

DISS. ETH NO. 24752

**INTERTWINED DEGREES OF FREEDOM IN
THE SERIES $\text{Nd}_{1-x}\text{Ce}_x\text{CoIn}_5$**

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH

(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

DANIEL GABRIEL MAZZONE

MSc ETH Physics
born on the 15.12.1988
citizen of Zermatt

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. J. F. Mesot, examiner
Prof. Dr. M. Sigrist, co-examiner
Dr. J. L. Gavilano, co-examiner
Prof. Dr. M. Kenzelmann, co-examiner

2017

ABSTRACT

Strongly correlated electron systems are quantum materials that reveal a deep intertwining between different electronic charge, orbital, spin and lattice degrees of freedom. The interaction among them can stabilize ground states that feature novel collective phenomena and that potentially contribute to the development of future technical applications, if they are understood on a microscopic level.

Particular complex quantum phenomena occur in systems containing rare earth elements, where the conduction electrons either screen or couple the magnetic moments of partially filled electronic f -states. The subtle balance between these energy scales yields strong electronic fluctuations that trigger a rich diversity of ground states, including unconventional superconductivity, antiferromagnetism or correlated insulating, metallic and topological protected states.

CeCoIn₅ is a model heavy-fermion d -wave superconductor that is believed to be mediated by magnetic fluctuations. Superconductivity is Pauli limited and features an additional phase at very low temperatures and large magnetic fields. This so-called Q-phase reveals magnetic order that only survives inside the superconducting condensate and directly couples to it.

Here, we show that the substitution of the local-moment element Nd for Ce in CeCoIn₅ tunes the hybridization between the $4f$ -electrons and the conduction band, such that the system is driven into an antiferromagnetic state arising from a small Fermi surface. We demonstrate that the Q-phase is stable under a small perturbation represented by a Nd doping of 5%. The high-field phase is separated from a low-field antiferromagnetic state via a magnetic instability that may originate from a field-induced quantum phase transition. Intriguingly, both phases display an identical magnetic symmetry, which prevents the emergence of a primary order parameter of magnetic nature in the Q-phase. The detailed investigation of the magnetic order in the two phases shows that the spin-density modulation directions are affected differently by a rotation of the magnetic field inside the tetragonal plane. While the anisotropic spin susceptibility in both phases arises from intertwined spin and orbital degrees of freedom, the coupling between superconductivity and magnetism is altered in the high-field state. These results suggest that the field-induced quantum phase transition triggers the emergence of an auxiliary superconducting order parameter in the Q-phase that couples magnetic order with d -wave superconductivity. In contrast, we suggest that magnetism and superconductivity are decoupled in the low-field phase. This conclusion is based on the investigation of the low-energy excitation spectrum of Nd_{0.05}Ce_{0.95}CoIn₅ at zero field. We observe magnetic fluctuations that are related to the superconducting condensate, but which are not affected by magnetic order. We suggest that the superconducting resonance consists of Ising-like fluctuations along the direction of static magnetic order.

ZUSAMMENFASSUNG

Stark korrelierte Elektronensysteme sind Quantenmaterialien, in welchen elektronische Ladungs-, orbitale, Spin- und strukturelle Freiheitsgrade intrinsisch verflochten sind. Die Wechselwirkungen zwischen diesen Parametern können Grundzustände stabilisieren, die neue kollektive Phänomene hervorrufen, welche wiederum für die Entwicklung zukünftiger technischer Anwendungen relevant sein könnten, falls sie auf einer mikroskopischen Ebene verstanden werden.

Besonders komplexe Quantumphänomene tauchen in Systemen mit seltenen Erden auf. In diesen Materialien schirmen die Leitungselektronen die magnetischen Momente der teilweise besetzten elektronischen f -Zuständen ab oder vermitteln diese. Das subtile Gleichgewicht dieser Energieskalen führt zu starken elektronischen Fluktuationen, die verschiedene Grundzustände, wie unkonventionelle Supraleitung, Antiferromagnetismus oder korrelierte isolatorische, metallische und topologisch geschützte Zustände hervorrufen können.

CeCoIn₅ ist ein Vorzeigesystem der schweren Fermionen mit d -Wellen Supraleitung, von welcher man glaubt, dass sie durch magnetische Fluktuationen induziert wird. Die supraleitende Phase ist Pauli limitiert und verfügt über einen zusätzlichen Zustand bei tiefen Temperaturen und hohen magnetischen Feldern. Diese sogenannte Q-Phase ist charakterisiert durch eine magnetische Ordnung, welche nur innerhalb des supraleitenden Kondensats überlebt und direkt an dieses koppelt.

Die vorliegende Arbeit zeigt, dass die Substitution des lokalen Momentes von Nd für Ce in CeCoIn₅ die Hybridisation zwischen den $4f$ -Elektronen und dem Leitungsband verändert, sodass das System in einen antiferromagnetischen Zustand getrieben wird, der sich in einer kleinen Fermioberfläche bildet. Wir demonstrieren, dass die Q-Phase stabil bleibt, wenn sie durch eine 5% Nd Konzentration gestört wird. Die Hochfeldphase wird durch eine magnetische Instabilität, welche durch einen Quantenphasenübergang hervorgerufen werden könnte, von einem antiferromagnetischen Zustand bei tiefen Feldern getrennt. Interessanterweise zeigen beide Phasen dieselbe magnetische Symmetrie, was einen primären magnetischen Ordnungsparameter am Ursprung der Q-Phase ausschliesst. Die detaillierte Untersuchung der magnetischen Ordnung beider Phasen offenbart, dass die Modulationsrichtungen der spin-dichte Welle von einem rotierenden magnetischen Feld in der tetragonalen Ebene unterschiedlich beeinflusst werden. Während die anisotropische Spin-suszeptibilität beider Phasen von einer Verflechtung von Spin und orbitalen Freiheitsgraden herrührt, verändert sich die Kopplung zwischen der Supraleitung und dem Magnetismus in der Hochfeldphase. Diese Resultate suggerieren, dass der feldinduzierte Quantenphasenübergang einen zusätzlichen supraleitenden Ordnungsparameter in der Q-Phase hervorruft, der die magnetische Ordnung mit der d -Wellen Supraleitung verbindet. Im Gegensatz dazu denken wir, dass Magnetismus und Supraleitung in der Tiefelfeldphase voneinander unabhängig bleiben. Dies schliessen wir aus der Untersuchung des Anregungsspektrums von Nd_{0.05}Ce_{0.95}CoIn₅ bei verschwindendem Feld, in welchem wir magnetische Fluktuationen beobachten, die zur Supraleitung gehören, aber nicht von der magnetischen Ordnung beeinflusst werden. Wir interpretieren dies als supraleitende Resonanz, welche ising'sche Fluktuationen aufweist, die entlang des statischen magnetischen Momentes polarisiert sind.