiedenen Wartezeiten $t_w=30\text{min}$ und $t_w=360\text{min}$ ($T_f=370\text{mK}$).
- 39) Abb.8.8 : Güte der Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12), dargestellt für die Relaxationsrate des TRM-Zerfalls bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}(x=0.20)$ in der Nähe der Spinglastemperatur ($T_f=500\text{mK}$, $t_w=30\text{min}$).

Tabellenverzeichnis

- 1) **Tab.6.1** : *Spinglastemperaturen von $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$.*
- 2) **Tab.7.1** : *Anregungsenergien, ermittelt aus der Verschiebung des χ_{ac} - bzw. TRM-Temperaturverlaufs mit der Beobachtungszeit auf der Grundlage eines Arrhenius-Gesetzes.*
- 3) **Tab.7.2** : *Anisotropiebarrieren superparamagnetischer Cluster in $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$.*
- 4) **Tab.8.1** : *Fitparameter für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen bei $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ ($x=0.30$) mit Gl.(8.11).*
- 5) **Tab.8.2** : *Fitparameter für die Anpassung der TRM-Zerfallsmessungen mit Gl.(8.12).*

Ich möchte nicht versäumen, meiner Arbeit noch ein Portrait des "Spingläsernen Menschen" beizufügen.

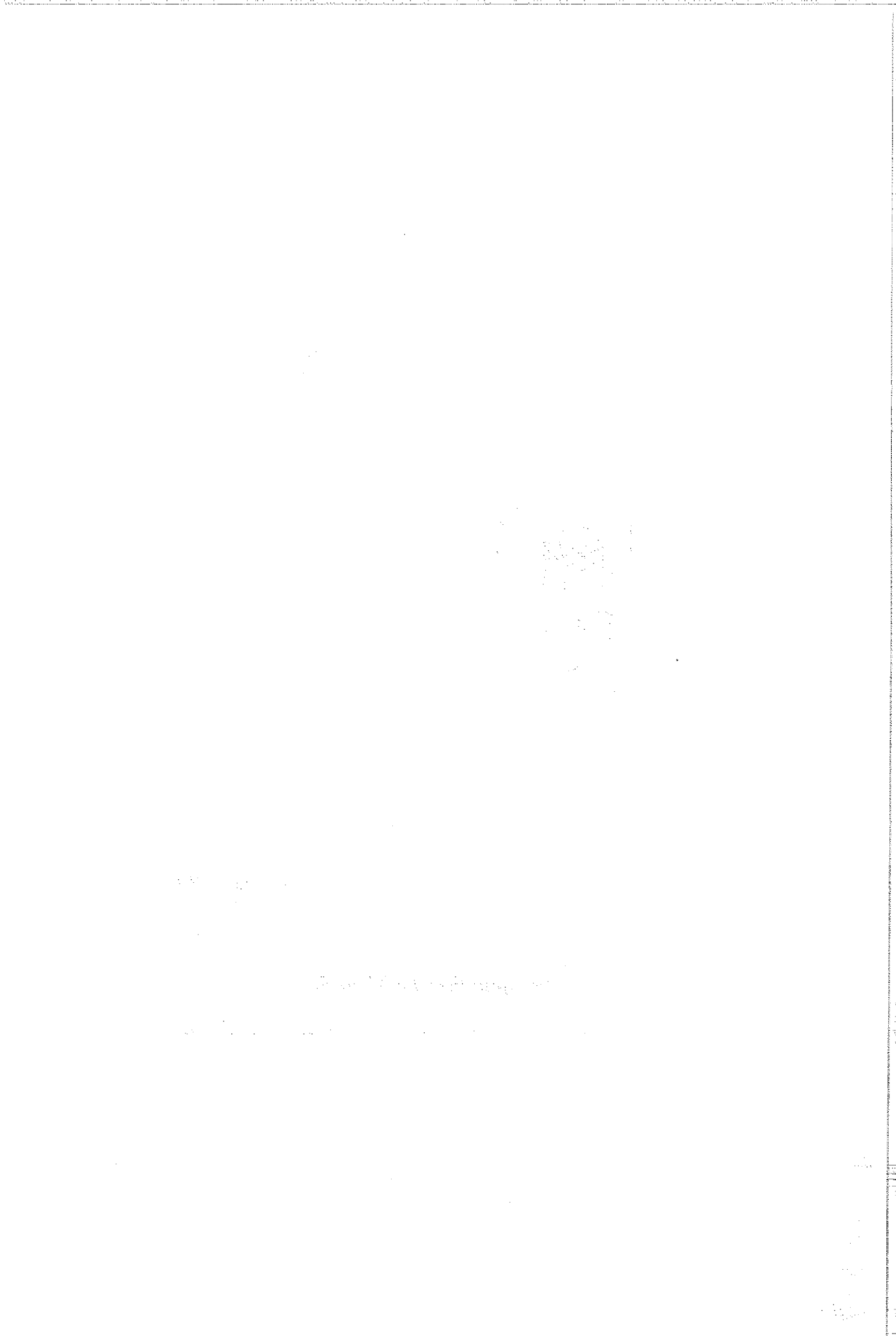
Diese mir sehr vertraute Person hat bei der Beschäftigung mit Spingläsern einige der typischen Spinglaseigenschaften bei sich selbst vorgefunden.



Zeichnung: C. Heller, Düsseldorf
aus: Phys. Blätter 44(2), 29 (1988)

"Der spingläserne Mensch"

"So habe ich mich auch manchmal gefühlt: Unordnung, Frustration und lauter Minima."



DANKSAGUNG

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, insbesondere

- Herrn Prof. Dr. W. Zinn für sein stetes Interesse an dieser Arbeit und für viele hilfreiche Diskussionen. Bei ihm möchte ich mich auch bedanken, daß er mir die Durchführung dieser Arbeit am Institut für Festkörperforschung der KFA-Jülich ermöglichte.
- Herrn Prof. Dr. H. Maletta für seine wissenschaftliche Betreuung und Unterstützung dieser Arbeit und für viele Anregungen.
- Herrn Dr. F.-J. Börgermann für die Einführung in die Meßmethode und die Handhabung des $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischkryostaten
- Herrn K. Fischer für die Anleitung bei der Präparation der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Einkristalle
- dem Zentralinstitut für chemische Analyse (ZCH) im IFF für die Analyse der $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben
- Frau Dr. A. Abeln und Herrn Dr. U. Köbler für magnetische Messungen an den $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Te}$ -Proben
- meinen Kollegen W. Böhner, A. Holzwarth, J. Landes und D. Stöber für ein stets gutes Arbeitsklima
- meiner Frau, die das Manuskript dieser Arbeit getippt hat.

Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Prof. Dr. J. Zittartz, der sich freundlicherweise bereit erklärt hat, das Koreferat bei der Begutachtung dieser Arbeit zu übernehmen.

1. The first part of the paper is devoted to the study of the properties of the function $f(x)$ defined by the equation

$$f(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$

It is shown that the function $f(x)$ is increasing and concave down on the interval $(-\infty, \infty)$.

2. In the second part of the paper, we consider the function $g(x)$ defined by the equation

$$g(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$

It is shown that the function $g(x)$ is increasing and concave down on the interval $(-\infty, \infty)$.

3. In the third part of the paper, we consider the function $h(x)$ defined by the equation

$$h(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$

It is shown that the function $h(x)$ is increasing and concave down on the interval $(-\infty, \infty)$.

4. In the fourth part of the paper, we consider the function $k(x)$ defined by the equation

$$k(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$

It is shown that the function $k(x)$ is increasing and concave down on the interval $(-\infty, \infty)$.

5. In the fifth part of the paper, we consider the function $l(x)$ defined by the equation

$$l(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$

It is shown that the function $l(x)$ is increasing and concave down on the interval $(-\infty, \infty)$.

6. In the sixth part of the paper, we consider the function $m(x)$ defined by the equation

$$m(x) = \int_0^x \frac{1}{1+t^2} dt$$