

THERMISCHE AUSDEHNUNG UND MAGNETOSTRIKTION  
VON  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$   
BEI SEHR TIEFEN TEMPERATUREN

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN  
von der Fakultät für Physik  
der Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Stefanie Drobnik  
aus Karlsruhe

Tag der mündlichen Prüfung: 11.07.2008

Referent: Prof. Dr. Hilbert von Löhneysen

Korreferent: Prof. Dr. Georg Weiß



# Inhaltsverzeichnis

<b>Motivation</b>	<b>1</b>
<b>1 Grundlagen</b>	<b>3</b>
1.1 Thermodynamik an Phasenübergängen . . . . .	3
1.1.1 Klassische Phasenübergänge . . . . .	4
1.1.2 Quantenphasenübergänge . . . . .	5
1.1.3 Entropie am Quantenphasenübergang . . . . .	7
1.2 Schwer-Fermion-Systeme . . . . .	10
1.3 CeCu <sub>6-x</sub> Au <sub>x</sub> : Bisherige Messungen . . . . .	16
<b>2 Experimentelle Technik</b>	<b>25</b>
2.1 Entmischungskryostat und Dilatometer . . . . .	25
2.1.1 Der Entmischungskryostat . . . . .	25
2.1.2 Verdrahtung . . . . .	26
2.1.3 Aufbau des Dilatometer . . . . .	28
2.1.4 Messprinzip . . . . .	30
2.1.5 Messhintergrund zur thermischen Ausdehnung und Magnetostrik- tion . . . . .	33
2.1.6 Auswertung der Daten und Temperaturkorrektur . . . . .	34
2.1.7 Messungen oberhalb 10 K . . . . .	37
2.2 Proben . . . . .	37
<b>3 CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>: Messergebnisse und Diskussion</b>	<b>41</b>
3.1 Thermische Ausdehnung . . . . .	41
3.1.1 Tieftemperaturverhalten der Volumenausdehnung $\alpha_V$ . . . . .	44
3.1.2 Volumenabhängigkeit und Vorzeichenwechsel in $\alpha_V$ . . . . .	48
3.1.3 Anisotropie der Tieftemperaturdaten $\alpha_i$ . . . . .	50
3.1.4 Vergleich zwischen $E_{\text{Kondo}}(V(x))$ mit $E_{\text{Kondo}}(V(p))$ . . . . .	56
3.2 Verhalten im Magnetfeld - Vergleich der Kontrollparameter Druck $p$ und $B$	59
3.2.1 Thermische Ausdehnung im Magnetfeld . . . . .	59
3.2.2 Magnetostriktion . . . . .	62
3.2.3 Vergleich der Kontrollparameter Volumen und Magnetfeld . . . . .	67
3.3 Phasendiagramm . . . . .	70
<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>72</b>

<b>Anhang A</b>	<b>75</b>
Einfluss der Federdicke - Thermische Ausdehnung unter uniaxialem Druck . .	75
<b>Anhang B</b>	<b>79</b>
Übersicht über die Messungen . . . . .	79
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>81</b>
<b>Danksagung</b>	<b>91</b>

# Motivation

Die in dieser Arbeit untersuchte Substanz  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  gehört zu den Schwer-Fermion-Systemen (SFS). Sie beschreiben eine Klasse intermetallischer Verbindungen, in der Metallionen mit nicht abgeschlossener  $4f$ - oder  $5f$ -Schale in einem regelmässigen Kristallgitter angeordnet sind. In diesen Systemen bildet sich bei tiefen Temperaturen durch den Kondo-Effekt an den magnetischen  $4f$  ( $5f$ )-Störstellen ein stark korrelierter Vielteilchenzustand aus, in dem die effektive Masse der Quasiteilchen die Masse freier Elektronen um mehr als das hundertfache übersteigen kann. Aufgrund der starken Korrelationen verhalten sich diese Verbindungen wie Fermi-Flüssigkeiten, wobei der Sommerfeldkoeffizient  $C/T$  und die Pauliususzeptibilität  $\chi_p$  extrem hohe Werte annehmen.

Je nachdem, ob der lokale Kondo-Effekt zu einer Abschirmung der magnetischen Momente führt, oder die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Ionen (RKKY-Wechselwirkung) dominiert, weisen die Systeme bei tiefen Temperaturen einen unmagnetischen oder einen magnetisch geordneten Grundzustand auf. Da beide Effekte von der schwachen Hybridisierung der  $4f(5f)$ -Orbitale mit dem Leitungsband abhängen, kann der Grundzustand durch Druck oder eine Variation der chemischen Zusammensetzung verändert werden. Interessanterweise beobachtet man am Phasenübergang zwischen den beiden Grundzuständen starke Abweichungen vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten. Für die Beschreibung dieses Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhaltens (NFL) bei einem solchen Quantenphasenübergang (QKP) wurden verschiedene theoretische Erklärungsmodelle entwickelt. Phasenübergänge zu Beginn einer geordneten Phase am absoluten Nullpunkt führen zu einem fundamental anderen Verhalten als klassische Phasenübergänge bei endlichen Temperaturen, da der Einfluss von Quantenfluktationen nicht mehr vernachlässigt werden kann. Experimentelle Untersuchungen zeigen, dass das hieraus resultierende NFL-Verhalten keineswegs auf tiefste Temperaturen beschränkt ist, sondern zu weit höheren Temperaturen ausstrahlen kann.

Bei einem QKP erzeugt die Instabilität zwischen verschiedenen Grundzuständen selbst bei tiefsten Temperaturen ein Maximum in der Entropie  $S$  als Funktion des nichtthermischen Kontrollparameters, mit dem der magnetisch geordnete Zustand unterdrückt wurde. Daher ist neben dem spezifischen Wärmekoeffizienten  $\partial S/\partial T$  insbesondere die Ableitung der Entropie nach dem Kontrollparameter eine wichtige Größe, um einen QKP zu charakterisieren. Die Wahl des Kontrollparameters Druck ergibt für  $\partial S/\partial p$  den thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha$ . Ebenso wie  $C/T$  divergiert  $\alpha$ , aber im Unterschied zu  $C/T$  wechselt  $\alpha$  am QKP sein Vorzeichen und erlaubt daher die exakte Position des QKP zu ermitteln. Bisherige thermische Ausdehnungsmessungen an Schwer-Fermion-Systemen ergaben ungewöhnlich hohe Werte für  $\alpha$ , die bis zu fünf Größenordnungen

über dem normaler Metalle liegen. Diese weisen deutlich auf die Nähe eines druckinduzierten QKP hin.

Der magnetische Quantenphasenübergang von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  gehört zu den am besten untersuchten QKP. Trotzdem ist es bis heute nicht gelungen, eine in sich geschlossene Erklärung für das beobachtete NFL-Verhalten zu finden. Insbesondere zwei Modelle haben sich in den letzten Jahren durchgesetzt: das itinerante Szenario, in dem die Quasiteilchen am QKP erhalten bleiben und der Magnetismus sich aus einer Spindichtewelle entwickelt, und das lokale Szenario, in dem die Quasiteilchen am QKP zerfallen und der Magnetismus aus den ungeschirmten magnetischen Momenten gebildet wird. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, durch Messung der thermischen Ausdehnung das NFL-Verhalten von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  besser zu verstehen. Falls die Quasiteilchen am QKP aufbrechen, muß sich die Fermifläche abrupt ändern. Das sollte eine plötzliche Änderung des Kristallvolumens zur Folge haben und uns erlauben, zwischen den beiden Modellen zu unterscheiden. Neben dem Druck oder der chemischen Zusammensetzung kann der antiferromagnetisch geordnete Grundzustand in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  auch durch ein Magnetfeld unterdrückt werden. Deshalb wurde neben thermischen Ausdehnungsmessungen im Magnetfeld auch die Magnetostriktion untersucht, welche die Längenänderung als Funktion des angelegten Magnetfeldes bezeichnet. Thermische Ausdehnung und Magnetostriktion können unterschiedlich entlang der einzelnen Kristallachsen sein. Sie vermitteln im Gegensatz zu  $C/T$  daher zusätzliche Informationen über die Anisotropie der Wechselwirkungen in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ .

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: **Kapitel 1** trägt grundlegende Fakten über die Physik an Phasenübergängen zusammen und stellt die Messgrößen thermische Ausdehnung und Magnetostriktion vor. Die Eigenschaften der Entropie bei endlichen Temperaturen in der Nähe eines Quantenphasenübergang wird hier erläutert. Eine Einführung in die Physik der Schwer-Fermion-Systeme wird in Kapitel 1.2 und 1.3 gegeben und legt die Grundlagen für das Verständnis des  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ , das in Kapitel 1.4 vorgestellt wird. In **Kapitel 2** wird der experimentelle Aufbau der Messapparatur beschrieben. Die Datenanalyse und die Schwierigkeiten der Temperaturmessung bei tiefen Temperaturen werden dargestellt, als auch die Proben charakterisiert. **Kapitel 3** stellt die Messergebnisse dieser Arbeit vor. In Kapitel 3.1 werden die thermischen Ausdehnungsdaten für  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ , mit den Konzentrationen  $x = 0.1$  und  $x = 0.15$  dargestellt. Das Tieftemperaturverhalten von  $\alpha$  wird mit theoretischen Vorhersagen verglichen und die Daten zusammen mit  $C/T$  über dem Elementarzellenvolumen  $V$  aufgetragen. Ein Vergleich des Verhaltens von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  unter Druck und bei variierender Konzentration zeigt die Ähnlichkeit der Kontrollparameter und wird in Kapitel 3.3 mit dem Verhalten im Magnetfeld komplettiert. Die Vergleichbarkeit der Kontrollparameter  $p$  und  $B$  wird mit Hilfe der Magnetostriktion untersucht. Ein Phasendiagramm schließt das Kapitel der Analyse ab und zeigt neue unbeantwortete Fragen auf. Die Arbeit wird in der Zusammenfassung resümiert und mögliche zukünftige Experimente werden vorgeschlagen.

# 1 Grundlagen

## 1.1 Thermodynamik an Phasenübergängen

An einem Phasenübergang ändern sich die makroskopischen Ordnungszustände einer Substanz. Phasenübergänge lassen sich klassifizieren, je nachdem wie das Verhalten der Ableitungen des entsprechenden thermodynamischen Potentials (z.B. die freie Enthalpie  $G(p, T)$ ) ist. Nach einer Klassifikation von Ehrenfest liegt ein Phasenübergang erster Ordnung vor, wenn die erste Ableitung z.B. der Gibbschen freien Enthalpie  $G(p, T) = U + pV - ST$  am Phasenübergang unstetig ist. Mit dem Differential der Gibbschen freien Enthalpie  $dG = -SdT + Vdp - \mu dN$  ergeben sich die folgenden Ableitungen erster Ordnung für die Entropie  $S$  und des Volumens  $V$ :

$$\left(\frac{\partial G}{\partial T}\right)_p = -S, \quad \left(\frac{\partial G}{\partial p}\right)_T = V \quad (1.1)$$

Für einen Phasenübergang zweiter Ordnung, ist die zweite Ableitung der Gibbschen freien Enthalpie unstetig und in der spezifischen Wärme  $C$ , der Kompressibilität  $\kappa$  und dem Koeffizient der thermischen Volumenausdehnung  $\alpha_V$  tritt ein Sprung auf:

$$\left(\frac{\partial^2 G}{\partial T^2}\right)_p = -\frac{C}{T}, \quad \left(\frac{\partial^2 G}{\partial p^2}\right)_T = -V \cdot \kappa, \quad \left(\frac{\partial^2 G}{\partial p \partial T}\right)_T = V \cdot \alpha_V \quad (1.2)$$

### Der thermische Ausdehnungskoeffizient

Die thermische Ausdehnung einer Substanz wird über den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizient  $\alpha(T)$  definiert.  $\alpha(T)$  ist eine thermodynamische Messgröße und beschreibt die auf die Probenlänge  $L$  normierte Längenänderung bezogen auf eine Änderung der Temperatur bei konstantem äußerem Druck  $p$ :

$$\alpha_i(T) = \frac{1}{L_i(T)} \cdot \left(\frac{\partial L_i T}{\partial T}\right)_p, \quad i = a, b, c$$

Die Volumenausdehnung hängt von der Kristallsymmetrie ab und wird, falls die Achsen senkrecht aufeinander stehen, durch einfache Addition der Achsenbeiträge berechnet. Aus den Gleichungen 1.1 und 1.2 erhält man den Zusammenhang unter hydrostatischem Druck  $p$ :

$$\alpha_V(T) = \frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_p = \frac{1}{V} \left(\frac{\partial^2 G}{\partial T \partial p}\right)_T = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial S}{\partial p}\right)_T \quad (1.3)$$

## Die Magnetostriktion

Der lineare Magnetostruktionskoeffizient  $\lambda(B)$  wird durch die Messung der Längenänderung in Abhängigkeit des Magnetfeldes  $B$  bei konstanter Temperatur  $T$  und bei konstantem Druck  $p$  bestimmt. Der Koeffizient  $\lambda_i(B)$  ist analog zu  $\alpha_i(T)$  definiert als die Ableitung der Probenlänge  $L(B)$  nach dem Magnetfeld  $B$ , ebenfalls normiert auf die Länge der Probe  $L(B)$ :

$$\lambda_i(B) = \frac{1}{L_i(B)} \cdot \left( \frac{\partial L_i(B)}{\partial B} \right)_{p,T}, \quad i = a, b, c$$

Thermodynamisch gesehen ist die Volumenmagnetostriktion analog zum thermischen Ausdehnungskoeffizienten aufgebaut. Mit Hilfe der Maxwellrelationen erhält man, dass sie die hydrostatische Druckabhängigkeit der Magnetisierung wiedergibt:

$$\lambda_V(B) = \frac{1}{V} \cdot \left( \frac{\partial V}{\partial B} \right)_{T,p} = \frac{1}{V} \cdot \left( \frac{\partial M}{\partial p} \right)_{T,B}.$$

## Druckabhängigkeit des Phasenübergangs

Die relativen Größen der am Phasenübergang beobachteten Diskontinuitäten  $\Delta V$ ,  $\Delta S$  (Übergang erster Ordnung) bzw.  $\Delta\alpha$ ,  $\Delta C$  (Übergang zweiter Ordnung) sind ein Ausdruck für die Volumenabhängigkeit der Übergangstemperatur und damit der zugrundeliegenden Wechselwirkungsenergien. Es gelten die folgenden Beziehungen für die Phasenübergangstemperatur  $T_c$ :

Phasenübergang erster Ordnung (Clausius-Clapeyron) für hydrostatischen Druck  $p$  [1]:

$$\left( \frac{\partial T_c}{\partial p} \right)_{p \rightarrow 0} = \frac{\Delta V}{\Delta S}$$

Phasenübergang zweiter Ordnung (Ehrenfest) für uniaxialen Druck  $p_i$  entlang der Achse  $i = a, b, c$  [2]:

$$\left( \frac{\partial T_c}{\partial p_i} \right) = V \cdot T_c \cdot \frac{\Delta\alpha_i}{\Delta C}$$

Die hydrostatische Druckabhängigkeit erhält man durch Summation der einzelnen Druckabhängigkeiten:  $\partial T_c / \partial p = \sum_i \partial T_c / \partial p_i$

### 1.1.1 Klassische Phasenübergänge

In der theoretischen Beschreibung von klassischen Phasenübergängen, d.h. Phasenübergänge bei endlichen Temperaturen, wird die Gibbsche freie Energie  $G$  um den kritischen Punkt  $T_c$  nach Potenzen des Ordnungsparameters  $\phi$  entwickelt und minimiert. Die freie Energie ist unabhängig von der Richtung von  $\phi$ , daher treten nur gerade Potenzen auf [3]. Bei Annäherung an  $T_c$  wird die typische Längenskala der fluktuierenden magnetischen



Bereiche, die Korrelationslänge  $\xi$ , größer und divergiert direkt am kritischen Punkt mit einem kritischen Exponenten  $\nu$  [4–6]:

$$\xi \sim t^\nu$$

Die reduzierte Temperatur

$$t = \frac{|T - T_c|}{T_c}$$

$t$  gilt als dimensionloses Maß für den Abstand zum kritischen Punkt. Die Fluktuationen sind räumlich und zeitlich korreliert. Die Korrelationszeit  $\tau$  ist hierbei ein Maß für die typische Zeitskala des Zerfalls der Fluktuationen. Sie divergiert ebenfalls bei Annäherung an den kritischen Punkt [5, 6]:

$$\tau \sim \xi^z \sim t^{\nu z}$$

mit dem dynamisch kritischen Exponenten  $z$  (*critical slowing down*). Direkt am kritischen Punkt gehen somit die Korrelationslänge und -zeit zu unendlich und es existieren auf allen Zeit- und Längenskalen fluktuierende Cluster. Um den kritischen Punkt mittelt das System über große Volumina und macht auf diese Weise mikroskopische Details vernachlässigbar [6]. Daraus folgt, dass die kritischen Exponenten in den unterschiedlichen Messgrößen über universelle Skalengesetze miteinander verknüpft und unabhängig vom speziell betrachteten System sind. Sie hängen nur von ganz allgemeinen "globalen" Eigenschaften ab, die von Griffiths in seiner Universalitätshypothese postuliert wurden [7]: Die räumliche Dimension des System  $d$  und die Symmetrie des Ordnungsparameters. Häufig reicht zur Charakterisierung der Symmetrie des Ordnungsparameters die Angabe der Komponente (Dimension  $D$ ) aus. Das Ising-Modell beschreibt den Hamiltonoperator für  $D = 1$ , wobei nur die  $z$ -Komponente des Spin berücksichtigt wird.  $D = 2$  entspricht dem XY-Modell eines Spins in einer Ebene und  $D = 3$  dem Heisenberg-Modell, in welchem der Spin sich frei ausrichten kann. Mit Hilfe der Renormierungsgruppentheorie ist die Berechnung der kritischen Exponenten näherungsweise möglich [8].

### 1.1.2 Quantenphasenübergänge

Durch die Variation eines externen nicht-thermischen Kontrollparameters  $\delta$ , wie z.B. Druck  $p$ , chemische Substitution  $x$  oder Magnetfeld  $B$ , kann ein Übergang zwischen zwei Grundzuständen induziert werden. Solch ein Übergang wird Quantenphasenübergang oder, im Fall eines Phasenüberganges zweiter Ordnung, quantenkritischer Punkt (QKP) genannt [9–11]. An einem Phasenübergang verschwindet die quantenmechanische charakteristische Energie  $\hbar/\tau$  der Fluktuationen. Daher gibt es bei einem klassischen Phasenübergang bei endlichen Temperaturen  $T_c$  in der Nähe des Übergangs immer einen asymptotischen Bereich, in dem  $k_B T \approx k_B T_c > \hbar/\tau$  ist, und sich das System klassisch verhält, d.h. von thermischen Fluktuationen bestimmt ist. Falls jedoch der Phasenübergang bei  $T = 0$  auftritt, wird bei Annäherung  $T \rightarrow 0$  am Quantenphasenübergang die Ungleichung  $\hbar/\tau > k_B T$  für anwachsende Zeiten erfüllt. Der Phasenübergang wird von Quantenfluktuationen getrieben, die auf der Heisenbergschen Unschärferelation basieren [11–13]. Das System „wächst“ mit der Zeitdimension.

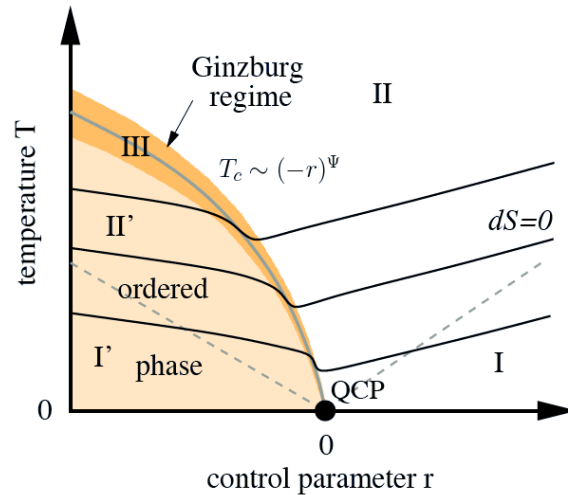


Abbildung 1.1: Schematisches Phasendiagramm [14] mit einer geordneten Phase mit gebrochener Symmetrie, die sich zu hohen Temperaturen erstreckt. Der QKP ist der Endpunkt einer Linie mit klassischen Phasenübergängen 2. Ordnung. Die Minima der Isentropen, welche die Position des Vorzeichenwechsels des Grüneisenparameters  $\Gamma = \alpha/C$  anzeigen, liegen im Ginzburg-Regime der symmetrischen Phase. Die Steigung der Isentrope ist bestimmt durch den QKP, außer wo diese sich an die Phasengrenzlinie schmiegen.  $I/I'$  Tieftemperaturbereich,  $II/II'$  quantenkritisches Regime,  $III$  Ginzburg-Bereich mit Phasengrenzlinie.

Das hat zur Folge, dass das System zusätzlich durch den dynamischen kritischen Exponenten  $z$  der Divergenz der Korrelationszeit bestimmt wird. Im Vergleich zu klassischen Phasenübergängen führt das zu einer effektiven Vergrößerung der Dimension des Systems:

$$d_{eff} = d + z.$$

Der Wert von  $z$  hängt vom vom Ordnungszustand des Systems ab, z.B gilt für einen Antiferromagneten  $z = 2$  und für einen Ferromagneten  $z = 3$ . Der Abstand zum QKP in Abhängigkeit des Kontrollparameters  $\delta$  wird mit  $r = |\delta - \delta_c|$  bezeichnet. Abbildung 1.1 zeigt ein schematisches Phasendiagramm mit einer magnetisch geordneten Phase in der Umgebung eines QKP. Das Phasendiagramm kann in drei Hauptbereiche ( $I/I'$ ,  $II/II'$  und  $III$ ) eingeteilt werden. Für den Tieftemperaturbereich der symmetrischen/geordneten Phase  $I/I'$  gilt  $T \ll |r^{\nu z}|$ , und das System verhält sich wie eine Fermi-Flüssigkeit. Die Korrelationslänge der Fluktuationen  $\xi$  wird durch den Abstand  $r$  zum QKP bestimmt  $\xi^{-z} \propto r$  [14]. Im Bereich  $II/II'$  für  $T \gg |r^{\nu z}|$  wird die zeitliche Ausdehnung der quantenkritischen Fluktuationen durch die thermischen Fluktuationen begrenzt (finite size effect). Dieser Beitrag der thermischen Fluktuationen beeinflusst das Verhalten stärker als der Abstand zum kritischen Punkt  $r$  [15, 16]. Diese Region geht durch eine "Cros-

sover" - Linie mit  $k_B T \sim \hbar \omega \sim |r|^{\nu z}$  kontinuierlich in den Bereich  $I/I'$  über [11, 16]. Die Phasengrenzlinie  $T_c \sim -r^\psi$  der klassischen Phasenübergänge befindet sich im sogenannten Ginzburg-Regime (Bereich III), dessen Breite der thermischen Energie  $k_B T$  entspricht und dessen Eigenschaften durch die klassischen thermischen Fluktuationen bestimmt sind.

### 1.1.3 Entropie am Quantenphasenübergang

Eine in letzter Zeit verstärkt beachtete Messgröße ist die thermische Ausdehnung  $\alpha(T)$ . Das Verhältnis von  $\alpha(T)$  zur spezifischen Wärme, der Grüneisenparameter, zeigt eine Divergenz am QKP im Gegensatz zu klassischen Phasenübergängen [17]. Diese Divergenz konnte in letzter Zeit sehr erfolgreich in verschiedenen Schwer-Fermion-Systemen beobachtet werden, z.B.  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  und  $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  [18–20].

#### Kontrollparameter Druck

Bei einer klassischen Beschreibung kritischen Verhaltens mittels der Skalentheorie [5] gibt es einen "relevanten Operator", an welchen Temperatur  $T$  und Druck  $p$  in gleichem Maß ankoppeln [17]. Die thermische Ausdehnung  $\alpha_V$  (siehe Gleichung 1.3) und die spezifische Wärme

$$C_p(T) = -\frac{T}{N_A} \left( \frac{\partial^2 G}{\partial T^2} \right)_p = -\frac{T}{N_A} \left( \frac{\partial S}{\partial T} \right)_p$$

mit der Avogadro-Konstanten  $N_A$  divergieren an einem klassischen Phasenübergang zweiter Ordnung mit genau dem gleichen kritischen Exponenten  $\alpha'$ :  $\alpha_V \sim C_p \sim |T - T_c|^{-\alpha'}$  [3]. Betrachtet man eine Linie konstanter Entropie in der Druck-Temperatur-Ebene

$$dS = \left. \frac{\partial S}{\partial T} \right|_p dT + \left. \frac{\partial S}{\partial p} \right|_T dp \stackrel{!}{=} 0$$

ist die Steigung einer solchen Isentrope proportional zum Grüneisenverhältnis [21]

$$\frac{\partial S / \partial p}{\partial S / \partial T} \approx \frac{\alpha}{C} \equiv \Gamma,$$

dass bis auf (materialabhängige) Konstanten mit dem Grüneisenparameter  $\Gamma_{eff} = V_m / \kappa_T \cdot \alpha / C$  identisch ist. Wird das System nur von einer einzigen charakteristischen Energie  $E^*$  dominiert, kann die Entropie als eine Funktion dieser Energie geschrieben werden:

$$S = f \left( \frac{T}{E^*} \right).$$

Die Skalierungsform der Entropie ergibt für den Grüneisenparameter  $\Gamma$  die Volumen- bzw. Druckabhängigkeit der charakteristischen Energie  $E^*$ . Für die Herleitung des druckabhängigen Grüneisenparameter gilt  $\Gamma_p = \alpha_V / C_p = (1/V)(\partial \ln E^* / \partial p)$ . Analog lässt sich

## 1 Grundlagen

die Volumenabhängigkeit herleiten [22]:

$$\begin{aligned}\Gamma_{eff} &= \frac{V_m \alpha_V}{\kappa_T C_p} = -\frac{N_A \cdot V_m}{VT \kappa_T} \frac{(\partial S/\partial p)_T}{(\partial S/\partial T)_p} = V \frac{\partial p}{\partial V} \frac{1}{T} \frac{\partial T}{\partial p} \Big|_S \\ &= \frac{1}{E^*} \frac{\partial E^*}{\partial \ln V}\end{aligned}\tag{1.4}$$

mit der isothermen Kompressibilität  $\kappa_T = -1/V(\partial V/\partial p)$ . Nähert man sich dem QKP, divergiert der Grüneisenparameter, da die charakteristische Energie gegen Null strebt. Für den kritischen Anteil gilt im quantenkritischen Regime II/II' ( $T \gg |r|^{\nu z}$ ) und für endliche Temperaturen im Regime I/I' ( $T \ll |r|^{\nu z}$ )

$$\Gamma_{cr} \sim T^{-1/\nu z} \quad (\text{II/II}') \tag{1.5}$$

$$\Gamma_{cr} = -G_r (V_m \cdot r)^{-1} \quad (\text{I/I}') \tag{1.6}$$

wobei der Vorfaktor  $G_r$  eine Kombination aus kritischen Exponenten ist:  $G_r = -\nu \cdot (y_0^\pm - d)/y_0^\pm$ . Hierbei ist  $y_0^\pm$  mit dem Verhalten der spezifischen Wärme links bzw. rechts des QKP assoziiert:  $C_p^\pm \sim T^{y_0^\pm}$ . Gleichung 1.6 impliziert einen Vorzeichenwechsel in  $\Gamma$  [14], welcher im Minimum der Isentrope aufgrund der thermischen Ausdehnung auftritt, da die spezifische Wärme stets positive Werte aufweist.

Das Verhalten der Entropie als Funktion eines nicht thermischen Kontrollparameters  $\delta$ , z.B. Druck  $p$  oder Magnetfeld  $B$ , bei  $T = const. > 0$  über einen QKP folgt dem Schema in Abbildung 1.2. Direkt am QKP erreicht  $S(\delta)$  ein Maximum. Das System hat die Möglichkeit, sich zwischen zwei Grundzuständen zu entscheiden und es steht eine erhöhte Anzahl an Freiheitsgraden zur Verfügung. Links und rechts des QKP weist die Steigung  $\partial S/\partial \delta$  jeweils ein anderes Vorzeichen auf. Folglich findet in der thermischen Ausdehnung  $\alpha/T \approx \partial S/\partial p$  ein Vorzeichenwechsel statt, siehe rechte Seite in Abbildung 1.2. Für tiefe Temperaturen ist eine Divergenz in  $\alpha_V/T(\delta)$  zu beobachten, da die Kurve  $S(\delta)$  immer schärfer wird. Mit höherer Temperatur oder Unordnung im Kristall verschmiert diese Divergenz aufgrund der Verbreiterung des Maximums in der Entropie. Abbildung 1.3 zeigt den Verlauf des kritischen Beitrags von  $\alpha/T$  über der Temperatur für einen konstanten Druck, speziell für einen QKP oberhalb seiner oberen kritischen Dimension, d.h.  $d + z > 4$ . Von hohen Temperaturen kommend, folgt  $\alpha_V/T$  im unmagnetischen Bereich (II) der Divergenz des nahen QKP. Bei  $T_c$  (Bereich III) erfolgt der Phasenübergang und ein Vorzeichenwechsel findet statt. Zu  $T \rightarrow 0$  im Bereich II' divergiert die Kurve spiegelsymmetrisch zum Verhalten für  $p > p_c$ :  $|\Gamma(T, p > p_c)| = |\Gamma(T, p < p_c)|$ . Ein kontinuierlicher Übergang ins FL-Verhalten erfolgt bei tiefen Temperaturen (I'), danach strebt  $\alpha_V/T$  gegen einen konstanten Wert, bzw. Null im Falle eines Isolators.

### Kontrollparameter Magnetfeld

Diese Überlegungen sind ebenso gültig für einen magnetfeldabhängigen QKP mit  $\delta = B$  für den magnetischen Grüneisenparameter  $\Gamma_B = (\partial M/\partial T)_B/C_B$  mit der spezifischen

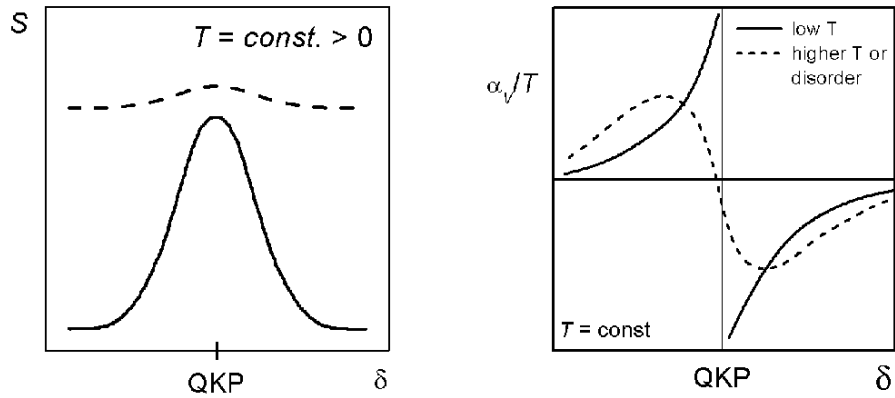


Abbildung 1.2: *Links:* Schematische Abbildung der Entropie als Funktion eines nicht-thermischen Kontrollparameters  $\delta$  z.B. Druck  $p$  oder Magnetfeld  $B$  bei  $T = \text{const.} > 0$ .

*Rechts:* Schematisches Verhalten von  $\alpha_V/T(\delta) \approx \partial S/\partial \delta$  über den QKP. Für tiefe Temperaturen divergiert  $\alpha_V/T$  am QKP, für höhere Temperaturen oder Unordnung in der Probe verschmiert die Kurve.

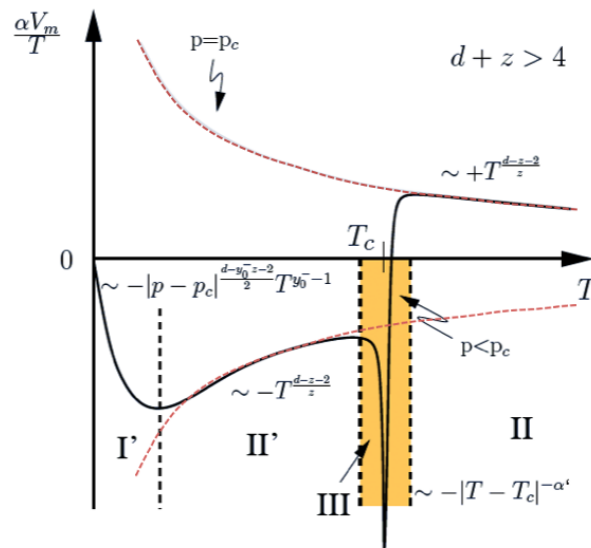


Abbildung 1.3: Schema des thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha V_m/T$  in verschiedenen Bereichen des Phasendiagramms aus Abbildung 1.1 für einen QKP mit  $d + z > 4$ . Nahe der kritischen Temperatur  $T_c$  bzw. bei  $p_c$  wechselt  $\alpha/T$  das Vorzeichen. Zu  $T \rightarrow 0$  im Bereich  $II'$  divergiert die Kurve spiegelsymmetrisch zum Verhalten für  $p > p_c$ :  $|\Gamma(T, p > p_c)| = |\Gamma(T, p < p_c)|$ . Für eine genauere Beschreibung siehe Ref. [14].

Wärme bei konstantem Magnetfeld  $C_B$ . Die Feldabhängigkeit der Entropie  $\partial S/\partial B$  beschreibt den magnetokalorischen Effekt, welcher über Maxwellrelationen mit der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung  $(\partial M/\partial T)_B$  in Verbindung gesetzt werden kann.

## 1.2 Schwer-Fermion-Systeme

Diese Systeme bezeichnen dabei eine Klasse von unter anderem Ce-, Yb- ( $4f$ ) und Uran- ( $5f$ ) Verbindungen, die eine extrem hohe Zustandsdichte nahe der Fermi-Energie  $E_F$  vorweisen. Wir konzentrieren uns in dieser Arbeit auf Ce-basierte Systeme mit  $4f$ -Orbitalen. Eine der wichtigsten Eigenschaften von  $4f$ -Systemen ist die relativ kleine räumliche Ausbreitung der  $4f$ -Wellenfunktion ( $r_{4f} \approx 0.5\text{\AA}$ ), die viel kleiner ist als der typische Bindungsabstand zu den benachbarten Ionen im Kristallverband. Daher hat die  $4f$ -Wellenfunktion in Metallen nahezu keinen Überlapp mit dem Leitungsband. Die schwache Hybridisierung kann deshalb mit den nicht abgeschlossenen  $4f$ -Orbitalen zu einer hohen Zustandsdichte an der Fermi-Energie  $E_F$  führen.

### Fermi-Flüssigkeit

Im Jahr 1956 stellte Landau ein phänomenologisches Konzept für die makroskopischen Eigenschaften eines Systems wechselwirkender Fermionen bei tiefen Temperaturen vor: "Die Theorie der Fermi-Flüssigkeit" [23]. Ursprünglich für flüssiges  $^3\text{He}$  entwickelt, ist der Ausgangspunkt der Theorie die Annahme einer eins-zu-eins-Korrespondenz zwischen den Anregungen eines nicht wechselwirkenden Fermi-Gases und denen einer wechselwirkenden Fermi-Flüssigkeit. Die Wechselwirkung zwischen den Fermionen führt zu einer Veränderung der Teilchen, die im Zuge dessen eine renormierte, erhöhte effektive Masse  $m^*$  aufweisen. Die effektive Masse ist direkt auf die starken Korrelationen zwischen den Quasiteilchen zurückzuführen, welche zu einer erhöhten Zustandsdichte unterhalb der Fermi-Energie führt [24].

Zu den stark korrelierten Elektronensystemen gehören die Schwer-Fermion-Systeme (SFS), in denen die effektive Masse bis zu 100mal größer als die freie Elektronenmasse sein kann. Die erhöhte effektive Masse  $m^*$  der Quasiteilchen manifestiert sich in den thermodynamischen und den Transporteigenschaften. Die spezifische Wärme zeigt eine lineare Tieftemperaturabhängigkeit  $C = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 N(E_F) \cdot T = \frac{1}{3} \left(\frac{k_B}{\hbar}\right)^2 m^* \cdot T$  mit einem durch  $m^*$  stark erhöhten Sommerfeld-Koeffizienten von bis zu  $\gamma^* = 1.5 \text{ J/mol K}^2$  ( $\text{CeCu}_6$ ). Ebenso zeigen die SFS eine erhöhte Pauli-Suszeptibilität, die ebenfalls durch die effektive Masse eine renormierte Form  $\chi_p = \frac{m^*}{m} \frac{1}{1+F_0^a} \chi_0$  mit dem Landauparameter  $F_0^a$  einnimmt. Die Größen  $\chi$  und  $C$  werden über das Wilson-Verhältnis

$$R_W = \left( \frac{\chi_p}{\gamma} \right) \left( \frac{\pi^2 k_B^2}{\mu_0 \mu_{eff}^2} \right)$$

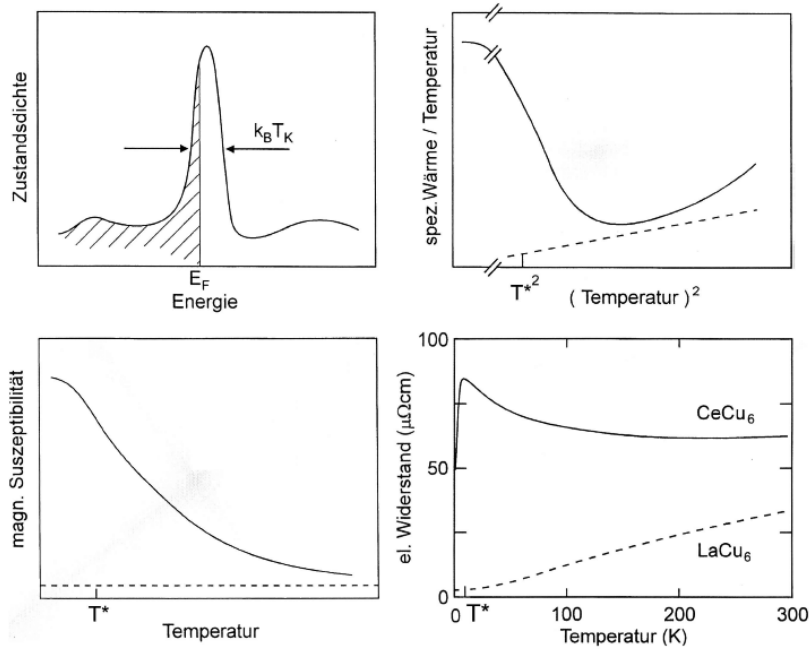


Abbildung 1.4: Vergleich des Verhaltens von Schwer-Fermion-Systemen (durchgezogene Linie) zu dem einfacher Metalle (gestrichelte Linie) [25].

zueinander in Relation gesetzt und geben damit, da die Größenordnung von  $R_W$  sowohl für freie Elektronen also auch für Schwer-Fermionen bei  $R_W \approx 1$  liegt, einen gute Indikator für das Vorliegen eine Fermi-Flüssigkeit [26]. Für tiefe Temperaturen ist in SFS die Quasiteilchenstreuung nicht mehr vernachlässigbar und der Widerstand zeigt das Verhalten  $\rho - \rho_0 \sim AT^2$ . Dieses quadratische Verhalten ist ebenfalls ein wichtiges Kriterium für das Vorliegen einer Fermi-Flüssigkeit, wie das Verhalten der Proportionalität von Kadowaki-Woods des Streuquerschnitts zum Quadrat der Sommerfeldkonstante [27]  $A \sim \gamma^2$  zum Ausdruck bringt.

## Der Kondo-Effekt

Anomales Verhalten im Widerstand von Metallen mit magnetischen Verunreinigungen wurde schon früh beobachtet [28]. Anstatt für tiefe Temperaturen sich dem konstanten Restwiderstand  $\rho_0$  weiter anzunähern, stieg der Widerstand für fallende Temperaturen wieder an. Kondo konnte zeigen, dass es sich dabei um einen Beitrag zweiter Ordnung im Streuprozess der Leitungselektronen an magnetischen Störstellen handelt [29]. Diesem Prozess liegt die Austauschwechselwirkung  $J$  zwischen Leitungselektronen und lokalen  $4f$ -Elektronen zugrunde, die zu einem Spin-Hamiltonoperator  $H_K = -J\vec{S}\cdot\vec{s}$  führt. Durch diese Wechselwirkung ergibt sich eine antiparallele Einstellung des Leitungselektronenspins relativ zum magnetischen Moment, die dazu führt, dass das magnetische Moment

## 1 Grundlagen

der Störstelle nach außen hin abgeschirmt wird. Entsprechend dem Energiegewinn

$$E_K \sim E_F \exp\left(-\frac{1}{J \cdot N(E_F)}\right)$$

erzeugt der Kondo-Effekt in der Nähe der Fermikante eine Resonanz und führt bei  $T < T_K = E_K/k_B$  zu einer stark überhöhten Zustandsdichte (Abbildung 1.4). Hierbei bezeichnet  $N(E_F)$  die nicht renormierte Zustandsdichte.

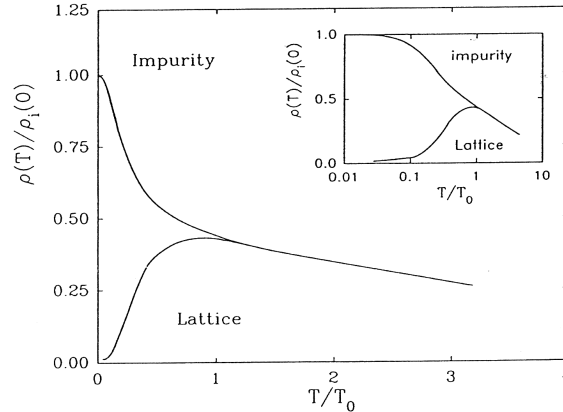


Abbildung 1.5: Temperaturabhängigkeit des Widerstands einer einzelnen Verunreinigung und eines Kondo-Gitters [30].

### Das Kondo-Gitter

Befinden sich in einem System die magnetischen  $4f$ -Störstellen in regelmäßigen Abständen, so ist es möglich, dass sich die Wellenfunktionen der abschirmenden Leitungselektronen kohärent überlappen. Dies führt zu einer Energieabsenkung des Systems, da sich, analog zum Bändermodell für freie Elektronen, Bloch-ähnliche Zustände für die Quasiteilchen ausbilden. Dies hat zur Folge, dass der Widerstand ab der so genannten Kohärenztemperatur  $T_{koh}$  absinkt. Abbildung 1.5 zeigt den Widerstand schematisch an einer einzelnen Störstelle im Vergleich mit der Ausbildung eines Kondo-Gitters.

### Doniachs Phasendiagramm

Über die Leitungselektronen ist eine langreichweitige Wechselwirkung zwischen den Störstellen möglich. Rudermann, Kittel, Kasuya und Yosida sagten eine räumlich oszillierende Spinpolarisierung der Elektronen um eine magnetische Störstelle vorher [31–33]. Je nach Abstand der beiden Störstellen voneinander kann eine parallele oder antiparallele Ausrichtung der Störstellenmomente energetisch günstiger werden. Die Energie dieser Wechselwirkung wird für hinreichend große Abstände  $r$  wiedergegeben durch:

$$E_{RKKY} \sim J^2 N(E_F) \frac{\cos(2k_F r)}{r^3}$$



In Anbetracht der beiden Energieskalen  $E_K$  und  $E_{RKKY}$  schlug Doniach [34] vor, dass der Grundzustand des Systems bei tiefen Temperaturen eine direkte Konsequenz der Konkurrenz zwischen reinem Kondo-Effekt und der RKKY-Wechselwirkung ist. Betrachtet wird der Energiegewinn eines Systems aufgrund der Ausbildung eines magnetischen Grundzustandes durch die RKKY-Wechselwirkung  $E_{RKKY}$  und der Energiegewinn durch Bildung eines Singulettzustandes  $E_K$ , siehe Abbildung 1.6.

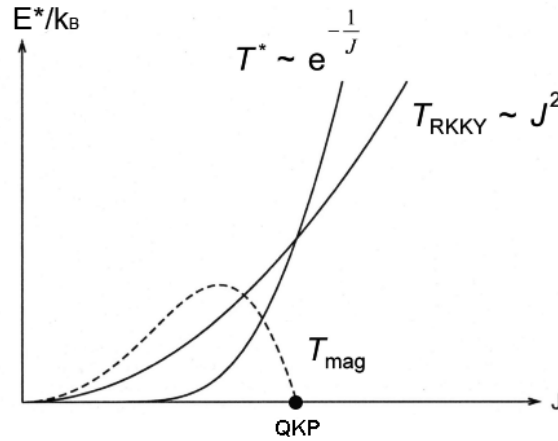


Abbildung 1.6: Abhängigkeit der Kondo-Energie  $k_B T_K$  und der RKKY-Wechselwirkung  $k_B T_{RKKY}$  von der Austauschwechselwirkung  $J$ . Wenn die beiden konkurrierenden Energieskalen gleich sind, befindet sich das System an einer magnetischen Instabilität, dem quantenkritischen Punkt (QKP) [30].

Für  $k_B T_{RKKY} < k_B T_K$  wird ein magnetisch ordnendes System gefunden. Im anderen Fall bildet sich unterhalb von  $T_K$  der unmagnetische Kondo-Singulett-Zustand aus. An der kritischen Kopplungsstärke  $J_c$  ist der Energiegewinn beider Grundzustände gleich groß und damit die Ordnungstemperatur gleich Null. Damit eignen sich SFS besonders gut zur Realisierung von Quantenphasenübergängen.

Um den quantenkritischen Punkt in Abhängigkeit von  $J$  zu untersuchen, kann  $J$  experimentell verändert werden. Der Abstand der Seltenerd-Ionen, welcher die Stärke des Überlapps bestimmt, kann durch das Anlegen von äußerem Druck, Dotieren von isoelektronischen Atomen unterschiedlicher Größe sowie durch die Dotierung von nichtisoelektronischen Atomen und damit der Variation von  $N(E_F)$  verändert werden.

## Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten

Im Allgemeinen beschreibt die Theorie der Fermi-Flüssigkeit (siehe Abschnitt 1.2) sehr erfolgreich das Verhalten von Metallen mit elektronischen Korrelationen. Jedoch zeigen verschiedene Experimente an Systemen in der Nähe einer magnetischen Instabilität, dass

das Verhalten bei tiefen Temperaturen nicht mit einer Fermi-Flüssigkeit vereinbar ist. Diese Systeme werden als Nicht-Fermi-Flüssigkeiten (NFL) bezeichnet. Ihre wichtigsten makroskopischen Eigenschaften sind mit abnehmender Temperatur eine starke Temperaturabhängigkeit des spezifischen Wärmekoeffizienten  $C/T$ , der Pauli-Suszeptibilität  $\chi_p$ , und ein spezifischer Widerstand  $\rho - \rho_0 \sim T^y$  mit  $y < 2$  für  $T \rightarrow 0$ . Es gibt verschiedene mikroskopische Ursachen für NFL-Verhalten [35]. Wir wollen uns hier auf NFL nahe eines quantenkritischen Punktes konzentrieren. Im folgenden Abschnitt werden die beiden wichtigsten Theorien für Systeme an einer magnetischer Instabilität, das itinerante und das lokale Szenario, kurz beschrieben.

### Itinerantes Szenario

In der Theorie von Hertz, Millis, Moryia und Rosch [36–39] entsteht NFL-Verhalten durch die Streuung von itineranten Elektronen an magnetischen Fluktuationen. Dies sagt voraus, dass die itineranten Elektronen - in SFS die „schweren“ Elektronen - am Quantenphasenübergang intakt bleiben, d.h. die Energie  $E^* \approx E_K$  des Kondo-Gitters, die der Fermi-Energie der Quasiteilchen entspricht, bleibt endlich am QKP. Es entstehen itinerante Spin-Dichte-Fluktuationen, aus welchen über eine Spin-Dichte-Welle (SDW) eine antiferromagnetische Phase entsteht, siehe Abbildung 1.7. Der entstehende Magnetismus am Quantenphasenübergang entwickelt sich aus Spinfluktuationen, welche sich beim Übergang des QKP zum magnetischen Gebiet hin verstärken, bis die Ordnung stabil geworden ist. Da die Quasiteilchen am Phasenübergang erhalten bleiben, ändert sich die Fermi-Fläche kontinuierlich über den QKP.

Die Änderung der Fermi-Fläche am Phasenübergang kann mit dem Halleffekt untersucht werden,  $R_H$  ändert sich stetig am kritischen Punkt. Die für diese Theorie berechneten kritischen Anteile der spezifischen Wärme, der thermischen Ausdehnung und des Grüneisenparameters vom Kontrollparameter sind in Tabelle 1.1 [17] für einen AFM QKP ( $z = 2$ ) für  $d = 2$  und 3 aufgeführt. In Tabelle 1.2 sind die berechneten Beiträge in Abhängigkeit von der Temperatur aufgelistet, zusätzlich dazu ist die Suszeptibilität  $\chi$  und der spezifischen Widerstands  $\rho$  angegeben.

	Messgrößen		
Dimension	$\alpha$	$C$	$\Gamma_r$
$d = 2$	$Tr^{-1}$	$T \log \frac{1}{r}$	$(r \log \frac{1}{r})^{-1}$
$d = 3$	$Tr^{-1/2}$	$-Tr^{1/2}$	$(2r)^{-1}$

Tabelle 1.1: Itinerantes Szenario: Kritische Anteile der spezifischen Wärme, der thermischen Ausdehnung und des Grüneisenparameters in Abhängigkeit des Abstandes  $r = \delta - \delta_c$  zum QKP, abgeleitet aus dem Hertz-Modell, für  $T \rightarrow 0$ , bei Annäherung an den QKP im FL-Regime für  $z = 2$  [17].

	Messgrößen				
Dimension	$\alpha$	$C$	$\Gamma_r$	$\chi$	$\rho$
$d = 2$	$\log \log \frac{1}{T}$	$T \log \frac{1}{T}$	$\frac{\log \log \frac{1}{T}}{T \log \frac{1}{T}}$	$\chi_0 - dT$	$\rho_0 + bT$
$d = 3$	$T^{1/2}$	$-T^{3/2}$	$-T^{-1}$	$T^{3/2}$	$\rho_0 + bT^{3/2}$

Tabelle 1.2: Kritische Anteile der spezifischen Wärme, der thermischen Ausdehnung, des Grüneisenparameters, der Suszeptibilität und des spezifischen Widerstands in Abhängigkeit der Temperatur im quantenkritischen Regime  $r = \delta - \delta_c \ll T^{2/z}$  für  $z = 2$  [17].

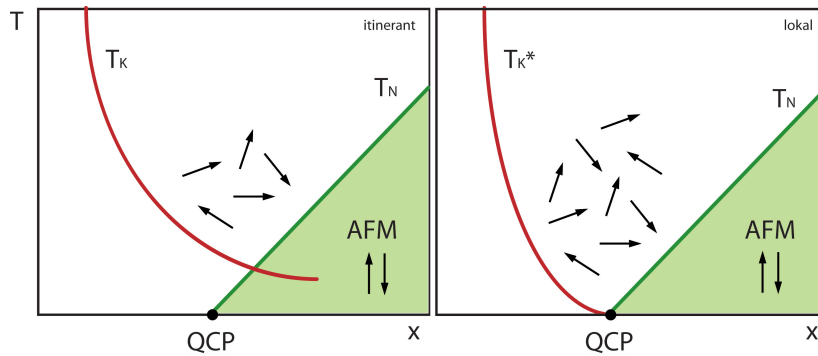


Abbildung 1.7: *Links*: Itinerantes Szenario: Die Energie des Kondo-Zustandes ist endlich am QKP und bedingt eine Spindichtewelle, die den Magnetismus treibt. *Rechts*: Lokales Szenario: Die charakteristische Energie verschwindet am QKP und die Quasiteilchen zerfallen.

### Lokales Szenario

Das lokale Szenario nach Si, Coleman, Pépin, Ramazashvili [40–47] hat sich aus dem itineranten Szenario für Schwer-Fermion-Systeme weiterentwickelt. Es wird angenommen, dass die charakteristische Energie  $E^*$  direkt am quantenkritischen Punkt gegen Null strebt. Dies bedeutet, dass die Abschirmung des  $4f$ -Moments des Ce-Atoms durch die Leitungselektronen am QKP nicht mehr vollständig ist. Die Kondo-Resonanz kann sich am QKP nicht vollständig ausbilden und es findet ein kompletter Zusammenbruch des Fermi-Flüssigkeitsbildes statt. Am quantenkritischen Punkt zerfallen die Quasiteilchen, die  $4f$ -Elektronen lokalisieren instantan und die Fermifläche schrumpft sprunghaft zusammen. Dieses Bild wurde motiviert durch Neutronenstreuexperimente, siehe weiter unten im Text.

Experimentell sollte dies sichtbar sein in der Diskontinuität der Hallkonstanten  $R_H$ , wie dies z.B. in  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  beobachtet wurde [48]. Die sprunghafte Veränderung der Fermifläche kann auch zu einer plötzlichen Änderung im Kristallvolumen führen [49].

Für  $T \rightarrow 0$  kann die spezifische Wärme stärker divergieren mit  $T^{-1/3}$ , als im itineranten Bild vorhergesagt, wie z.B. für  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  beobachtet [43, 49, 50]. Für die gesamte Brillouinzone sollte in der dynamischen Suszeptibilität  $E/T$ -Skalenverhalten zu beobachten sein, sichtbar in einem anomalen Exponenten der statischen Suszeptibilität  $[\chi'(T)^{-1} - \chi'(0)^{-1}]^{-1} = c(aT)^{-\alpha}$ . Ein solches Verhalten mit einem Exponenten von  $\alpha = 0.74$  wurde mit Hilfe der Neutronenstreuung in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  beobachtet [44].

### 1.3 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ : Bisherige Messungen

$\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  ist eines der best untersuchtesten Schwer-Fermion-Systeme, das gerade in den letzten Jahren durch die Beobachtung des Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten um den quantenkritischen Punkt an der kritischen Konzentration  $x_c = 0.1$  großes Interesse fand [35, 51–53]. Dieses Kapitel soll einen Überblick über die bisherigen Messungen und Interpretationen geben.

#### $\text{CeCu}_6$

Die Substanz  $\text{CeCu}_6$  bildet Kristalle in einer orthorhombischen  $Pnma$ -Struktur und weist einen strukturellen Phasenübergang zweiter Ordnung bei  $T_m \approx 220$  K in eine monokline Phase der Raumgruppe  $P2_1/c$  [54, 55] auf. Die Verzerrung ist mit  $1.5^\circ$  jedoch sehr gering. Um Missverständnisse zu vermeiden, wird die Benennung der Gitterparameter für alle Proben und Temperaturen nach der orthorhombischen Schreibweise beibehalten. Betrachtet man eine Formeleinheit, sind die 6 Kupferatome auf fünf inäquivalenten Plätze verteilt, siehe Abbildung 1.8.

Der nahezu temperaturunabhängige spezifische Wärmekoeffizient ( $\gamma = 1.67 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-2}$ ) [56–58], die hohe Pauli-Suszeptibilität [59], die quadratische Temperaturabhängigkeit des Widerstands [56], und das daraus resultierende Wilson-Verhältnis von  $R_W \approx 2$  zeigen deutlich, dass  $\text{CeCu}_6$  sich wie eine Fermi-Flüssigkeit mit stark korrelierten Elektronen verhält.  $\text{CeCu}_6$  zeigt eine starke magnetische Anisotropie mit der  $c$ -Achse als leichte Richtung. Messungen der spezifischen Wärme, der AC-Suszeptibilität und der nuklearen Quadrupolresonanz (NQR) [60–63] unterhalb von 5 mK weisen auf eine mögliche antiferromagnetische Ordnung in  $\text{CeCu}_6$  hin. Im unmagnetischen Grundzustand bei  $T = 0.5$  K, können in der Neutronenstreuung [64–67] dynamische Spinfluktuationen beobachtet werden, die eine Korrelationslänge in der Größenordnung des Abstandes der Ce-Atome haben. Die Spinkorrelationen sind Vorboten des Übergangs zum magnetischen Grundzustand des Systems, und zeigen, dass sich  $\text{CeCu}_6$  in der Nähe eines QKP ist.

#### $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$

##### Kontrollparameter Konzentration $x$ und Druck $p$

Ein Einbringen von Goldatomen in das  $\text{CeCu}_6$ -Gitter bewirkt durch das isoelektronische größere Au eine Gitterausdehnung und dadurch einen größeren Abstand der Ce-Atome.

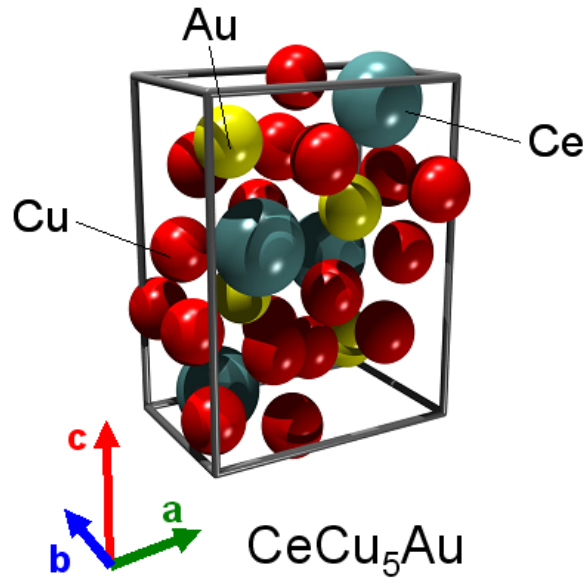


Abbildung 1.8: Elementarzelle von  $CeCu_5Au$  [68].

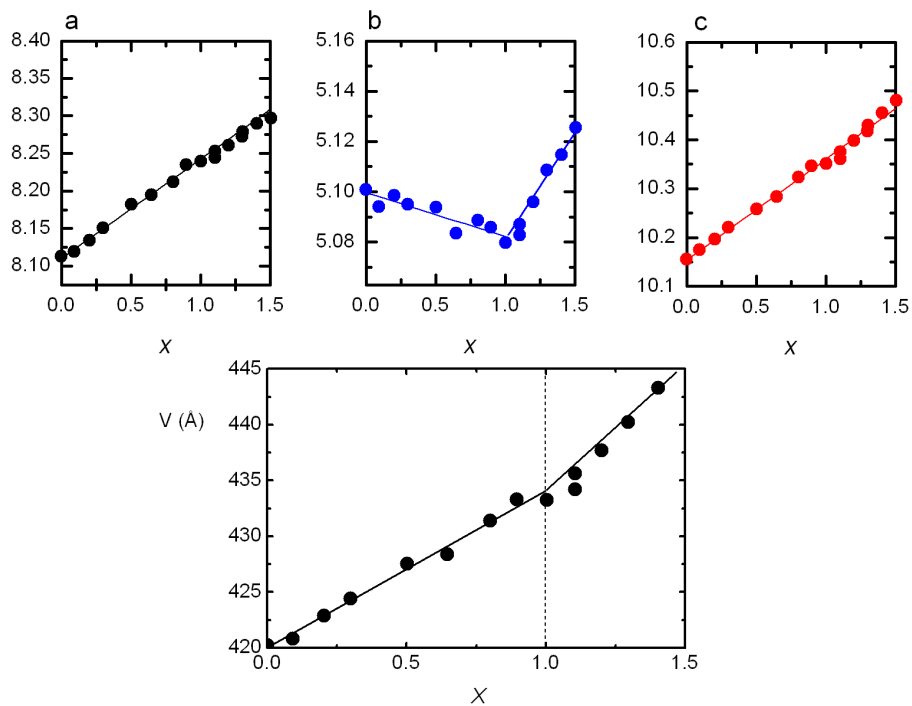


Abbildung 1.9: Die Kristallachsen von  $CeCu_{6-x}Au_x$  in orthorhombischer Notation und das Volumen der Elementarzelle über  $x$ . Unterhalb von  $x = 1$  besetzen die Ce-Atome ausschließlich die Cu(2) - Plätze, oberhalb werden die restlichen Plätze, aber bevorzugt die Cu(4) -Plätze besetzt [69].

Die  $a$ - und  $c$ -Achsen der orthorhombischen Struktur expandieren, während die  $b$ -Achse zuerst sinkt und dann für  $x > 1$  ansteigt [69] (Abbildung 1.9). Bis zu einer Konzentration von  $x = 1$  werden ausschließlich Cu(2)-Plätze besetzt. Sind diese bei  $x = 1$  voll besetzt, werden als nächstes die restlichen Kupferplätze mit einer bevorzugten Besetzung des Cu(4)-Platzes belegt [68, 70].

Im Gegensatz zum Dotieren mit Gold werden unter Druck alle Gitterparameter kleiner. Messungen des Kompressionsmoduls  $B_T$  ergaben nur eine schwache Konzentrationsabhängigkeit bei  $T = 10$  K von 90 GPa bei  $x = 0$  bis 110 GPa bei  $x = 1$  [71], siehe Abbildung 1.10. Die linearen Kompressibilitäten  $\kappa_i$  zeigen anisotropes Verhalten für die Kristallachsen. Die härteste Achse ist die  $a$ -Achse, während CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> entlang der  $b$ -Achse am weichsten ist.

$$B_T = -V \left. \frac{\partial p}{\partial V} \right|_T \quad \text{und} \quad \kappa_i = -\frac{1}{L} \left. \frac{\partial L}{\partial p} \right|_T \quad \text{mit } i = a, b, c$$

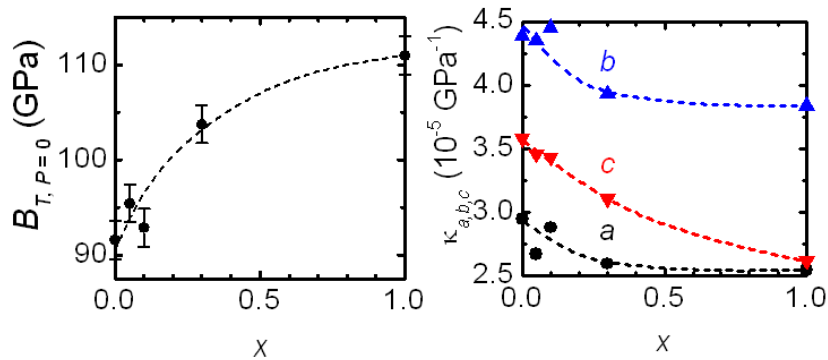


Abbildung 1.10: Kompressionsmodul  $B_T$  und lineare Kompressibilitäten  $\kappa_i$  mit  $i = a, b$  und  $c$  von CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> aufgetragen über der Konzentration  $x$ , gemessen bei  $T = 10$  K [71].

### Struktureller Phasenübergang

Der aus CeCu<sub>6</sub> bekannte strukturelle Phasenübergang  $T_m$  fällt durch das Zulegieren von Gold rapide zu tieferen Temperaturen und wird ab einer Konzentration von  $x \approx 0.14$  völlig unterdrückt [72], wie Abbildung 1.11 verdeutlicht. Dies wird durch Daten der elastischen Neutronenstreuung bestätigt. Der Ordnungsparameter der monoklinen Verzerrung  $(a \cos \beta)^2$  mit dem Verzerrungswinkel  $\beta$ , und damit  $T_m$  verschwinden bei  $x \approx 0.133$  [73]. Dabei fällt der Winkel  $\beta$  zu tiefen Temperaturen von  $\beta = 1.5^\circ$  bei  $x = 0$  über  $\beta = 0.35^\circ$  bei  $x = 0.1$  auf Null bei  $x \approx 0.133$ .

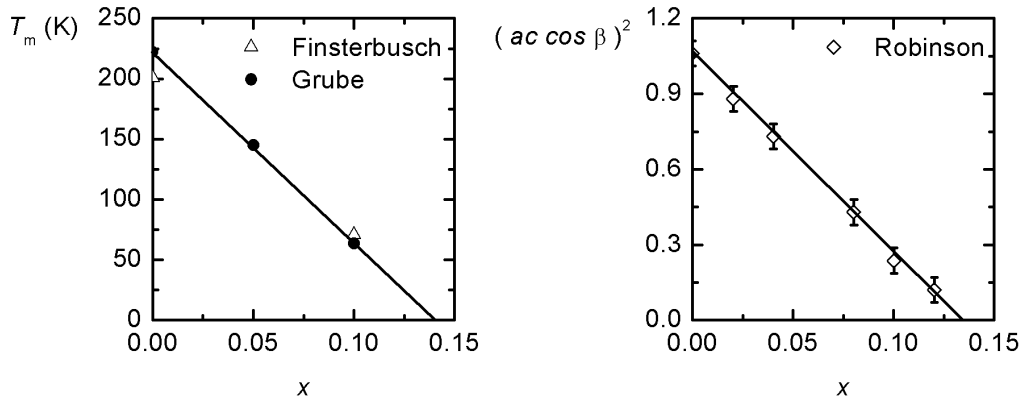


Abbildung 1.11: Phasendiagramm des strukturellen Übergangs. Links:  $T_m$  über  $x$  [72]. Rechts: Ordnungsparameter der monoklinen Verzerrung  $ac \cos \beta$  mit dem Verzerrungswinkel  $\beta$  über  $x$  [73].

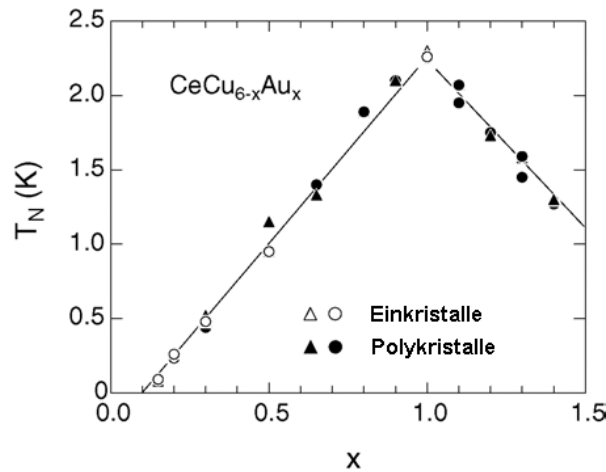


Abbildung 1.12: Das Phasendiagramm für  $CeCu_{6-x}Au_x$  [69].

### Antiferromagnetische Ordnung

Ab einer kritischen Goldkonzentration von  $x_c = 0.1$  bildet sich ein antiferromagnetischer Grundzustand aus [58, 69, 74]. Die Neél-Temperatur  $T_N$  steigt dabei mit wachsendem Goldgehalt linear bis  $T_N = 2.3$  K für  $x = 1$  an. Ab dieser stöchiometrischen Konzentration fällt sie wieder, siehe dazu Abbildung 1.12. Das Maximum in  $T_N$  scheint in Zusammenhang mit der Besetzung der verschiedenen Kupferplätze zu stehen.

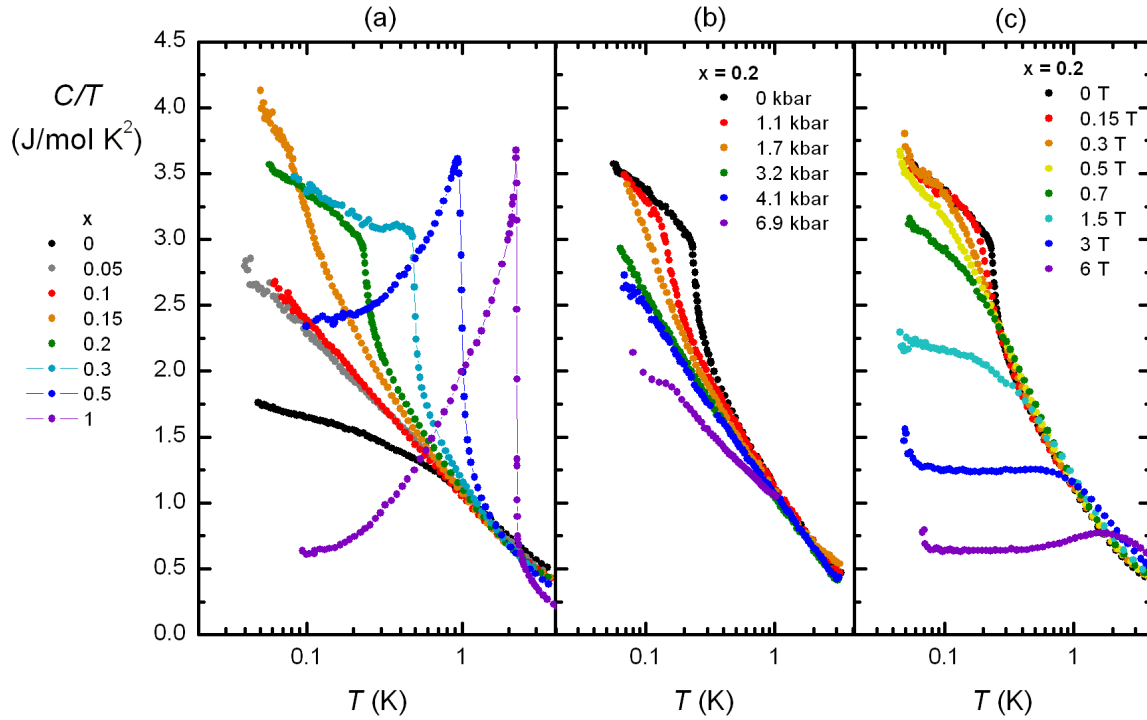


Abbildung 1.13: Spezifische Wärme  $C/T$  für  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  in halblogarithmischer Auftragung über  $T$  (a) für verschiedene Konzentrationen  $x$ : Für große  $x$  ist der antiferromagnetische Übergang deutlich als Peak erkennbar. Für  $x = 0.1$  ist NFL-Verhalten mit einer logarithmischen Abhängigkeit beobachtbar. (b) für  $x = 0.2$  für hydrostatischen Druck bis 6.9 kbar. Mit steigendem Druck wird NFL-Verhalten erreicht. Mit überkritischem Druck stellt sich wieder FL-Verhalten ein. (c) für  $x = 0.2$  für verschiedene Felder bis 6 T mit  $B \parallel c$ . Mit steigendem Feld wird NFL-Verhalten erreicht. Mit überkritischem Feld sättigt die Kurve zu tiefen Temperaturen, und die FL wird wieder erreicht. [58, 75–77]

## Spezifische Wärme

**Goldkonzentration  $x$ :** Die Messungen der spezifischen Wärme (Abbildung 1.13 (a)) zeigen  $T_N$  als scharfe Anomalie, die zu kleinen  $x$  verrundet. Die tiefste gemessene Neel-Temperatur tritt für  $x = 0.15$  bei  $T_N \approx 89$  mK ein. Für die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  konnte bis  $T > 20$  mK keine Anzeichen für AFM-Ordnung gefunden werden [78]. Stattdessen weist die spezifische Wärme ein ausgeprägtes NFL-Verhalten auf:

$$\frac{C}{T} = a \cdot \ln\left(\frac{T_0}{T}\right) \neq \text{const.}$$

mit  $a = 0.578$  J/molK<sup>2</sup> und  $T_0 = 6.2$  K zwischen 0.06 K und 2.5 K. Positive Beiträge für Temperaturen oberhalb von 3 K gehören zur Kristallfeldaufspaltung und dem phononi-



schen Hintergrund. Das NFL-Verhalten entsteht nicht aus Inhomogenitäten, z.B. einer Verteilung von magnetisch ordnenden Temperaturen, da in  $\mu$  SR-Messungen im Rahmen der Messgenauigkeit von  $10^{-3}\mu_B/Ce$  kein ordnendes Moment gefunden wurde [79]. Auch eine Verteilung von Kondo-Temperaturen wird ausgeschlossen [80]. Aus Messungen von  $C/T$  bei hohen Feldern um  $B = 6$  T wurde eine Kondo-Temperatur  $T_K$  gewonnen. Die Temperatur des Einzelionen Kondo-Effekts wurde für  $x = 0$  zu  $T_K \approx 6$  K bestimmt und sinkt auf  $T_K \approx 2.5$  K für  $x = 1$  [81, 82].

**Druck  $p$ :** Mit einem von außen angelegten, hydrostatischen Druck  $p$  kann die Gitteraufweitung durch die Golddotierung wieder rückgängig gemacht werden, so dass mit zunehmendem Druck  $T_N$  abnimmt [74, 76, 83], wie aus Abbildung 1.13 (b) ersichtlich. Für  $x = 0.2$  erhält man einen kritischen Druck von  $p_c \approx 3.2 - 4$  kbar und für  $x = 0.3$  einen Druck von  $p_c \approx 7 - 8$  kbar. Am kritischen Druck zeigt sich für alle untersuchten Konzentrationen NFL-Verhalten mit erstaunlicherweise exakt dem gleichen Verhalten  $a \ln(\frac{T_0}{T})$  wie für die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  bei  $p = 0$ . Wird der Druck zu höheren Werte geführt, wird die FL wieder hergestellt.

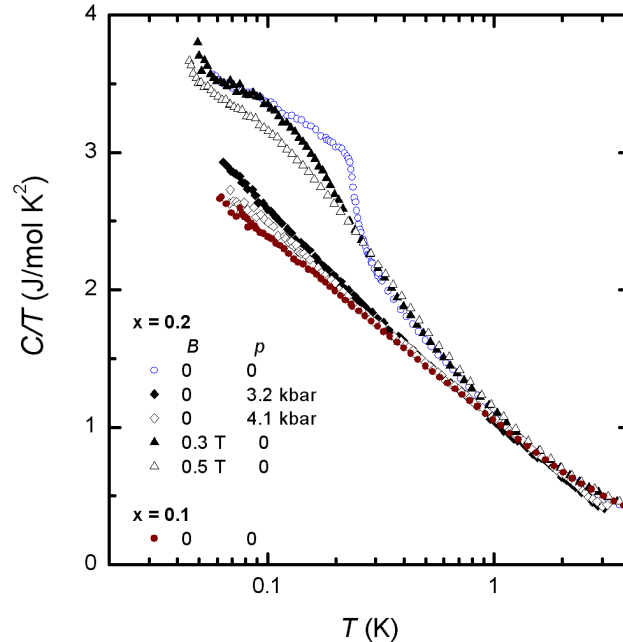


Abbildung 1.14: Spezifische Wärme  $C/T$  im Vergleich für ausgesuchte Drücke und Felder für  $x = 0.2$ . Im Vergleich wurde noch die Kurve für  $x_c = 0.1$  mit  $B, p = 0$  eingezeichnet. Deutlich zu sehen, der Unterschied zwischen druck- und feldinduziertem NFL-Verhalten neben der Kurve an  $x_c$  [58, 75–77].

**Magnetfeld  $B$ :** Ein äußeres magnetisches Feld unterdrückt ebenfalls die magnetische Ordnung  $T_N$ , wie in Abbildung 1.13 (c) sichtbar. Mit steigendem Feld zeigt  $CeCu_{6-x}Au_x$  wieder das normale FL-Verhalten. An den kritischen Feldern zeigt sich NFL-Verhalten, jedoch nicht mit der gleichen Temperaturabhängigkeit wie unter Druck. Die Kurve an  $B_c$

## 1 Grundlagen

kann eher durch  $C/T \sim \gamma_0 - aT^{0.5}$  beschrieben werden, wie für einen dreidimensionalen SDW QKP erwartet wurde [84].

Die große Dichte an niederenergetischen magnetischen Anregungen in der Nähe von  $x_c$ , wurde als Grund für das NFL-Verhalten an der magnetischen Instabilität angesehen [51]. Dies wird unterstützt durch die Wiederherstellung des FL-Verhalten zu hohen magnetischen Feldern [51, 85]. Mit steigendem Feld  $B \geq 0.2$  T wird  $C/T$  zunehmend konstant und kann theoretisch in hohen Feldern ( $B \approx 6$  T) durch ein Einzelionen Kondo-Modell beschrieben werden [58, 82].

Die Kontrollparameter Druck und Dotierung verhalten sich im Vergleich zum Kontrollparameter Magnetfeld recht unterschiedlich, siehe Abbildung 1.14. Die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  und  $x = 0.2$  am kritischen Druck  $p_c$  zeigen eine logarithmische Temperaturabhängigkeit, wohingegen  $x = 0.2$  am kritischen Magnetfeld  $B_c$  einen anderen funktionalen Zusammenhang aufweist.

### Neutronenstreuung

Mittels elastischer Neutronenstreuung wurde die magnetische Struktur für  $0.15 < x < 1$  ermittelt [62, 86]. Es handelt sich um eine inkommensurable 3D-Struktur, siehe Abbildung 1.15.

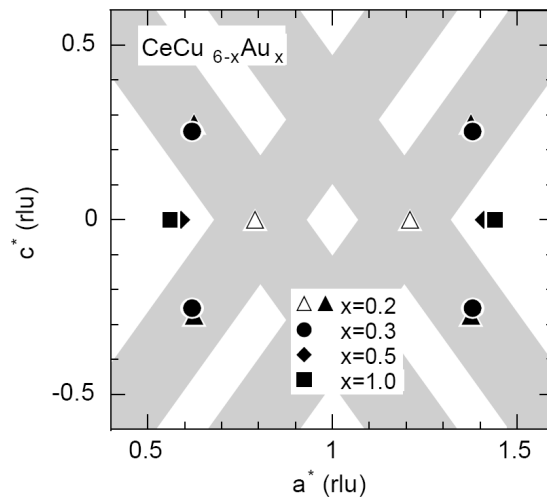


Abbildung 1.15: Elastische Neutronenstreuung: Lage der magnetischen Reflexe in der  $a^*c^*$ -Ebene für  $x \geq 0.2$ . Die grauen Bereiche deuten die in der elastischen Neutronenstreuung gefundenen ausgedehnten zweidimensionalen kritischen Fluktuationen für  $x = 0.1$  an [87].

Die Ausbreitung der Fluktuationen erfolgt in der Ebene, die von der Verbindungsachse der Ce-Atome und der  $b$ -Achse aufgespannt wird. Das NFL-Verhalten in  $C/T$ ,

$T_N \sim (x - x_c)^2$ , und  $\rho - \rho_0 \sim T$  bei  $x_c = 0.1$  kann ebenfalls am besten mit zweidimensionalen kritischen Fluktuationen innerhalb des SDW-Modells beschrieben werden [39, 88]. Abbildung 1.15 zeigt die Positionen der beobachteten Bragg-Peaks in der reziproken  $a^*c^*$ -Ebene. Die offenen Symbole entsprechen kurzreichweitigen Fluktuationen, die für  $x = 0.2$  zusätzlich zu den scharfen Peaks auftreten. Der magnetische Ordnungsvektor  $Q = (0.625, 0, 0.253)$  für  $x = 0.2$  ist konstant bis  $x \approx 0.4$ . Ab dieser Konzentration springt der Ordnungsvektor auf die  $a^*$ -Achse mit  $Q = (0.56, 0, 0)$  für  $x = 0.5$  [89]. Die Untersuchung der kritischen Fluktuationen bei  $x_c = 0.1$  mit inelastischer Neutronenstreuung [88] zeigte, dass die kritischen Fluktuationen stark anisotrop sind. Der dynamische Strukturfaktor  $S(\vec{q}, 0.15 \text{ meV})$  bildet eine stabförmige Struktur im reziproken Raum aus. Die Breite von  $S(\vec{q}, 0.15 \text{ meV})$  senkrecht zu den Stäben ist ungefähr 5 mal kleiner als parallel dazu. Die eindimensionale Stabstruktur im reziproken Raum entspricht einer zweidimensionalen Fluktuation im Ortsraum.

Schröder et al. [90] untersuchten den dynamischen Strukturfaktor  $S(\vec{q} = \text{const}, \hbar\omega)$  von  $x_c = 0.1$ . Sie fanden ein Verhalten mit folgender Abhängigkeit der dynamischen Suszeptibilität:

$$\chi^{-1}(\vec{q}, E, T) = c^{-1}(f(\vec{q}) + (-iE + aT)^\alpha) \quad (1.7)$$

mit einem anomalen Exponenten von  $\alpha = 0.74$ , der das Verhalten der statischen Suszeptibilität zwischen 0.08 K und 8 K sehr gut beschreiben kann. Ein Lorentz-förmiges Fluktuationsspektrum hätte einen Exponenten von  $\alpha = 1$ . Während die anomale  $q$ -Abhängigkeit der Fluktuationen im Rahmen der SDW-Theorie beschrieben werden kann, ist das  $E/T$ -Skalenverhalten nicht mit diesem Modell kompatibel, ebenso wenig wie der anomale Exponent  $\alpha = 0.74$ .

### Thermische Ausdehnung

Bisherige thermische Ausdehnungsmessungen zeigen ein stark anisotropes Verhalten der Substanz (Abbildung 1.16 [72, 91, 92]). Für  $x = 0.3$  und  $0.5$  ist bei  $T_N$  (Abbildung 1.16) ein deutlicher Sprung in  $\alpha$  mit einem Vorzeichenwechsel sichtbar. Der Sprung ist etwas verbreitert für  $x = 0.3$ , verschärft sich aber für  $x = 0.5$  deutlich und gewinnt an Größe. Für  $T \approx 2 \text{ K}$  ist in der  $c$ -Achse ein Maximum zu sehen, welches in der Literatur auf den Kondo-Effekt zurückgeführt wird [91].

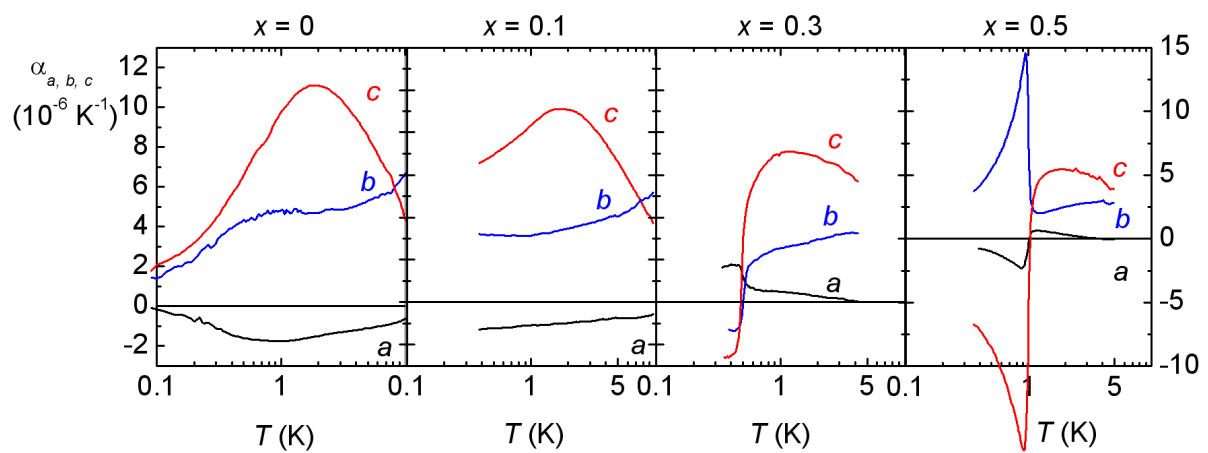


Abbildung 1.16: Thermische Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha_{a,b,c}$  von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  für die Konzentrationen  $x = 0, 0.1, 0.3$  und  $0.5$  als Funktion der Temperatur bei  $B = 0 \text{ T}$  [72, 91, 92].

## 2 Experimentelle Technik

Dieses Kapitel beschreibt die in dieser Arbeit verwendeten Messgeräte und die experimentelle Durchführung. Zuerst wird der Aufbau des Experiments beschrieben. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Verdrahtung und dem Kryostateneinsatz mit dem Dilatometer. Ein weiterer Schwerpunkt ist die Temperatursteuerung der Apparatur. Im Anschluss werden die gemessenen Proben vorgestellt.

### 2.1 Entmischungskryostat und Dilatometer

#### 2.1.1 Der Entmischungskryostat

Das in dieser Dissertation vorgestellte Experiment wurde in einem  $^3\text{He}/^4\text{He}$  - Entmischungskryostat MX400 der Firma Oxford Instruments installiert und durchgeführt. Das Kühlprinzip des Entmischungskryostaten wird in den Büchern von z.B. Lounasmaa [93], G.K. White [94], Pobell [95] und Hunklinger [96] gegeben.

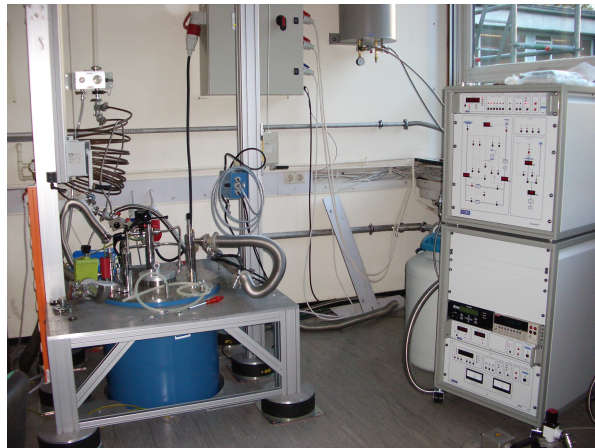


Abbildung 2.1: Links der MX 400 der Firma Oxford Instruments im schwingungsgedämpften Gestell, daneben rechts die Gas-Steereinheit.

Abbildung 2.1 zeigt den Kryostaten im Labor, eingehängt in einem schwingungsgedämpften Gestell, um die Vibrationen am Kryostaten zu minimieren. Vibrationen beschränken zum einen die Auflösung der thermischen Ausdehnung, zum anderen führen sie zu Aufheizeffekten, die das Erreichen der tiefsten Temperatur verhindern. Da der Dewar

mitsamt Aufsätzen eine Höhe von ca. zwei Metern erreicht, wurde dieser in ein Loch im Boden versenkt und ragt in den unter dem Labor liegenden Kellerraum hinein. Um auch die Vibrationen der Pumpen zu minimieren, wurden diese im Keller installiert und über Edelstahlrohre und Wellschläuche mit dem Kryostaten verbunden. Die Basistemperatur beträgt etwa zu 8.5 mK. Der Kryostat hat einen Probeninnenraum mit einem Durchmesser von 39.6 mm (begrenzt durch die innere Bohrung des eingebauten Magneten). Die Ausdehnung des maximalen homogenen Feldbereichs beträgt bis zu 5 cm um das Feldzentrum und ist ca. 30 cm von der Mischkammer entfernt. Der eingebaute Magnet ist ein unkompenzierter Spulenmagnet und erzeugt ein Magnetfeld von bis zu 14 Tesla bei 4.2 K, welches mit Hilfe einer Lambda-Stufe auf bis zu 16 Tesla erhöht werden kann.

Abbildung 2.2 zeigt den Entmischungskryostaten schematisch verbunden mit den Messgeräten. Die Ansteuerung der Messgeräte erfolgt über die GPIB- und RS232-Schnittstelle eines Rechners. Für die Messung der thermischen Ausdehnung benötigt man neben einer Widerstandsmessbrücke (AC 370 von LakeShore) für die Temperatursensoren (Cernox und RuO<sub>2</sub> von LakeShore), eine Stromquelle (Keithley SourceMeter 2400), um den Probenheizer (DMS 120  $\Omega$ ) anzusteuern, und eine Kapazitätsmessbrücke (AH 2550A von Andeen+Hagerling) um die Kapazität des Dilatometers zu bestimmen.

### 2.1.2 Verdrahtung

Die Verdrahtung des Entmischungskryostaten ist in Abbildung 2.2 abgebildet. Eine gute Thermalisierung der benötigten elektrischen Leitungen gewährleistet eine möglichst tiefe Basistemperatur, da jede zusätzliche Verbindung zu Raumtemperatur zu einem Wärmeeintrag in den Kryostat führt.

Von den Ausgangsflanschen (oben) kommend, ist die elektrische Verbindung in Richtung Experiment durch eine grüne und eine rote Linie gekennzeichnet. Die rote Linie kennzeichnet die Koaxialkabel zur Messung der Kapazität des Dilatometers, die grüne Linie die Zuleitungen der Temperatursensoren und des Heizers zu den Messgeräten. Wir verwendeten für letztere Kupfer- bzw Kupfer-Beryllium- Lackdrähte, welche in einem Gewebeband verwoben sind, sogenannte "woven looms". Diese haben den entscheidenden Vorteil, dass die Drähte bereits fertig verdrillt beieinander liegen und durch das Gewebeband vor mechanischer Belastung geschützt sind. In jedem Band befinden sich 12 verdrillte Paare. Diese Bänder sind einfach zu verlegen und lassen sich durch Umwickeln an Thermoanker thermisch an die jeweiligen Stufen im Kryostaten koppeln. Die Thermoanker (Firma CMR) sind ca. 5 cm lange (reine) Kupferstäbe, die an die verschiedenen thermischen Stufen im Kryostaten angeschraubt werden können. Als Thermalisierungsstufen wählten wir für das Kupfer-Berylliumband die 4K-Plattform, den 1K-Topf, die Destille und die Mischkammer. Von der Mischkammer führt ein Band mit Kupferdrähten hinunter zum Heizer und den Temperatursensoren, verbunden durch MDM-Stecker. Das Band wird an den experimentellen Einsatz mit Zahnseide angebunden, um Vibrationen der Drähte zu vermeiden.

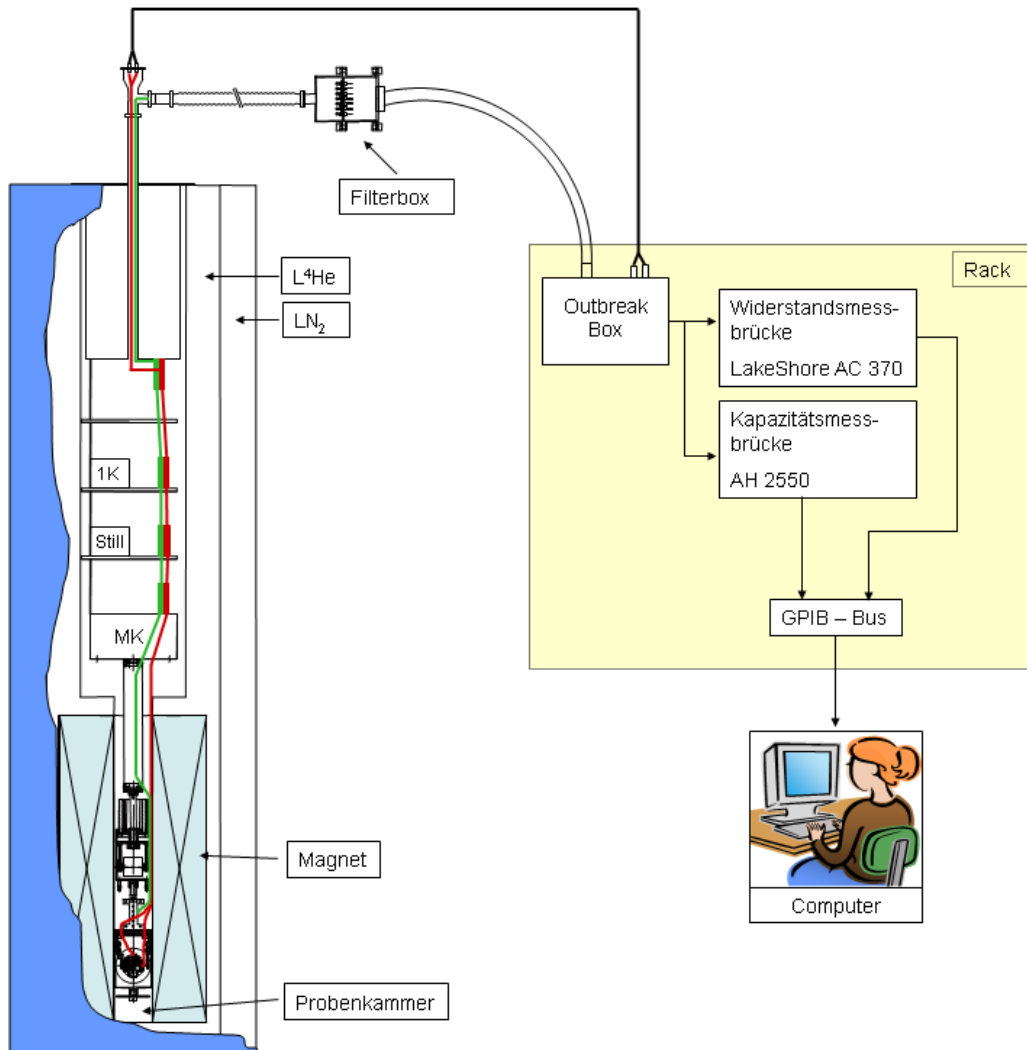


Abbildung 2.2: Der Kryostat und die Peripherie inklusive Rechner. Der Verlauf der Koaxialkabel ist rot markiert, die der verdrehten Kupfer-Drähte grün. [97]

Die Kapazität des Dilatometers wird über Koaxialkabel gemessen. Um eine möglichst gute Abschirmung elektromagnetischer Signale zu erreichen, wurden halbstarre (semi-rigid) Kabel verwendet. Diese sind nicht durch ein Geflecht, sondern durch ein dünnes Edelstahlrohr vollkommen geschirmt (Kabel: Firma MICRO-COAX; Stecker: Firma Rosenberger). Der Innenleiter besteht aus versilbertem Edelstahl mit Teflon als Isolierung. Die Kabel wurden in Hinblick auf ihre Eigenschaften ausgewählt, d.h. ein möglichst großer Widerstand bei kleiner Verlustleistung und kleinem Außendurchmesser ( $\varnothing 0.5$  mm,  $C = 46.2$  pF, Verlust  $0.06$  nS und Widerstände  $R_{300K} = 70$  m $\Omega$  und  $R_{4.2K} = 2.5$  m $\Omega$ ). Ein

wesentliches Problem aller Koaxialkabel ist die Abkühlung des Innenleiters aufgrund der Teflonisolierung des Innenleiters. Dies wurde durch speziell konstruierte Thermoanker gelöst, in denen der Innenleiter separat durch eine mit Epo-Tek (920 FL) ausgegossene Kupferwanne mit Hilfe eines Kupferdrahts ( $\varnothing 60\mu\text{m}$ ) geführt wird. Zur Messung der Kapazität des Dilatometers wurde eine Hochpräzisionskapazitätsmessbrücke eingesetzt (AH 2550 A der Firma Andeen+Hagerling). Sie zeichnet sich durch geringes Rauschen und hohe Stabilität aus.

Vom Kryostatenkopf ausgehend führt ein geschirmtes Kabel zu einer Messingkapsel (die Filterbox in Abbildung 2.2). In dieser Kapsel werden mit PI-Filtern hohe Frequenzen (Radio, Handy, etc.) stark gedämpft, um mögliche Aufheizeffekte zu verhindern. Von der Messingkapsel führt ein Kabel zu einem weiteren metallenen Gehäuse, in welcher die einzelnen Signale aufgespalten werden und in Steckern enden, die zu den jeweiligen Messgeräten führen. Erdschleifen wurden vermieden, die eine exakte Messung extrem stören würden und besonders tiefe Temperaturen durch Aufheizeffekte verhindern würden.

### 2.1.3 Aufbau des Dilatometer

In dieser Arbeit wird ein kapazitives Dilatometer [98] aus Cu:Be benutzt, welches die Fähigkeit besitzt, bei tiefen Temperaturen mit sehr hoher Genauigkeit Längenänderungen zu messen. Abbildung 2.4 rechts zeigt das Dilatometer, welches im Rahmen meiner Diplomarbeit [99] aufgebaut wurde. Das Messprinzip lässt sich wie folgt beschreiben. Die zu untersuchende Probe wird in eine Halterung eingespannt, deren unterer Teil fest verankert ist und deren anderes Ende mit einer beweglichen Platte eines Plattenkondensators verbunden ist. Dehnt sich die Probe aufgrund von Temperaturänderungen aus oder zieht sich zusammen, ändert sich auch der Abstand der Platten im Plattenkondensator. Damit ändert sich gleichzeitig die Kapazität des Kondensators. Das Prinzip der Anordnung ist in Abbildung 2.3 veranschaulicht. Das verwendete Dilatometer kann eine Auflösung von  $\Delta L/L \approx 10^{-8}$  vorweisen, bei einem Plattendurchmesser von 10.92 mm. Es können Proben von bis zu 5 mm Größe eingebaut werden. Das Dilatometer ist drehbar gelagert, dadurch kann sowohl longitudinal als auch transversal in einem Magnetfeld gemessen werden. In Abbildung 2.4 links ist der Aufbau des Dilatometers anhand einer technischen Zeichnung gezeigt. Eine Längenänderung der Probe (c) führt zu einer Auslenkung des über zwei Blattfedern (f1 und f2) und Schrauben befestigte beweglichen Teils (g). Die Federn übertragen die Längenänderung der Probe auf den Abstand der Kondensatorplatten (a und b). Der starre Bauteil (e) des Dilatometers enthält einen Hohlzylinder (unterer Teil von e), in den ein zylindrischer Probenstempel eingespannt werden kann, auf welchen später die Probe montiert wird. Die Aufhängepunkte der Federn am unbeweglichen Teil (e) und beweglichen Teil bilden Eckpunkte eines Parallelogramms, so dass die Auslenkung relativ parallel zur Zellachse verläuft und die zur Achse senkrechte Lage der Kondensatorplatten bei Bewegung erhalten bleibt. Diese Parallelfederführung gewährleistet die parallele Auslenkung der Platten unabhängig von der Probenform. Der Andruck den die Federn dabei auf die Probe ausüben ist kleiner als 1 bar.



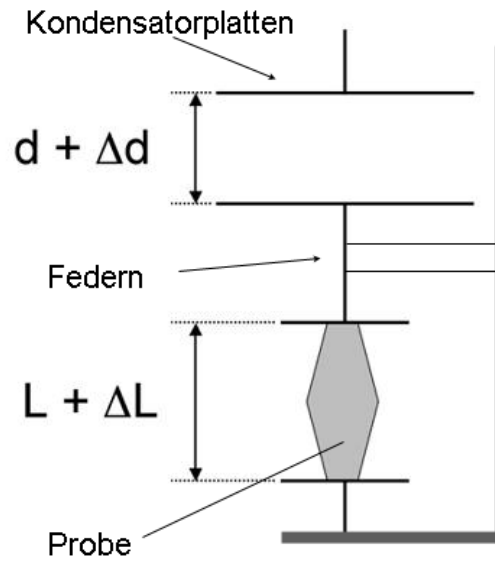


Abbildung 2.3: Schematisches Prinzip des Dilatometers. In der Mitte befindet sich die zu messende Probe, darüber die Kondensatorplatten, wobei die obere fest und die untere beweglich aufgehängt, aber dennoch fest mit der Probe verbunden ist. Eine Änderung der Probenlänge hat eine Abstandsänderung der Platten und damit eine Kapazitätsänderung zur Folge.

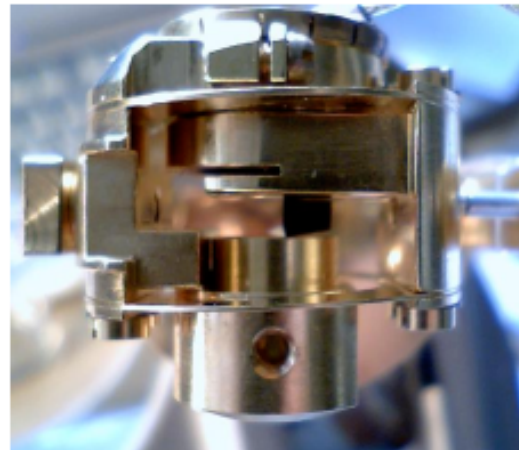
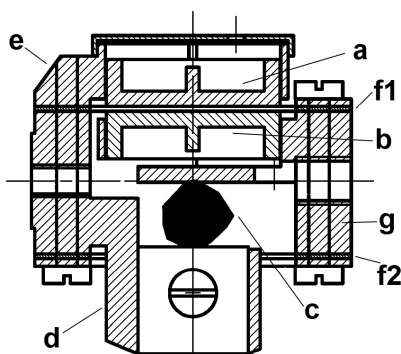


Abbildung 2.4: *Links*: Schematischer Plan des Dilatometers. Beschreibung siehe Text. *Rechts*: Dilatometer mit eingebauter Probe.

## Parallelität der Kondensatorplatten

Wir testeten den Auflösungsbereich des Dilatometers und versuchten zu ermitteln, bei welchen Plattenabständen ein linearer Messbereich  $d \sim 1/C$  gewährleistet wird. Ist dieser lineare Bereich bekannt, kann eine entsprechende Ausgangskapazität gewählt werden, die hoch auflöst und eine mit weniger Fehlern behaftete Messung ermöglicht. Zu diesem Zweck wird das Dilatometer umgedreht und der Probenstempel mit Gewichten belegt, die den Stempel nach unten drücken und die Platten zusammenschieben. Abhängig vom Gewicht werden die Kapazitäten aufgenommen. Man erhöht das Gewicht bis zur maximalen Kapazität, die dem minimal möglichen Plattenabstand entspricht. In unserem Test erreichten wir eine maximale Kapazität von ca. 110 pF, was einem Minimalabstand der Platten von ca.  $7.5 \mu\text{m}$  entspricht. Somit weisen die Platten eine sehr gute Parallelität auf. Die verwendeten Plattenabstände lagen während den Messungen immer im linearen Bereich und ergaben typische Kapazitäten von 30 pF bis 38 pF.

### 2.1.4 Messprinzip

#### Ermittlung der Längenänderung aus der Kapazitätsänderung

Für einen idealen Plattenkondensator mit der Fläche  $A$  und dem Plattenabstand  $d$  folgt:

$$d(T, B) = \varepsilon_r \varepsilon_0 \cdot \frac{A(T, B)}{C(T, B)} \quad (2.1)$$

mit  $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12} \text{ Fm}^{-1}$  und  $\varepsilon_r$  der Dielektrischen Konstante des Materials zwischen den Platten. Im Kryostaten ist bei Temperaturen unterhalb 1 K ein Vakuum von ca.  $10^{-9}$  mbar vorhanden. Somit kann  $\varepsilon_r = 1$  angenommen werden. Im einfachsten Fall kann die Längenänderung der Probe als Funktion der Temperatur gemessen werden. Es ergibt sich für die Probenlänge  $L$  ( $L_0$  sei die Länge der Probe bei Raumtemperatur) und den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha$ :

$$L(T) = L_0 + \Delta L(T) \quad (2.2)$$

$$\alpha(T) = \frac{1}{L} \cdot \frac{dL}{dT} \quad (2.3)$$

Berücksichtigt man noch die thermische Ausdehnung der Zelle, ergibt sich insgesamt:

$$\alpha = -\frac{1}{L} \left( \frac{\partial d_{\text{Mess}}}{\partial T} - \frac{\partial d_{\text{CuBe}}}{\partial T} \right) + \alpha_{\text{CuBe}} \quad (2.4)$$

Der erste Term in Gleichung 2.4 bezeichnet die Längenänderung der Probe, der zweite Term die der mit dem Grundabstand  $d_0$  und der dritte Term den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Cu:Be. Für die genaue Herleitung dieser Formel sei auf [99] verwiesen.

## Temperatursteuerung

Die Messung der thermischen Ausdehnung erfordert eine exakte, reproduzierbare Temperatursteuerung. Da für den thermischen Ausdehnungskoeffizienten die Längenänderung nach der Temperatur abgeleitet wird, hängt das Auflösungsvermögen von  $\alpha$  direkt von der Auflösung der Temperaturmessung ab. Für die verschiedenen Temperaturbereiche wurden von LakeShore kalibrierte Thermometer eingesetzt: Ein Cernox-Thermometer für den Bereich von 0.1 K bis 325 K und ein Rutheniumoxid-Thermometer für den Bereich von 50 mK bis 30 K.

Es wurde neben einer Software für die Ansteuerung der Mess- und Steuergeräte [100] auch eine geeignete Ankopplung des Experiments an die Mischkammer entwickelt. Das Experiment wird thermisch über kupferbeschichtete Leiterplatten an den Kühlkreislauf des Entmischungskryostaten angekoppelt. Die richtige Aufhängung im Probenraum wird durch eine Konstruktion aus vier dieser Leiterplatten sichergestellt, die die erforderliche Länge bis zum Mittelpunkt des Magnetfeldes überbrücken. Das Experiment nutzt die Basistemperatur der Mischkammer zum Kühlen und wird direkt mit einem Dehnungsmessstreifen (Kyocera 120  $\Omega$ ) geheizt. Dies hat den Vorteil, dass die Temperatur kontinuierlich bis  $T = 3.5$  K geändert werden kann, ohne dass dabei der Mischungs-kreislauf abbricht. Bei 3 K am Experiment erhält man ca. 600 mK an der Mischkammer. Hochtemperaturmessungen von 2 K bis zu 10 K konnten durch einen gedrosselten Gas-kreislauf, mit ungefähr 30 % Gasmischung, durchgeführt werden.

Prinzipiell gibt es zwei Methoden Temperaturen in einem Experiment zu regeln: entweder man fährt diskrete Temperaturwerte an und misst dann bei konstant gehaltener Temperatur oder die Messung erfolgt während die Temperatur kontinuierlich verändert wird. Das erste, statische Verfahren hat den Vorteil, dass man anhand der zeitlichen Entwicklung des Messsignals erkennen kann, ob sich die Probe im thermischen Gleichgewicht mit dem Thermometer befindet. Notfalls kann dann eine länger Wartezeit eingelegt werden bevor die eigentliche Messung beginnt. Im Gegensatz dazu ermöglicht die zweite, dynamische Temperaturkontrolle viele Messungen in vergleichsweise kurzen Zeitabständen durchzuführen und ist daher weniger empfindlich auf äußere Störungen.

Die Messung der thermischen Ausdehnung bei tiefen Temperaturen  $T < 100$  mK erfordert eine extrem hohe Auflösung von  $\Delta L < 0.1$  Å. Änderungen im Labor wie Raumtemperaturschwankungen, elektromagnetische Störungen oder Vibrationen durch Trittschall können daher zu plötzlichen Sprüngen in der Messung führen, die in dem statischen Verfahren die Messauflösung erheblich vermindern würden. Wir haben uns daher entschlossen ein Kompromiss beider Methoden zu benutzen. Dabei wurde die zeitliche Temperaturänderung an den jeweiligen Temperaturbereich angepasst und eine exponentielle Zeitabhängigkeit von  $T$  gewählt, so dass beim Start der Messung  $dT/dt = 0$  ist. Die Temperatur wird kontinuierlich verändert, mit sehr langsamen Temperaturänderung bei kleinen  $T$ . Eine Messzeit von 4 h für einen Temperaturbereich von  $40$  mK  $< T < 3.5$  K erwies sich als geeignet. Dabei wird alle 9 s ein Messpunkt gesetzt und die Kapazi-

tät ausgelesen. Zusätzlich wurden alle Messungen bei zu- und abnehmender Temperatur durchgeführt. Unterhalb von ca. 300 mK zeigen diese Messungen eine leichte Hysterese, die von dem Unterschied zwischen der Temperatur der Probe und dem Thermometer herrührt. Der maximale Temperaturunterschied an der tiefsten Temperatur betrug weniger als 3 mK.

Die Temperaturkontrolle und die spezielle Aufhängung erfordern die Entwicklung eines Einsatzes, der die Anforderungen an eine gute thermische Leitfähigkeit erfüllt und keine Wirbelströme im Magnetfeld erzeugt. Es wurde eine Halterung konzipiert, die einerseits genug Platz für das Experiment, als auch für die Temperatursensoren und die Kabel bietet. Die notwendigen Bauteile wurden aus den Materialien OHFC-Kupfer und Kupferlegierungen gefertigt. OHFC-Kupfer ist wegen der guten thermischen Leitfähigkeit das Material der Wahl für den Großteil der Halterung. Für das Bauteil, welches das Dilatometer trägt, wurde eine Legierung aus Kupfer-Beryllium (Cu:Be) verwendet, aufgrund des gleichen thermischen Ausdehnungsverhalten wie das Dilatometer, das ebenfalls aus Cu:Be besteht. Somit ist weniger Rauschen in den Messungen zu erwarten, da keine unterschiedliche thermische Ausdehnung an den Kontaktflächen zwischen Dilatometer und Experimenthalterung auftritt. Auch werden Wirbelströme, verursacht durch Magnetfelder, gemindert, da der Widerstand des Materials höher ist. Alle Bauteile wurden vergoldet, um eine gute thermische Ankopplung zu gewährleisten.

Nach dem Einbau der Verdrahtung wurde ein Testexperiment mit einer vereinfachten Form der Probenhalterung, aus nur zwei Leiterplatten, eingebaut, um u.a. die Funktionen des neuen Kryostaten und die eigens entwickelte Software zur Temperatursteuerung zu testen, sowie ergänzende Daten zu Widerstandsmessungen aus der Universität [101] zu erhalten. Aufgrund der Bauweise des Probenhalters entstanden während der Messung Aufheizeffekte, die auf Wirbelströme innerhalb des Probenhalters zurückzuführen waren. Dieses Problem konnte durch den Einsatz von vier Leiterplatten gelöst werden, die der Aufhängung des Experiments wesentlich mehr Steifigkeit verliehen haben.

### Magnetostriktion

Die Magnetostriktion wird mit einer dynamischen Methode gemessen, d.h.  $\partial B/\partial t \neq 0$ , bei festen Temperaturen. Das Magnetfeld wurde mit einer linearen Rate von 10 mT/min von 0 T bis zu 3 T kontinuierlich verändert. Die Messung der Kapazität erfolgt auf die gleiche Weise wie für die thermische Ausdehnung.

In der Messung unterhalb von 0.1 T traten jedoch Schwierigkeiten auf, da der Abschirmbecher des Dilatometers aus mit 2-3 % Blei versetztem Messing gefertigt war. Blei wird supraleitend unterhalb von  $T_c = 7.2$  K und weist ein kritisches Feld von  $B_c \approx 80$  mT auf. Das führte dazu, dass sich die Temperatur bei  $B_c$  so stark änderte, dass die Temperatursteuerung die Temperatur nicht mehr konstant halten konnte. Auftretende Wirbelströme verstärken den Effekt. Werden Messungen in der Nähe eines Phasenüberganges gemacht, dessen kritisches Feld bei sehr kleinen Feldern erreicht wird (siehe auch Kapitel 3), kann

es passieren, dass die Temperaturänderung zu groß ist und die Probe bereits die Phase gewechselt hat, bevor das eigentlich zu untersuchende kritische Feld erreicht wurde. Die Magnetostruktionsmessungen mussten daher sehr langsam ausgeführt werden.

### 2.1.5 Messhintergrund zur thermischen Ausdehnung und Magnetostruktion

Für Messungen bei hohen Temperaturen sind zusätzliche Beiträge zu  $\alpha$  zu erwarten. Zum einen durch die Ausdehnung des Materials der Messzelle  $\alpha_{CuBe}$ , zum anderen muss die Verschiebung der Platten in ihrer Halterung als Funktion der Temperatur berücksichtigt werden. Um den Hintergrundbeitrag zu den Messungen von  $CeCu_{6-x}Au_x$  zu bestimmen, wurde eine Leermessung und eine Testmessung mit Silizium durchgeführt. Silizium ist besonders geeignet zur Bestimmung des Hintergrundes, weil die thermische Ausdehnung aus Tieftemperaturmessungen ( $\alpha$ ,  $C$  und die elastischen Konstanten) bekannt ist und keine de Haas-van Alphen Oszillationen auftreten. Abbildung 2.5 zeigt die Messung des Dilatometers mit einer Siliziumprobe mit  $L_{Si} = 3.67$  mm im Nullfeld. Der Absolutwert der thermischen Ausdehnung ist sehr klein und liegt an der Grenze zur Auflösung des Dilatometers, die bei ca.  $\alpha \approx 10^{-8} \text{ K}^{-1}$  liegt. Dies gilt auch für die Leermessung, die mit einem Cu:Be-Stempel durchgeführt wurde.

Die Größenordnung der Silizium- und der Leermessung von  $\alpha \approx 10^{-8} \text{ K}^{-1}$  zeigt gegenüber der Größenordnung der Rohdaten der Messung von  $CeCu_{6-x}Au_x$  mit  $\alpha \approx 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ , dass die Verschiebung der Platten in ihrer Halterung und die Ausdehnung der Zelle verschwindend klein sind. Der Vergleich mit einem kalibrierten Hochtemperaturdilatometer [102, 103] zeigt, dass bis zu einer Temperatur von  $T = 10$  K eine perfekte Übereinstimmung herrscht. Daher sind für unsere Proben im Temperaturbereich  $30 \text{ mK} < T < 10 \text{ K}$  alle Beiträge durch die Messzelle vernachlässigbar und es werden die Rohdaten für die Auswertung verwendet.

#### Einfluss der Federdicke

Zu Beginn des Experiments wurden Federn mit einer Dicke von  $d = 0.3$  mm in das Dilatometer eingebaut. Wir erhofften uns dadurch eine geringere Vibrationsempfindlichkeit und eine bessere thermische Ankopplung des Dilatometers an die Temperaturen im Kryostaten.

Die gemessene Probe zeigte einen leicht veränderten Phasenübergang, welche zu unerwartet tieferen Temperaturen verschoben wurde. Es stellte sich heraus, dass die Federn gegen Schrauben an der Plattenhalterung des Dilatometers drückten und durch den stark verkürzten Federweg einen erhöhten Gegendruck auf die Probe erzeugten. Daraufhin wurde die untere, zur Probe hin zeigende Feder, durch eine dünnere Feder mit 0.2 mm Dicke ausgetauscht und die Plattenhalterung abgeändert, so dass bei großer Auslenkung der Federweg erhalten blieb. Allerdings war die Messzelle mit ausschließlich  $d = 0.2$  mm Federn zu vibrationsempfindlich. Eine Mischung der Federdicken, mit der

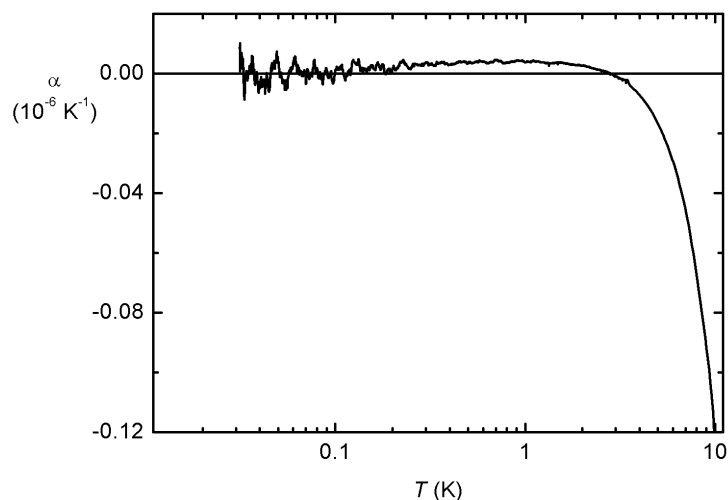


Abbildung 2.5: Thermische Ausdehnung von Silizium und des Dilatometers bezogen auf eine Probenlänge von 3.67 mm ohne Abzüge.

dünnenen Feder oben und der dickeren Feder unten, war weniger vibrationsempfindlich. Der uniaxiale Druck auf die Probe ist  $\leq 1$  bar. In Anhang A werden Messungen mit dem uniaxialen Druck gegenüber Messungen mit dem entspannteren Dilatometer mit weniger Druck verglichen und die Größenordnung des Drucks abgeschätzt.

### 2.1.6 Auswertung der Daten und Temperaturkorrektur

In einer Messung werden insbesondere bei tiefen Temperaturen eine große Anzahl von Messpunkten aufgenommen, um eine gute Statistik zu erzielen. Da die Messungen bei sehr tiefen Temperaturen mit sehr kleinen Heiz- oder Kühlraten aufgenommen werden müssen, sind die Temperaturunterschiede zwischen zwei Messpunkten oft kleiner als 0.1 mK. Unterhalb von 100 mK ist aber die Auflösung der Temperaturmessung schlechter als 0.05 mK. Die Kapazitätsmessung kann zwar Längenänderungen von einem hundertstel Å unterscheiden, aber wegen der kleinen Temperaturschritte gelangt man auch bei einer ungewöhnlich großen thermischen Ausdehnung von  $\alpha = 10 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$  mit  $\Delta L \approx 10^{-2} \text{ Å}$  für eine 1 mm langen Probe an die Grenzen des Auflösungsvermögens. Aus diesem Grund müssen die Daten gemittelt werden (siehe Abbildung 2.6 links).

Dazu werden sowohl der Plattenabstand als auch die Temperatur über der Zeit aufgetragen und mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate ein Spline berechnet. Wichtig ist hierbei die geeignete Wahl der Anzahl der Stützstellen für den Spline und eine logarithmische Verteilung der Stützstellen, da die Temperatur einer logarithmischen Skala folgt. Eine Anzahl von 17-20 Stützstellen erwies sich als geeignet. Diese Fit-Kurven wer-

den nach der Zeit differenziert und dividiert. Die parametrisierte Ableitung, wie sie hier Verwendung findet, minimiert die bei der Differentiation entstehenden Fehler. Diese Methode wurde für die Messungen im Temperaturbereich  $40 \text{ mK} < T < 10 \text{ K}$  angewandt. Verstärktes Rauschen unterhalb von  $100 \text{ mK}$  aufgrund der beschränkten Auflösung der Temperaturmessung tritt in der Auswertung als Streuung der Messdaten auf den Kurven auf. Die Streuung der Messdaten bewegen sich im Rahmen der systematischen Messfehler, die im folgenden Abschnitt abgeschätzt werden.

### Systematische Fehlerabschätzung

Die maximale Annahme für Fehler im Abstand der Kondensatorplatten  $\Delta d$  liegt in der Kapazität  $C$  und der Fläche der Kondensatorplatten  $A$  bei  $\Delta C \approx 10^{-5} \text{ pF}$  und  $\Delta A \approx 0.3 \cdot 10^{-5} \text{ mm}^2$ . Aus dem berechneten Fehler von  $d$ , der bei  $\Delta d \approx 2.6 \mu\text{m}$  liegt, wird weiterhin der Fehler für die thermische Ausdehnung  $\Delta\alpha/\alpha$  ermittelt. Der Fehler in der Temperatur wird mit  $\Delta T = 5 \text{ mK}$  für die Temperatursensoren aus den Fehlerangaben von LakeShore entnommen. Ein systematischer Fehler in der Längenmessung der Probe wird mit  $\Delta L = 0.005 \text{ mm}$  abgeschätzt. Mit der systematischen Fehlerfortpflanzung

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = \sqrt{\left(\frac{\Delta C}{C}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2 + \left(\frac{\Delta T}{T}\right)^2}$$

erhält man beispielhaft für die Werte  $T = 0.1 \text{ K}$ ,  $C = 32.73935 \text{ pF}$ ,  $A = 9.357 \cdot 10^{-5} \text{ mm}^2$  und  $L = 1.992 \text{ mm}$  einen relativen Fehler  $\Delta\alpha/\alpha < 6 \%$ . In den Messungen sind die systematischen Fehler bis zu einer Temperatur von  $T = 120 \text{ mK}$  eingezeichnet. Für höhere Temperaturen sind die systematischen Fehler vernachlässigbar klein.

### Temperaturkorrektur

Unterhalb von einer Temperatur von ca.  $300 \text{ mK}$  beginnen in den Aufheiz- und Abkühlkurven der thermischen Ausdehnung Hysteresen aufzuspalten, mit einer Breite von maximal  $\Delta T \approx 3 \text{ mK}$  bei ca.  $40 \text{ mK}$ . Die große Wärmekapazität der gemessenen Proben könnte eine Ursache für die Temperaturverschiebung sein. Ebenso ist es möglich, dass die Temperaturankopplung zwischen Thermometer und Dilatometer, aufgrund der Distanz von ca.  $4 \text{ cm}$ , eine Verzögerung der gemessenen Temperatur der Messapparatur zur Folge hatte. Mit einer kleinen Korrektur der Temperatur werden die Unterschiede zwischen dem Aufheizkurven und Abkühlkurven minimiert. Die Korrektur soll für tiefe Temperaturen groß und für höhere Temperaturen klein werden. Wir nehmen eine Temperatur  $T_B$  als Basistemperatur für das Dilatometer an, gegeben durch das Thermometer, die sich logarithmisch mit der Zeit  $t$  ändert. Es gelte für die zeitliche Änderung der Temperatur  $T$  des Dilatometers, mit  $\Delta T = T - T_B$ :

$$\dot{T} = \frac{\Delta T}{\tau}$$

Unter der Annahme, dass die Temperatur- und Zeitabhängigkeit von  $\tau(T)$  und  $T_{set}(t)$  im Intervall  $T_n - T_{n-1}$  bzw.  $t_n - t_{n-1}$  sehr klein ist, kann die obige Gleichung approximiert

## 2 Experimentelle Technik

werden durch:

$$T_n = T_{n-1} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau}\right) + T_B \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau}\right)\right)$$

mit der Temperatur  $T_n$  zur Zeit  $t_n$ . Daraus folgt für die korrigierte Temperatur  $T_{korr}$ :

$$T_{korr} = T_n + \Delta T = T_n + (T_{n-1} - T_B) \left(1 - \exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau}\right)\right)$$

$\tau$  folgt im Prinzip dem logarithmischen Verlauf der spezifischen Wärme der Substanz:

$$\tau = A \cdot \frac{(T - T_0)}{\log(T/T_0)}$$

Der Parameter  $A$  hat die Einheit K/s und beinhaltet die thermische Leitfähigkeit. Die Temperatur  $T_0$  gibt die Grenztemperatur an, unter welcher die Hysterese zu beobachten ist. Diese Korrektur wurde für alle temperaturabhängigen Messdaten mit den Parametern  $T_0 = 350$  mK und  $A = 0.01$  K/s verwendet.

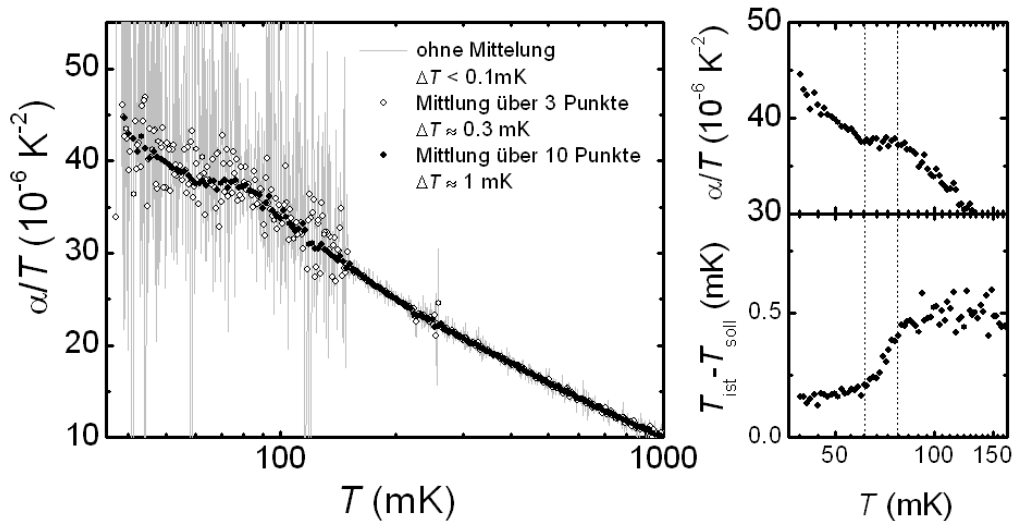


Abbildung 2.6: Messung von  $\alpha/T$  an  $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$  mit  $B \parallel c$  entlang der  $c$ -Achse mit verschiedenen Mittelungen. In grau die nicht gemittelten Messdaten. In diesen Fall sind die Abstände zwischen den Messpunkten kleiner als  $\Delta T < 0.1\text{mK}$ . Wegen der beschränkten Auflösung in der Temperaturmessung führt das zu einem erhöhten Rauschen in  $\alpha$  bei  $T < 150$  mK. Für die offenen und geschlossenen Punkte wurden die Daten über 3 und 10 Messpunkte gemittelt. Daraus ergibt sich für die Ableitung  $\Delta L/\Delta T$  ein mittleres  $\Delta T$  von ca. 0.3 mK und 1 mK (links im Bild).



### Messbedingte Anomalien in der thermischen Ausdehnung

Unterhalb von  $T < 75$  mK traten in allen hier gezeigten Messungen kleine Anomalien im thermischen Ausdehnungskoeffizienten auf. Diese Anomalien skalieren mit  $\alpha$  und sind deshalb besonders gut in Messungen mit hohen  $\alpha$ -Werten erkennbar (siehe Abbildung 2.6 links). Die Tatsache, dass ihre Lage und Form für alle Gitterparameter sowie für verschiedene Proben innerhalb der Fehlergrenzen gleich sind und sie zudem nicht vom Magnetfeld abhängen, weist darauf hin, dass sie von den äußeren Messbedingungen verursacht werden. Die einzige andere Größe, in der wir ein ähnliches Verhalten beobachten konnten, ist die Temperatur. Das ist besonders deutlich in der Differenz zwischen der gemessenen Temperatur  $T_{ist}$  und der Regeltemperatur  $T_{soll}$  zu erkennen (siehe Abbildung 2.6 rechts).

Im Gegensatz zur Kapazitätsmessung weisen die Temperaturdaten eine sehr viel höhere Streuung auf. Da über die Ableitung von  $L$  nach  $T$  die Temperaturdaten direkt in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten eingehen, reagiert  $\alpha$  sehr empfindlich auf kleinste Fehler in der Temperaturmessung oder Kalibrierung. Tatsächlich nimmt das Rauschen in der Temperaturmessung unterhalb von 150 mK stark zu. Die Anomalie scheint nicht durch die Mittelung der Daten zu entstehen (siehe Abbildung 2.6 links). Eine erneute genauere Kalibrierung des Temperaturwiderstands steht noch aus, aber der Vergleich mit anderen Temperatursensoren sowie der Vergleich unserer Messungen mit Literaturdaten macht deutlich, dass ein möglicher Fehler in der Temperaturmessung kleiner als 5 mK sein sollte. Damit wäre die Abweichung noch gerade innerhalb der Fehlergrenzen, die die Firma LakeShore für das verwendete kalibrierte RuOx-Thermometer angibt.

#### 2.1.7 Messungen oberhalb 10 K

Die Messungen der thermischen Ausdehnung wurden in Zusammenarbeit mit C. Meingast und F. Hardy an einem kalibrierten Hochtemperaturdilatometer in einem  $^4\text{He}$ -Kryostaten durchgeführt. Der Temperaturbereich betrug  $5 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$ .

## 2.2 Proben

Vorteilhaft für eine erhöhte Auflösung sind Proben, deren Achse in Spitzen enden und somit eine verringerte Auflagefläche bieten. Verwendet wurden Einkristalle von O. Stockert [104], die mit der Czochralski-Methode gezogen wurden. In Tabelle 2.1 sind die wichtigsten Parameter der Proben zusammengefasst. Das Magnetfeld wurde stets parallel zur magnetisch leichten Achse der Substanz, der  $c$ -Achse ausgerichtet. Die Proben oxidieren im Allgemeinen recht schnell aufgrund der Reaktionsfreudigkeit des Cer. Vor dem Einbau in die Messzelle wird die Oxidschicht kurz mit einem Schleifpapier mit 4000er Körnung entfernt, damit die Probe besser an das Dilatometer thermisch angekoppelt ist.

### $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ und $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$

Abbildung 2.2 zeigt die Proben  $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$  und  $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$ , welche beide zur Orientierung der Achsen auf einem Vierachsen-Röntgendiffraktometer vermessen wurden [70]. Eine eingehendere Analyse der Probe  $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$  (Vierachsen-Röntgendiffraktometrie [70], Elektronenmikroskopie EDX [105]) ergab Beweise, die für die korrekte Goldkonzentration sprechen. Die Gitterparameter passen im Rahmen der Messgenauigkeit des Vierkreisers perfekt zu den Parametern aus Messungen eines zweiachsigen Röntgendiffraktometer [104]. Die Messung zeigten allerdings eine leichte Fehlbesetzung auf den Cer-Plätzen. Die EDX wies Spuren von Wolfram (Tiegelmaterial) nach. Daher ist die Probe vermutlich eine Probe vom Rand des Czochralski-Stabes.

### $\text{LaCu}_6$

Speziell für die Messungen bei höheren Temperaturen ist es wichtig, den Beitrag des Kristallgitters zu kennen. Für  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  ergibt sich die Möglichkeit, die unmagnetische Schwestersubstanz  $\text{LaCu}_6$  zu messen, die keine Elektronen im  $4f$ -Orbital besitzt. Einkristalle hierfür wurden von Th. Wolf (IFP) [106] gezüchtet. Die Kristallstruktur ist monoklin bei Raumtemperatur, wobei die monoklinen  $a, b, c$ -Achsen den  $b, c$  und  $a$ -Achsen in orthorhombischer Notation entsprechen.

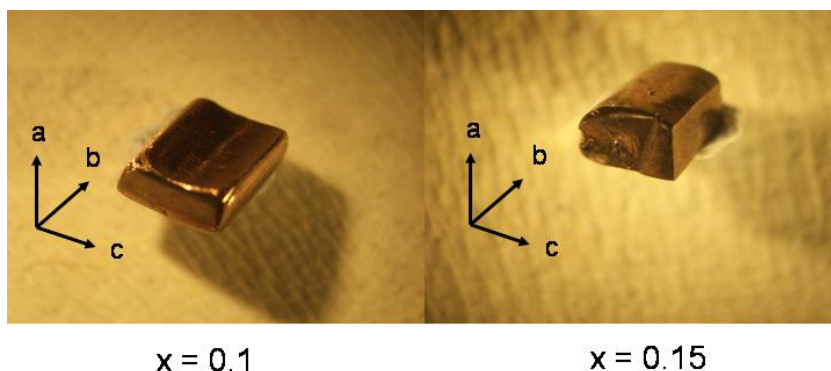


Abbildung 2.7: Die verwendeten  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  Einkristalle inklusive der Achsenbezeichnung für die orthorhombischen Kristallachsen  $a, b$  und  $c$ . *Links:*  $x = 0.1$ . *Rechts:*  $x = 0.15$ .

Proben	$x = 0.1$	$x = 0.15$	LaCu <sub>6</sub>
Längen [mm]	a = 2.43 b = 4.484 c = 3.636	a = 1.992 b = 2.658 c = 2.248	a = 3.3 b = 6.7 c = 4.59
Gitterparameter [Å]	a = 8.125(5) b = 5.097(2) c = 10.182(8)	a = 8.132 b = 5.0961 c = 10.189	a = 8.121 b = 5.073 c = 10.181
$V_{mol}$ [m <sup>3</sup> /mol]	$6.336 \cdot 10^{-5}$	$6.345 \cdot 10^{-5}$	$5.20 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 2.1: Parameter zu den Proben  $x = 0.1$ ,  $x = 0.15$  und LaCu<sub>6</sub> in orthorhombischer Notation.



# 3 CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>: Messergebnisse und Diskussion

## 3.1 Thermische Ausdehnung

In diesem Kapitel werden die Messergebnisse der thermischen Ausdehnung im Nullfeld vorgestellt und analysiert. Abbildung 3.1 zeigt beispielhaft den thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha_V$  von CeCu<sub>5.9</sub>Au<sub>0.1</sub> als Funktion der Temperatur zusammen mit  $\alpha_V$  eines LaCu<sub>6</sub>-Einkristalls [106]. Da Lanthan im Gegensatz zu Cer keine 4*f*-Elektronen, aber nahezu den gleichen Ionenradius besitzt, und zudem LaCu<sub>6</sub> in der gleichen Struktur wie CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> kristallisiert, gibt die Differenz der beiden Messungen den Beitrag des 4*f*-Elektrons zur thermischen Ausdehnung wieder. Der Temperaturbereich der Messungen erstreckt sich über vier Größenordnungen  $0.04 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$ . Mit abnehmender Temperatur weicht  $\alpha_V$  von  $x = 0.1$  deutlich von  $\alpha_V$  von LaCu<sub>6</sub> ab. Dies ist auf die thermisch angeregte Umbesetzung des 4*f*-Grundzustands-Multiplett  $^2F_{5/2}$  zurückzuführen, das im Kristallfeld in drei Dubletts aufgespalten ist.

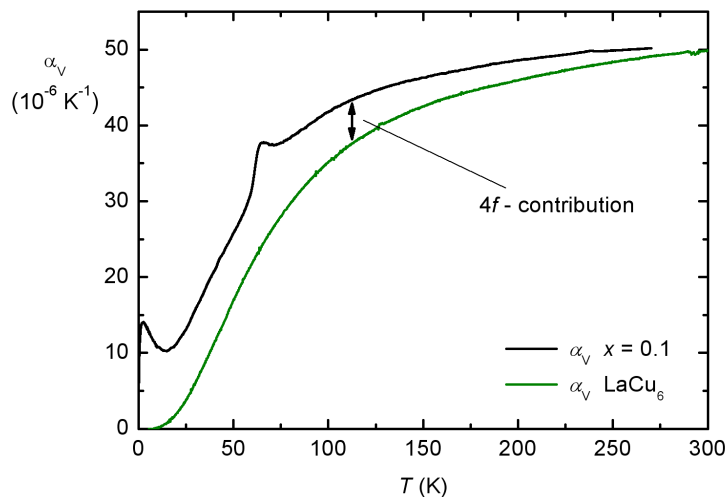


Abbildung 3.1: Der thermische Ausdehnungskoeffizient von CeCu<sub>5.9</sub>Au<sub>0.1</sub> (schwarz) und LaCu<sub>6</sub> (grün). Die Messungen des LaCu<sub>6</sub>-Einkristalls entstanden in Zusammenarbeit mit C. Meingast [102].

Die Anomalie bei ca. 70 K markiert den bereits erwähnten Übergang zur monoklinen Kristallstruktur. Bei tieferen Temperaturen unterhalb von 20 K nimmt der thermische Ausdehnungskoeffizient ungewöhnlich hohe Werte an. Während  $\alpha_V$  von LaCu<sub>6</sub> wie gewöhnliche Metalle gegen Null strebt, steigt  $x = 0.1$  auf Werte, die fast fünf Größenordnungen höher sind. Für Temperaturen kleiner als 2 K fallen die Werte von  $x = 0.1$  schließlich wieder. Ebenso wie die stark erhöhte spezifische Wärme und Pauliususzeptibilität ist die außergewöhnlich hohe thermische Ausdehnung bei tiefen Temperaturen typisch für Schwer-Fermion-Systeme und, wie wir in den folgenden Kapiteln sehen werden, ein deutlicher Hinweis auf die Nähe eines QKP.

In Abbildung 3.2 und 3.3 sind die  $4f$ -Beiträge der linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten entlang der orthorhombischen Kristallachsen von  $x = 0.1$  und  $x = 0.15$  abgebildet. Um den Tieftemperaturbereich besser darzustellen, wurde eine halblogarithmische Auftragung gewählt. Die Anisotropie der Gitterparameter drückt sich in der anisotropen thermischen Ausdehnung der einzelnen Achsen aus. Von hohen Temperaturen kommend erscheint bei  $T_m \approx 70$  K wieder die bereits erwähnte Anomalie des strukturellen Phasenübergangs [72, 73]. Wegen seiner extrem hohen Druckabhängigkeit und des hohen Phononenuntergrunds ist der Übergang in der spezifischen Wärme nicht erkennbar.

Beide Konzentrationen zeigen bei ca. 40 K in  $\alpha_a$  und  $\alpha_b$  eine starke Erhöhung, während in  $\alpha_c$  ein Minimum zu sehen ist. Diese Signatur deutet auf die Kristallfeldaufspaltung des Ce<sup>3+</sup>-Zustands hin. Im Temperaturbereich unterhalb von 20 K, dort wo sich der Schwer-Fermion-Zustand ausbildet, weisen dagegen die Messungen entlang der  $b$ - und  $c$ -Achse erhöhte Werte auf. In  $\alpha_c$  bildet sich sogar ein ausgeprägtes Maximum bei ca. 2 K aus. Die thermische Ausdehnung entlang der  $a$ -Achse ist in diesem Temperaturbereich vom Betrag her deutlich kleiner und negativ.

An der kritischen Konzentration  $x_c = 0.1$  zeigt  $\alpha$  für alle drei orthorhombischen Achsen einen nahezu linearen Abfall gegen Null mit erstaunlich großen Absolutwerten bei sehr tiefen Temperaturen. Für  $x = 0.15$  dagegen tritt bei tiefen Temperaturen der erwartete Phasenübergang in eine antiferromagnetisch geordnete Phase ein. Die Bestimmung der Übergangstemperatur, mittels einer Volumen erhaltenden Konstruktion, ergibt einen Wert von  $T_N \approx 89 \pm 3$  mK. Dieser Wert passt gut im Vergleich zu früheren Messungen der spezifischen Wärme ( $T_N \approx 88$  mK) [107] und der Suszeptibilität ( $T_N \approx 86$  mK) [108]. Überraschend ist, dass  $\alpha_b$  und  $\alpha_c$  am Phasenübergang nicht den erwarteten Vorzeichenwechsel zeigen. Allenfalls  $\alpha_a$  wechselt das Vorzeichen und nimmt reduzierte positive Werte an. Alle drei Achsen zeigen sehr kleine Absolutwerte nach dem Phasenübergang und gehen für  $T \rightarrow 0$  gegen Null.

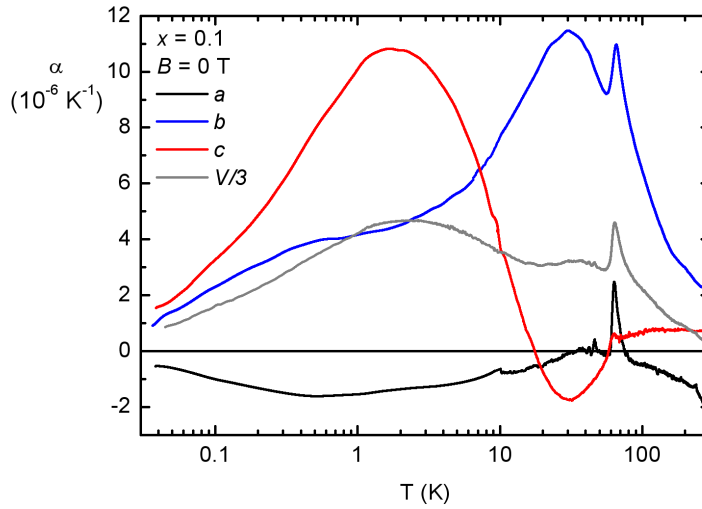


Abbildung 3.2:  $4f$ -Beitrag der thermischen Ausdehnung von  $x = 0.1$  für  $L \parallel a, b$  und  $c$  über der Temperatur von 0.04 K bis 300 K im Nullfeld in halblogarithmischer Darstellung. In grau die Volumenausdehnung  $\alpha_V/3$ . Die Daten oberhalb von  $T = 10$  K stammen von K. Grube [72].

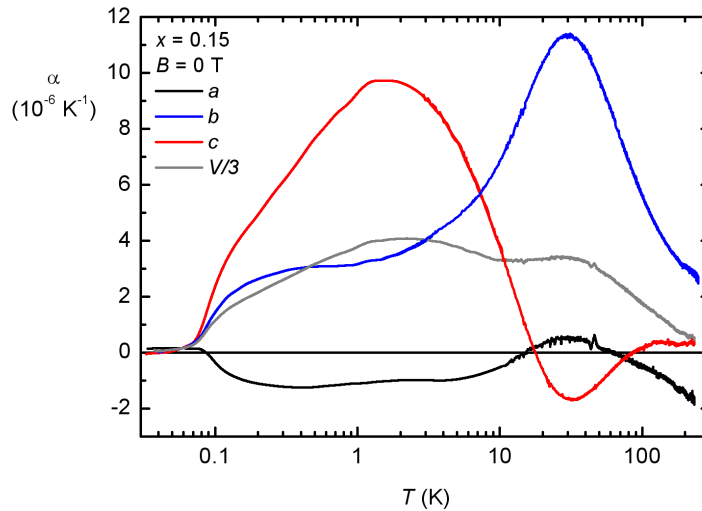


Abbildung 3.3:  $4f$ -Beitrag der thermischen Ausdehnung von  $x = 0.15$  für  $L \parallel a, b$  und  $c$  über der Temperatur von 0.04 K bis 250 K im Nullfeld in halblogarithmischer Darstellung. In grau die Volumenausdehnung  $\alpha_V/3$ . Die Daten oberhalb von  $T = 10$  K wurden in Zusammenarbeit mit F. Hardy [103] ermittelt.

### 3.1.1 Tieftemperaturverhalten der Volumenausdehnung $\alpha_V$

Abbildung 3.4 fasst unsere Messungen der thermischen Volumenausdehnung mit den verfügbaren Literaturdaten zusammen. Um die Abweichung vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten zu verdeutlichen, haben wir  $\alpha_V/T$  über  $T$  aufgetragen. Der Übergang zur antiferromagnetischen Ordnung ist für  $x = 0.5$  als scharfer Sprung gut erkennbar. Mit fallendem Goldgehalt wird er zu kleineren Temperaturen verschoben. Dabei scheint der Übergang etwas breiter zu werden ( $\Delta T_N/T_N$  nimmt zu), was möglicherweise auf eine erhöhte Sensitivität der magnetischen Wechselwirkung für Probeninhomogenitäten zurückzuführen ist. Andererseits schließen Röntgenstrukturuntersuchungen [70] und Neutronenstreuexperimente, in welchen breite Reflexe zu beobachten sind [109], solche Inhomogenitäten in allen hier gemessenen Proben weitgehend aus.

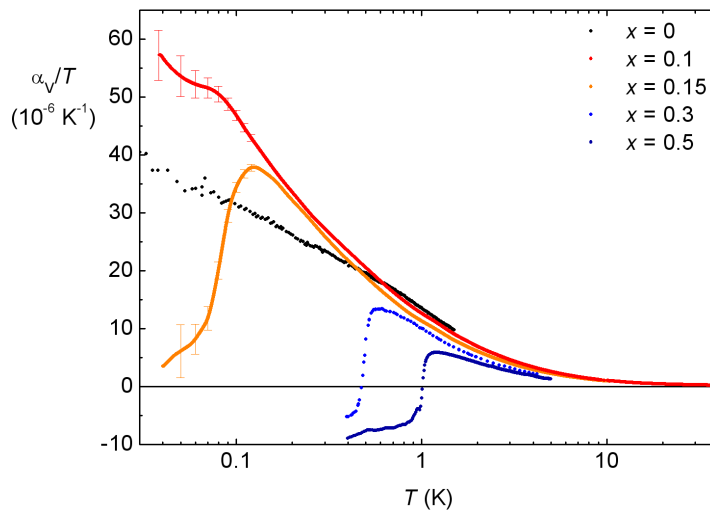


Abbildung 3.4: Thermische Ausdehnung  $\alpha_V/T$  für die Konzentrationen  $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3$  und  $0.5$  [72, 91, 92, 110, 111] in halblogarithmischer Darstellung im Temperaturbereich  $0.03 \text{ K} < T < 40 \text{ K}$ .

Für eine FL erwartet man für tiefe Temperaturen:

$$\frac{\alpha_V}{T} = \frac{\partial \gamma}{\partial p} \approx \text{const.}$$

Alle  $\alpha_V/T$  Kurven steigen mit abnehmender Temperatur an. Während  $\alpha_V/T$  für  $x = 0.5$  und  $x = 0.3$  an  $T_N$  das Vorzeichen wechselt, scheinen die  $\alpha_V/T$ -Werte für  $x = 0.15$  gegen Null zu gehen, und selbst in diesem Fall erreicht  $\alpha_V/T$  keinen konstanten Wert. Für  $x_c = 0.1$  und  $x = 0$  hält der Anstieg unvermindert an, wobei  $x_c = 0.1$  die stärkste Divergenz zeigt.



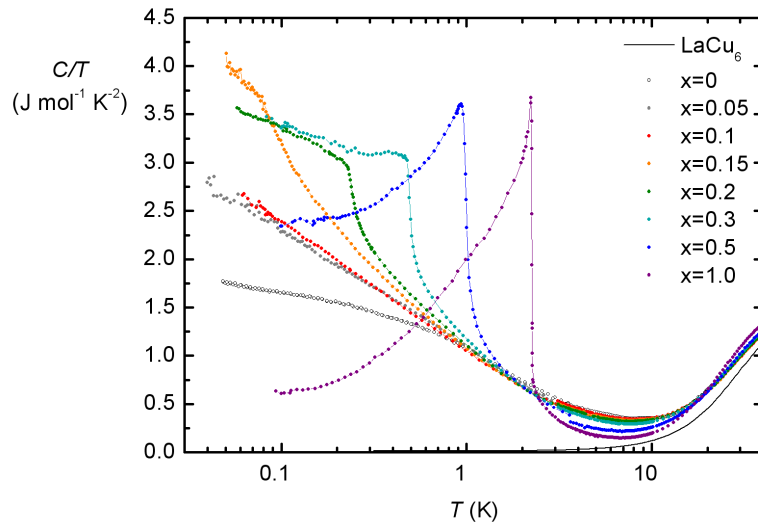


Abbildung 3.5: Die spezifische Wärme  $C/T$  aller gemessenen  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  Konzentrationen und  $\text{LaCu}_6$  in halblogarithmischer Darstellung [75, 76, 81, 107, 112–114].

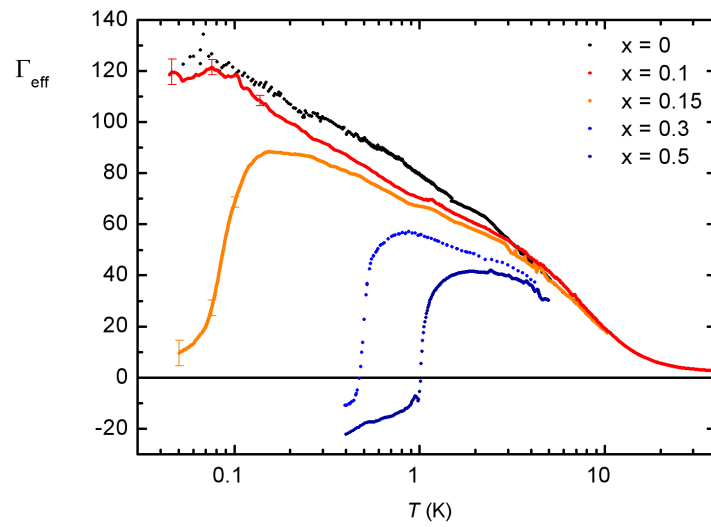


Abbildung 3.6: Grüneisenparameter  $\Gamma_{\text{eff}}$  in halblogarithmischer Darstellung.

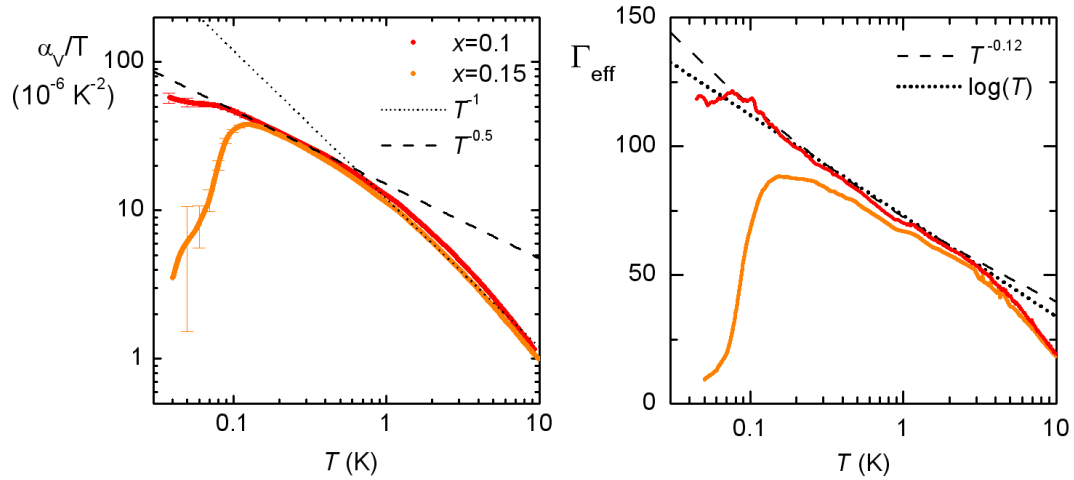


Abbildung 3.7: *Links:*  $\alpha_V/T$  für  $x = 0.1$  und  $0.15$  in doppellogarithmischer Darstellung. Die gepunktete Linie entspricht einer  $T^{-1}$ -Abhängigkeit, die gestrichelte Linie einem  $T^{-0.5}$ -Verlauf. *Rechts:* Grüneisenparameter  $\Gamma_{eff}$  mit den entsprechenden Anpassungen  $\log(T)$  und  $T^{-y}$  mit  $y = -0.12$ .

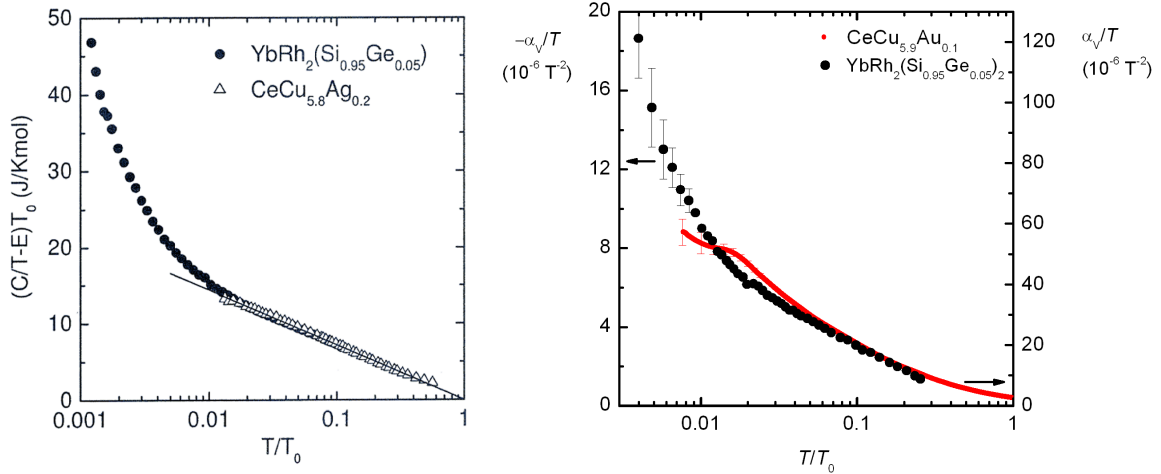


Abbildung 3.8: Vergleich von  $YbRh_2(Si_{0.95},Ge_{0.05})_2$  [19] und  $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$  über der reduzierten Temperaturskala  $T/T_0$  mit entsprechend  $T_0 = 23.3$  K und  $5$  K. Links ist die spezifische Wärme  $C/T$ , rechts der thermische Ausdehnungskoeffizient  $\alpha_V/T$  aufgetragen.

Der in Abbildung 3.5 dargestellte spezifische Wärmekoeffizient  $C/T$  zeigt ein analoges Verhalten mit dem Unterschied, dass hier die Messung des  $x = 0.15$  Kristalls die höchsten Werte ergibt. Um die Entstehung des Schwer-Fermion-Zustands besser verfolgen zu können, wurde in dieser Arbeit die bestehenden spezifischen Wärmemessungen zu höheren Temperaturen erweitert. Alle Daten oberhalb 3 K sind Messungen, die während dieser Arbeit in einem konventionellen  $^4\text{He}$ -Kryostaten (PPMS der Firma Quantum Design), entstanden sind. Daten unterhalb von 3 K sind Diplom- bzw. Doktorarbeiten [75, 76, 81, 107, 112–114] entnommen. Auffällig ist, dass sich alle  $C/T$ -Kurven an zwei Stellen im Diagramm schneiden, bei  $T \approx 20$  K und 2 K. Vollhardt et al. [115, 116] konnten zeigen, dass das Auftreten solcher isosbestischen Punkte auf die Erhaltung einer Phase in einem bestimmten Dotierungsbereich hinweist. Ein in unmittelbarer Nähe liegender konzentrationsabhängiger Phasenübergang zweiter Ordnung kann auch ein Grund für einen isosbestischen Punkt sein.

Die thermische Ausdehnung in Verbindung mit der spezifischen Wärme erlaubt eine Berechnung des dimensionslosen effektiven Grüneisenparameters

$$\Gamma_{eff} = \frac{V_m \alpha_V}{\kappa C_p}.$$

$\alpha_V/T$  von  $x = 0.1$  divergiert deutlich stärker als die logarithmische Abhängigkeit von  $C/T$ , d.h. wir erhalten einen nicht konstanten Grüneisenparameter, siehe Abbildung 3.6. Der Grüneisenparameter ist für alle Konzentrationen im gesamten Temperaturbereich bis zu  $T_N$  positiv und steigt bei Einsetzen des Schwer-Fermion-Zustandes, ab ca. 20 K, mit fallender Temperatur bis zu extrem hohen Werten an. Die Kurven folgen für hohe Temperaturen der gleichen Gesetzmäßigkeit und haben die gleichen Werte. Erst zu tiefen Temperaturen, wenn der Phasenübergang zur antiferromagnetischen Ordnung eintritt, trennen sich die Kurven. Genauso wie für  $\alpha_V/T$  zeigt  $x = 0.1$  die stärkste Divergenz in  $\Gamma_{eff}$ . Aus der Divergenz des Grüneisenparameter resultiert, dass eine charakteristische Energie  $E^*$  wegen  $\Gamma_{eff} = (1/E^*) \cdot (\partial E^*/\partial \ln V)$  gegen Null strebt, wie in der Nähe eines QKP erwartet wird, siehe auch Gleichung 1.4 in Kapitel 1.1.3.

Es soll überprüft werden, ob das itinerante SDW-Szenario mit den Vorhersagen für die thermische Ausdehnung und den Grüneisenparameter auf unsere Daten angewendet werden kann. Für tiefe Temperaturen werden für das zwei- bzw. dreidimensionale SDW-Modell die folgenden Abhängigkeiten erwartet [17], siehe auch Abschnitt 1.2:

$$\frac{\alpha_V}{T}(d=2) \sim \frac{\log \log \frac{1}{T}}{T} \quad \text{und} \quad \frac{\alpha_V}{T}(d=3) \sim T^{-1/2}$$

Abbildung 3.7 zeigt dazu die Verläufe von  $\alpha_V/T$  (links im Bild) und  $\Gamma_{eff}$  (rechts) für  $x = 0.1$  und 0.15. Für  $\alpha_V/T$  wurde eine doppellogarithmische Auftragung gewählt. Die Divergenz von  $\alpha_V/T$  kann für  $T > 1$  K durch eine  $1/T$ -Kurve (gepunktete Linie in Abbildung 3.7) beschrieben werden. Zu tiefen Temperaturen zeigen die Konzentrationen

ein schwächeres Verhalten als  $1/T$ , die Verläufe können eher durch  $T^{-0.5}$  (gestrichelte Linie) angenähert werden. Zu sehr tiefen Temperaturen flacht  $\alpha_V/T$  jedoch ab und divergiert schwächer als  $T^{-0.5}$ , möglicherweise aufgrund Ungenauigkeiten in der Temperaturmessung, siehe Kapitel 2.1.6. Entweder hat die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  noch nicht den QKP erreicht, oder aber es liegt ein dimensionaler Übergang mit fallender Temperatur von 2D zu 3D vor. Letztere Vermutung wird aber durch die Neutronenstreuungsmessungen ausgeräumt. Für den Grüneisenparameter ergibt sich ein ähnliches Bild. Die SDW-Theorie sagt ein  $1/T$ -Verhalten mit logarithmischen Korrekturen voraus. Dagegen beobachten wir, dass in  $x_c = 0.1$  eher einfach logarithmisches Verhalten realisiert wird. Eine Anpassung von  $\Gamma_{eff}$  mit einem gebrochenzahligen Exponenten ergibt einen davon stark abweichenden Wert von -0.12.

Eine Substanz, die zu sehr tiefen Temperaturen das lokale Bild zu bestätigen scheint und für  $0.3\text{ K} < T < 3\text{ K}$  eine logarithmische Abhängigkeit des spezifischen Wärmekoeffizienten zeigt, ist das Schwer-Fermion-System YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>,Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> [19]. Anhand einer Studie an Ce-basierten SFS, die alle eine logarithmische Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen aufwiesen, konnten Sereni *et al.* [117] zeigen, dass ein quantitativer Vergleich zwischen diesen Systemen über eine reduzierte Temperaturskala  $T/T_0$  möglich ist. Unter der Voraussetzung, dass  $T_0$  der Energieskala des Kondo-Effekts  $T_K$  entspricht, können die spezifischen Wärmedaten durch ein Skalierungsgesetz der Form  $(C/T - E)T_0$  mit einem Faktor  $E$  auf einander abgebildet werden. Diese Skalierung wurde für YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>,Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> im Vergleich zu CeCu<sub>5.8</sub>Ag<sub>0.2</sub> vorgenommen, mit  $T_K = 23.3\text{ K}$  für die Yb-Substanz, siehe Abbildung 3.8 links. Wegen der Übereinstimmung von  $C/T \approx \log T/T_0$  über  $T/T_0$  ist in Abbildung 3.8 im Vergleich dazu ebenfalls  $\alpha_V/T$  über  $T/T_0$  aufgetragen, mit  $T_K = 5\text{ K}$  für CeCu<sub>5.9</sub>Au<sub>0.1</sub>. Im Vergleich zu der Yb-basierten Substanz zeigt sich, dass  $x = 0.1$  im Temperaturbereich für  $T/T_0 > 0.02$  stärker divergiert, wohingegen YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>,Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> zu tiefen Temperaturen  $T/T_0 < 0.02$  deutlich stärker divergiert.

### 3.1.2 Volumenabhängigkeit und Vorzeichenwechsel in $\alpha_V$

Für höhere Konzentrationen wechseln  $\alpha_V/T$  und  $\Gamma_{eff}$  ihr Vorzeichen bei Eintritt in die magnetische Phase. Mit abnehmender Konzentration ändert sich die Form der  $\Gamma_{eff}$ -Kurven. Für  $x = 0.5$  divergiert  $\Gamma_{eff}$  im Bereich  $T < T_N$  zu negativen Werten. Der Grüneisenparameter von  $x = 0.3$  zeigt bereits einen verringerten negativen Beitrag. Für  $x = 0.15$  tritt bei  $T = 89\text{ mK}$  der Phasenübergang ein. Dabei läuft  $\Gamma_{eff}$  ohne einen Vorzeichenwechsel gegen Null. Die genaue Position des Vorzeichenwechsels kann durch eine Betrachtung der Entropie ermittelt werden. Trägt man die Entropie  $S$  über dem jeweiligen Kontrollparameter  $\delta$  auf, der das System durch einen QKP treibt, ist ein Maximum der Entropie genau über dem kritischen Wert  $\delta_c$  zu erwarten.

Wir wollen prüfen, ob der Vorzeichenwechsel auch in  $C/T(V, T = const.)$  sichtbar ist. Da  $C/T = \partial S / \partial T$  stets größer Null ist, wird das Vorzeichen der Steigung von  $C/T(V)$  durch die Ableitung von  $S$  nach dem Volumen gegeben. In Abbildung 3.9 sind alle verfügbaren

Daten der spezifischen Wärme für eine feste Temperatur  $T = 0.1$  K zusammengefasst. Es existieren Messungen an verschiedenen Konzentrationen bei  $p = 0$  sowie für einzelne Konzentrationen auch Messungen unter hydrostatischem Druck. Für kleine Konzentrationen liegen die Messpunkte aufeinander, erst für Dotierungen mit  $x > 0.3$  fallen die Messungen unter Druck nicht mehr mit den Messungen von verschiedenen  $x$  bei  $p = 0$  zusammen. Es gilt somit für die höheren Au-Konzentrationen:

$$\frac{C}{T}(V(x)) \neq \frac{C}{T}(V(p))$$

d.h. die Kontrollparameter Druck und Konzentration führen bei gleichem Volumen zu unterschiedlicher spezifischer Wärme. Dieser Befund spiegelt sich auch in der Volumenabhängigkeit der Néel-Temperatur wider,  $T_N(V(x)) \neq T_N(V(p))$  für höhere Dotierungen, wie in Kapitel 3.1.4 in Abbildung 3.16 zu sehen sein wird. Die Diskrepanz liegt an der unterschiedlichen Änderung der Gitterkonstante, bei Variation von hydrostatischem Druck und Au-Konzentration.

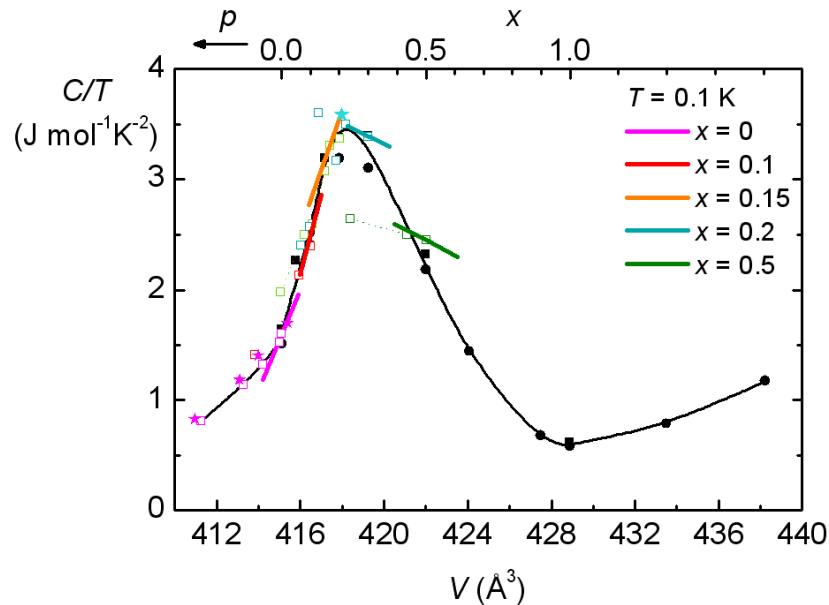


Abbildung 3.9:  $C/T(V)$  für  $T = 0.1$  K über dem Elementarzellvolumen  $V$ . Aufgetragen sind Messungen bei  $p \approx 0$  (schwarze Punkte), Messungen unter Druck (farbige offene Quadrate) und die Steigung von  $S$  aus der thermischen Ausdehnung (farbige Linien). Zur besseren Orientierung ist am oberen Bildrand die Konzentration  $x$  und die Richtung des Drucks  $p$  wiedergegeben [118].

A. de Visser hat für  $\text{CeCu}_6$  gezeigt, dass im Zustand des Kondo-Gitters der folgende

Zusammenhang gilt [110]:

$$\Gamma_{eff} \approx \left. \frac{\partial(C/T)}{\partial V} \right|_T \quad \text{für } \frac{C}{T}(T \rightarrow 0)$$

Im Kondo-Modell kann über den elektronischen Anteil von  $\Gamma_{eff}$  die Druckabhängigkeit der Kondo-Temperatur  $T_K$  berechnet werden, da  $\gamma \approx 0.68\text{K}/T_K$  ist [119]. Mit Hilfe der thermischen Ausdehnung können wir nun die Steigungen von  $\Gamma_{eff}$  aus  $\alpha/C$  mit  $\frac{\partial(C/T)}{\partial V}$  vergleichen. Trotz dieser einfachen Näherung passen die Steigungen gut zum Verlauf von  $C/T$  bis ca.  $x = 0.3$ , siehe Abbildung 3.9. Somit ist diese Kurve eine Annäherung an den Verlauf der Entropie  $S$  und bestätigt die Konsistenz der Daten aus der thermischen Ausdehnung zu den  $C/T$ -Messungen.

Die Daten deuten auf ein relativ breites Maximum von  $S(V)$ , das zu größeren Volumina flacher abfällt und zu hohen Volumina leicht ansteigt. Erstaunlich ist, dass die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  im Anstieg der Kurve liegt und sich entgegen der Erwartung nicht am Maximum befindet. Der eigentliche Vorzeichenwechsel und damit der QKP scheinen zu höheren  $x$  verschoben. Es wurde erwartet, dass das Maximum für diesen Temperaturbereich schon relativ scharf definiert ist, jedoch zeigt sich eine gewisse Breite. Die Verrundung von  $C/T$  bei  $x \geq 0.1$  könnte durch Verunreinigungen oder Probeninhomogenitäten verursacht sein. Eine Auftragung der Daten bei noch tieferen Temperaturen würde das Maximum, das sich in dieser Kurve bei  $0.15 < x < 0.2$  befindet, eher zur Konzentration  $x = 0.15$  verschieben, da  $\alpha \sim \partial S/\partial V$  gegen Null geht, siehe Abbildung 3.4.

Aufgrund der mit abnehmenden  $x$  ebenfalls abnehmenden negativen Anteile des Phasenüberganges in  $\alpha_V/T$  und  $\Gamma_{eff}$ , könnte auch ein unbekannter, divergierender Untergrund eine Ursache für das verschobene Maximum in  $C/T(V)$  sein. Dafür würde der fehlende Vorzeichenwechsel in  $x = 0.15$  sprechen. Ausgelöst werden könnte dieser Untergrund durch eine weitere Energieskala, die in der Nähe von  $x_c$  gegen Null geht.

### 3.1.3 Anisotropie der Tieftemperaturdaten $\alpha_i$

Die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha_i$  dieser Arbeit und bisherige Messungen für  $0 \leq x \leq 0.5$  [72, 91, 92, 110, 111, 120] sind in Abbildung 3.10 dargestellt. Die in dieser Arbeit ermittelten Daten fügen sich nahtlos in die früheren Messungen ein, die in Abbildung 1.16 gezeigt wurden. Unsere Daten für  $x = 0.1$  passen innerhalb von ca. 10% zu den Daten von A. de Visser *et al.* Die linearen Ausdehnungskoeffizienten sind im ganzen Temperaturbereich stark anisotrop. Zusätzlich ändert sich für  $x = 0.3$  und  $0.5$  die Anisotropie unterhalb von  $T_N$  und die Kurven zeigen eine veränderte Form.

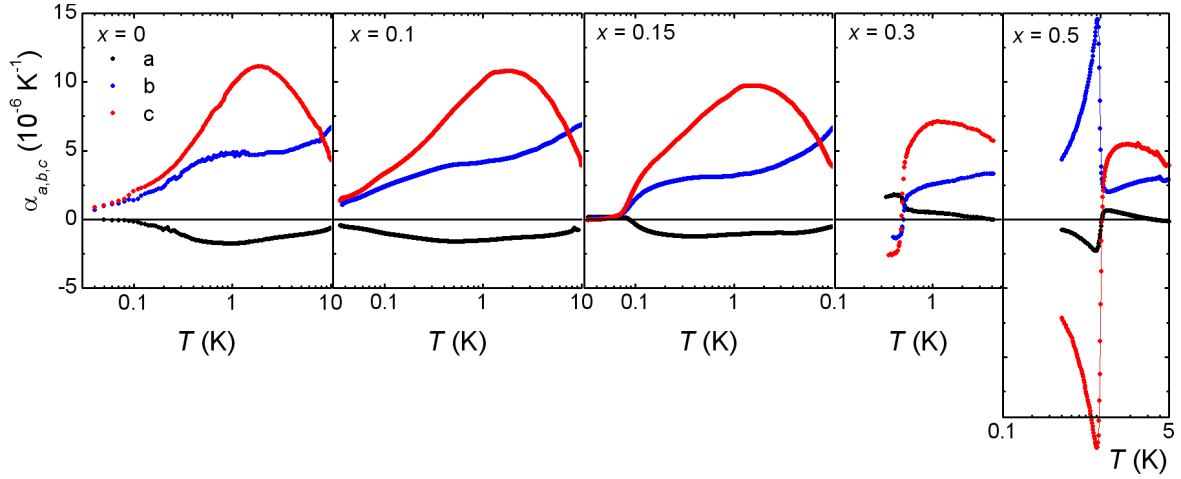


Abbildung 3.10: Vergleich der linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten aller aus der Literatur bekannten  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  Konzentrationen  $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$  und  $1$  [72, 91, 92, 110, 111, 120] mit den Daten aus dieser Arbeit.

### Uniaxiale Druckabhängigkeit von $T_N$

Die uniaxialen Druckabhängigkeiten von  $T_N$  lassen sich aus den beobachteten Diskontinuitäten  $\Delta\alpha_i$  mit  $i = a, b, c$  und  $\Delta C$  am Phasenübergang mit Hilfe der Ehrenfestrelation bestimmen:

$$\frac{dT_N}{dp_i} = V_m T_N \cdot \left. \frac{\Delta\alpha_i}{\Delta C} \right|_{T=T_N}.$$

In Tabelle 3.1 sind die Werte der ermittelten Sprunghöhen und die uniaxialen Druckabhängigkeiten der jeweiligen Achsen angegeben. Für den hydrostatischen Druckeffekt gilt

$$\frac{dT_N}{dp} = \frac{dT_N}{dp_a} + \frac{dT_N}{dp_b} + \frac{dT_N}{dp_c} = -0.4765 \text{ K/GPa}.$$

Wie in Abbildung 3.11 links zu sehen, fügen sich die uniaxialen Druckeffekte  $dT_N/dp_i$  für  $x = 0.15$  gut in die Messungen früherer uniaxialen Druckabhängigkeiten ein. Im Inset sind die hydrostatischen Druckeffekte  $dT_N/dp$  dargestellt. Auch in diesem Fall passt der Wert zu den Messungen unter hydrostatischem Druck.

### Anisotropie des Schwer-Fermion-Zustandes

Bei  $T \approx 2 \text{ K}$  zeigt sich in den linearen Ausdehnungskoeffizienten aller Konzentrationen in  $\alpha_c$  und etwas schwächer in  $\alpha_b$  ein Maximum. Im Gegensatz dazu sieht man in  $\alpha_a$  ein Minimum. Für zunehmende  $x$  verändert sich in erster Linie nur die Höhe der Anomalie, ihre Lage bei  $T \approx 2 \text{ K}$  bleibt weitgehend unverändert. In dem Maximum entsprechenden Temperaturbereich liegt die Temperatur des Einzelionen Kondo-Effekts  $T_K$  bzw. des Kondo-Gitters  $T_{coh}$ , weshalb vorherige Arbeiten [110] das Maximum mit

	$T_N$ [K]	$\Delta C/T$ [J/mol K <sup>2</sup> ]
	$0.089 \pm 0.003$	$0.5392 \pm 0.1$
	$\Delta\alpha_i/T$ [ $10^{-5}K^{-2}$ ]	$dT_N/dp_i$ [K/GPa]
<i>a</i>	$0.065 \pm 0.01$	0.0072
<i>b</i>	$-1.423 \pm 0.1$	-0.149
<i>c</i>	$-3.196 \pm 0.1$	-0.3347

Tabelle 3.1: Néel-Temperatur  $T_N$ , Sprunghöhen in  $\Delta C/T$  und  $\Delta\alpha_i/T$  sowie die daraus berechneten Druckabhängigkeiten  $dT_N/dp_i$  für  $x = 0.15$ .

dem Kondo-Effekt identifizierten. Die Temperatur  $T_{coh}$  sinkt mit steigendem  $x$  [121]. Im Gegensatz dazu hängt der Einzelionen Kondo-Effekt kaum von der Au-Konzentration ab [58]. Das Maximum kann somit eventuell durch den lokalen Kondo-Effekt erklärt werden.

Die thermische Ausdehnung wird durch die elastischen Eigenschaften des Kristallgitters bestimmt und ist die Antwort des Kristallgitters auf einen inneren Druck  $p_{in}$ , der durch die Gitterschwingungen und das Elektronensystem gegeben ist.

$$\alpha_V = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T} \Big|_p = \kappa_T \cdot \frac{\partial p_{in}}{\partial T} \Big|_V$$

Die linearen thermischen Koeffizienten  $\alpha_i$  werden daher auch durch das anisotrope elastische Verhalten des Gitters beeinflusst. Die thermische Ausdehnung von LaCu<sub>6</sub> und die linearen Kompressibilitäten  $\kappa_i$  von CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> zeigen, dass CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> am härtesten entlang der *a*-Achse und am weichsten entlang der *b*-Achse ist, siehe auch Abbildung 1.10. Um das Verhalten ohne den elastischen Gitterbeitrag sichtbar zu machen, wird die Dehnungsabhängigkeit der Entropie berechnet mit der Dehnung  $\epsilon_i = \Delta L_i/L_i$ :

$$\frac{\partial S}{\partial \epsilon_i} = \sum_j c_{ij} \alpha_j$$

Im Gegensatz zum uniaxialen Druckeffekt, welcher entlang einer Kristallachse stets auch Beiträge der anderen Achsen enthält, geben die Dehnungsabhängigkeiten den Einfluss von Veränderungen jeweils eines einzigen Gitterparameters an, während alle anderen Achsen unverändert bleiben, siehe Abbildung 3.12.

### Dehnungsabhängigkeit des Grüneisenparameters

Für die Berechnung der Dehnungsabhängigkeiten  $dT/d\epsilon_i$  müssen die elastischen Konstanten des Materials bekannt sein. Um das elastische Verhalten von CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> zu



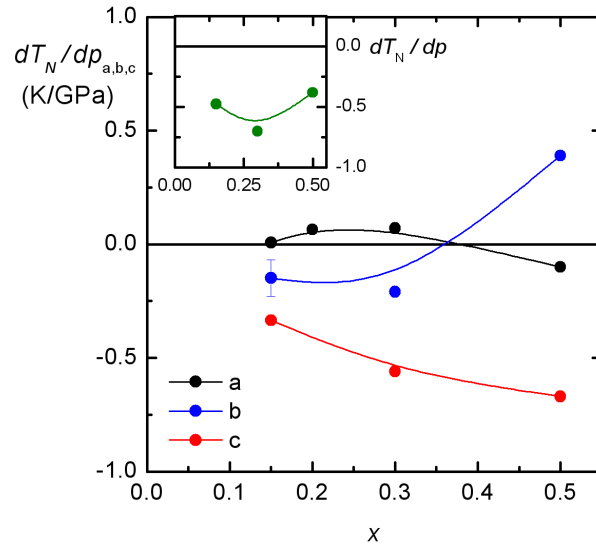


Abbildung 3.11: Uniaxiale Druckabhängigkeiten  $dT_N/dp_i$  für  $i = a, b, c$  über  $x$ . Daten für  $x = 0.2$  aus [78] und  $x \geq 0.3$  [91]. *Inset*: Hydrostatische Druckabhängigkeit  $dT_N/dp$  über  $x$ .

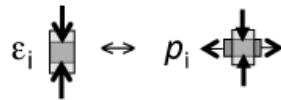


Abbildung 3.12: Vergleich der elastischen Veränderungen des Kristalls bei einer Dehnung  $\epsilon_i$  und unter uniaxialem Druck  $p_i$ . Uniaxialer Druck entlang einer Kristallachse führt stets zu einer Ausdehnung in den anderen Achsen (entsprechend dem Poisson-Verhältnis).

verstehen, sind für die orthorhombische Symmetrie 9 unabhängige elastische Konstanten erforderlich:

$$c_{ij} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{22} & c_{23} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{55} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{pmatrix}$$

Die Module  $c_{11}$ ,  $c_{22}$ ,  $c_{33}$  bezeichnen die Dehnungsmodule und  $c_{44}$ ,  $c_{55}$ ,  $c_{66}$  die Schermodule des Kristalls.  $\text{CeCu}_6$  ist eine der wenigen orthorhombischen Verbindungen, für die alle elastischen Konstanten bekannt sind. Sie wurden mit Hilfe von Ultraschall- und Kom-

pressibilitätsmessungen bestimmt [72, 122]. Da die tiefste Temperatur der Messung von  $\kappa_T$  auf  $T = 10$  K beschränkt war, wurde hier für die weitere Auswertung die Konstanten dieser Temperatur verwendet. Ultraschallmessungen einzelner  $c_{ij}$ , welche zu tieferen Temperaturen gemessen wurden, zeigen, dass der damit entstehende Fehler kleiner als 10 % ist [85, 122]. Für  $0 \leq x \leq 0.5$  ändert sich die Kompressibilität und damit die elastischen Konstanten um weniger als 10 %. Somit können für die einzelnen Achsen des Kristalls die Dehnungsabhängigkeiten berechnet werden:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial T_N}{\partial \varepsilon_a}\right) &= c_{11} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_a}\right) + c_{12} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_b}\right) + c_{13} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_c}\right) \\ \left(\frac{\partial T_N}{\partial \varepsilon_b}\right) &= c_{12} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_a}\right) + c_{22} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_b}\right) + c_{23} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_c}\right) \\ \left(\frac{\partial T_N}{\partial \varepsilon_c}\right) &= c_{13} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_a}\right) + c_{23} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_b}\right) + c_{33} \cdot \left(\frac{\partial T_N}{\partial p_c}\right) \end{aligned}$$

$c_{11}$	$c_{12}$	$c_{13}$	$c_{22}$	$c_{23}$	$c_{33}$
127.4	70.5	87.9	142.1	47	149.3

Tabelle 3.2: Elastizitätskonstanten  $c_{ij}$  von CeCu<sub>6</sub> [72, 122] für  $T = 10$  K in GPa.

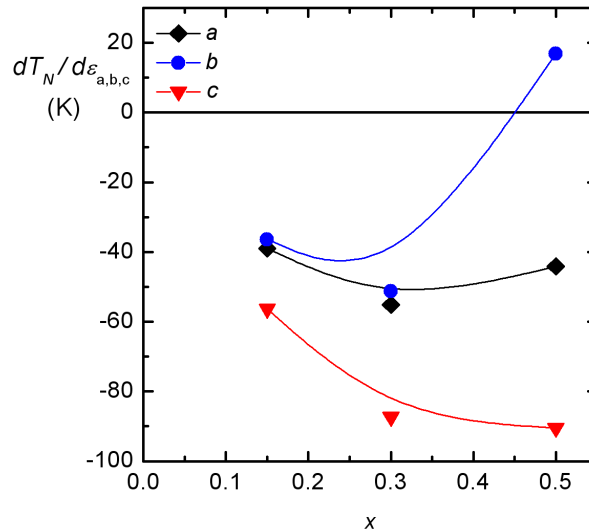


Abbildung 3.13: Dehnungsabhängigkeiten  $dT_N/d\varepsilon_i$  für  $i = a, b, c$  über  $x$ .

Abbildung 3.13 zeigt die errechneten Dehnungsabhängigkeiten  $dT_N/d\varepsilon_i$ . Überraschenderweise zeigen die Dehnungsabhängigkeiten von  $T_N$  ein leicht verändertes Verhalten als die uniaxialen Druckeffekte. Die Druckabhängigkeiten zeigen entlang der  $b$ - und  $c$ -Achse einen ähnlichen Verlauf im Gegensatz zur  $a$ -Richtung, die einen umgekehrten Verlauf aufweist.

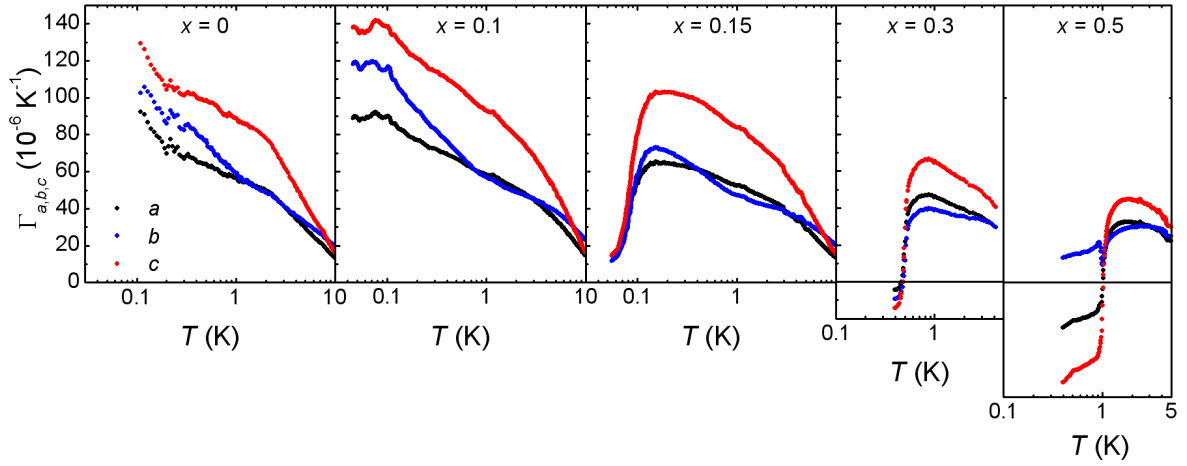


Abbildung 3.14: Vergleich des aus den Dehnungsabhängigkeiten errechnet richtungsabhängige Grüneisenparameter  $\Gamma_i$  für die einzelnen Achsen der Konzentrationen  $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$  und 1.

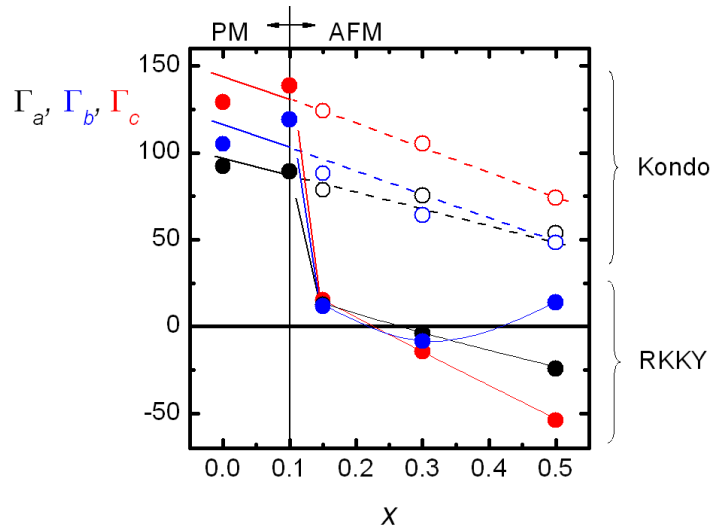


Abbildung 3.15: Dehnungsabhängigkeit des richtungsabhängigen Grüneisenparameter  $\Gamma_i$  von  $x$  für  $T \rightarrow 0$  und  $T = 0.1$  K (Gefüllte Punkte). Offene Punkte extrapoliert für  $T = 3K > T_N$  zu tiefen Temperaturen für  $x \geq 0.15$ . Im Bereich des Kondo-Gitter-Zustands hängt  $E_K$  vergleichsweise isotrop von Dehnungen ab, während in der AFM-Phase um  $x = 0.5$  die RKKY-Wechselwirkung anscheinend zu einem anisotropen Verhalten führt.

Im Vergleich dazu zeigen die Dehnungsabhängigkeiten entlang aller Achsen einen ähnlichen Verlauf. Für  $x = 0.15$  zeigt sich ebenfalls kein unterschiedliches Vorzeichen in  $dT_N/d\epsilon_i$ . Mit zunehmendem  $x$  spalten die  $dT_N/d\epsilon_i$  schließlich bei  $x > 0.3$  auf.  $dT_N/d\epsilon_i$  zeigt eine erhöhte Anisotropie in der magnetischen Ordnung. Um diesem Verhalten weiter auf den Grund zu gehen, lässt sich aus den Dehnungsabhängigkeiten der richtungsabhängige Grüneisenparameter  $\Gamma_i$  mit

$$\frac{d \ln E^*}{d\epsilon_i} \approx \Gamma_i = \sum_j c_{ij} \cdot \frac{\alpha_j}{C_p}$$

berechnen, welcher die Dehnungsabhängigkeiten der charakteristischen Energieskala aufdeckt, siehe Abbildung 3.14. Das Verhalten von  $\alpha_i$  und  $\Gamma_i$  sollte an  $T_N = 0$  das Vorzeichen wechseln, abhängig davon, welche charakteristische Energieskala das System dominiert.

Wie Abbildung 3.14 zeigt, ist das Verhalten aller Achsen für Temperaturen oberhalb der Übergangstemperatur vergleichsweise ähnlich. Für Temperaturen unterhalb von  $T_N$  sieht man eine deutliche Änderung, die Kurven zeigen mit zunehmendem  $x$  anisotropes Verhalten. Wiederum ist bei  $x = 0.15$  direkt an  $T_N = 0$  kein Vorzeichenwechsel zu erkennen. Zur Verdeutlichung tragen wir die Koeffizienten der Grüneisenparameter bei  $T \rightarrow 0$  und  $T = 0.1$  K über  $x$  auf, siehe Abbildung 3.15. Um den isotropen Einfluss des Kondo-Effekts für steigende  $x$  zu untersuchen, wurden Werte von  $\Gamma_i$  bei  $T = 3$  K  $> T_N$  zu tiefen Temperaturen extrapoliert (offene Punkte). Für  $\Gamma(T \rightarrow 0)$  ist für ansteigende  $x$  zu sehen, wie die Koeffizienten  $\Gamma_i$  in der Nähe des QKP stark abfallen. Ein Wechsel der Energieskalen scheint um  $x = 0.15$  zu erfolgen. Zu Beginn der magnetischen Phase zeigen die Achsen ein isotropes Verhalten, welches mit steigendem  $x$  an Anisotropie gewinnt [91].

### 3.1.4 Vergleich zwischen $E_{\text{Kondo}}(V(x))$ mit $E_{\text{Kondo}}(V(p))$

Das Legieren mit Gold erhöht die Gitterparameter  $a$  und  $c$ , während  $b$  leicht sinkt. Hydrostatischer Druck verringert dagegen alle Gitterparameter. Untersucht werden soll, ob diese Unterschiede Auswirkungen auf die Energieskala des Kondo-Gitters  $E_{KG}$  haben. Diese ist verbunden mit der Kohärenztemperatur  $T_{coh}$ , unterhalb derer sich das Kondo-Gitter ausbildet.

Im Zuge des Aufbaus des Experiments (Kapitel 2) wurde die Apparatur mit einem Widerstandsexperiment an CeCu<sub>5.85</sub>Au<sub>0.15</sub> mit  $I \parallel a$  getestet, siehe hierzu Abbildung 3.17. Parallel zur  $b$ -Richtung wurde ein Magnetfeld mit  $B = 1$  und  $2$  T angelegt. Die Daten zeigen bei tiefen Temperaturen den AFM-Übergang bei  $T_N \simeq 89$  mK. Aufgrund des Feldes in der magnetisch harten Kristallachse wird der Antiferromagnetismus nur teilweise unterdrückt. Für höhere Temperaturen ist das Maximum in  $\rho$  bei die Kohärenztemperatur bei  $T_{coh} = 1.2$  K beobachtbar.  $T_{coh}$  kann aus verschiedenen Messungen für unterschiedliche Konzentrationen bzw. unterschiedlichem Druck ermittelt werden. In

Abbildung 3.18 ist  $T_{coh}$  aus Messungen des spezifischen Widerstands  $\rho$  mit  $I \parallel b$  über dem Elementarzellenvolumen  $V$  aufgetragen. Grüne und weiße Punkte bezeichnen druckabhängige Messungen, magenta Quadrate konzentrationsabhängige Messungen bei  $p = 0$ . Unabhängig davon, ob die Kohärenztemperaturen aus Messungen des Widerstands unter Druck oder durch Dotierung ermittelt wurden, fallen alle Messwerte innerhalb des Messfehlers auf eine Linie zusammen.

Erneut ist zu erkennen, dass das Kondo-Gitter eine isotrope Dehnungsabhängigkeit aufweist:  $T_{coh}(V(x)) = T_{coh}(V(p))$ . Letztlich beruht der Zustand des Kondo-Gitters auf dem lokalen Kondo-Effekt, bei dem man eine isotrope Dehnungsabhängigkeit erwartet. Bemerkenswert ist der endliche Wert  $T_{coh}$  für  $x_c = 0.1$ . Dies spricht für eine endliche Energieskala an der kritischen Konzentration  $x_c$  und spricht somit gegen das lokale Szenario.

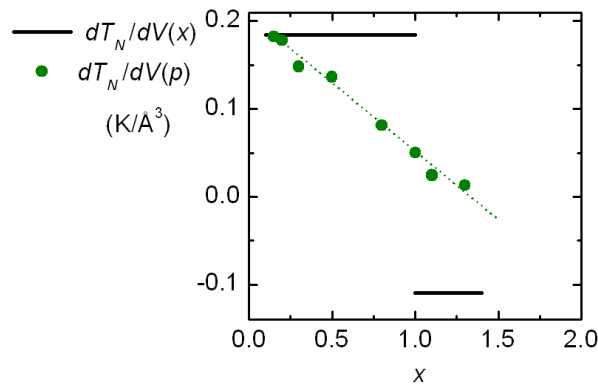


Abbildung 3.16: Aufspaltung zwischen  $dT_N/dV(x)$  und  $dT_N/dV(p)$  aufgrund der zunehmenden Anisotropie.

Die RKKY-Wechselwirkung zwischen verschiedenen magnetischen Momenten hingegen sollte in einer antiferromagnetisch geordneten Phase stark anisotrop auf Dehnungen im Kristall reagieren. Unter der Annahme, dass  $dT_N/dV$  die Volumenabhängigkeit der RKKY-Wechselwirkung wiedergibt, würde man für die Änderung durch Dotieren und hydrostatischen Druck ein unterschiedliches Verhalten, aufgrund der Anisotropie, erwarten. Jedoch für einen Goldgehalt um  $x = 0.1$  gilt  $T_N(V(x)) = T_N(V(p))$  und erst für höhere  $x$  stimmt dieser Zusammenhang nicht mehr, d.h.  $T_N(V(x)) \neq T_N(V(p))$ , siehe Abbildung 3.16. Für  $x = 0.15$  ist die Diskrepanz noch sehr klein, die Substanz sieht im Vergleich zu höheren Konzentrationen noch recht isotrop aus. Hier findet sich eine Übereinstimmung mit dem fehlenden Vorzeichenwechsel bzw. dem zu  $x > 0.1$  verschobenen Maximum in  $C/T(V)$ , siehe Abbildung 3.9.

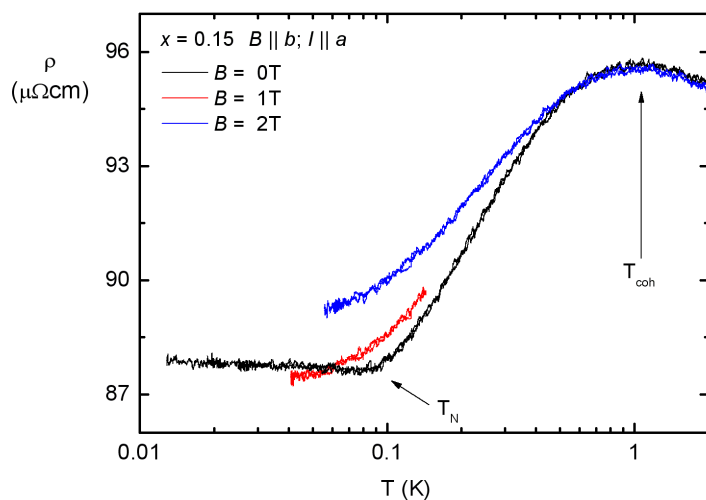


Abbildung 3.17: Spezifischer Widerstand  $\rho$  für  $x = 0.15$  mit  $I \parallel a$ ,  $B \parallel b$ , und  $B = 0, 1$  und  $2$  T.

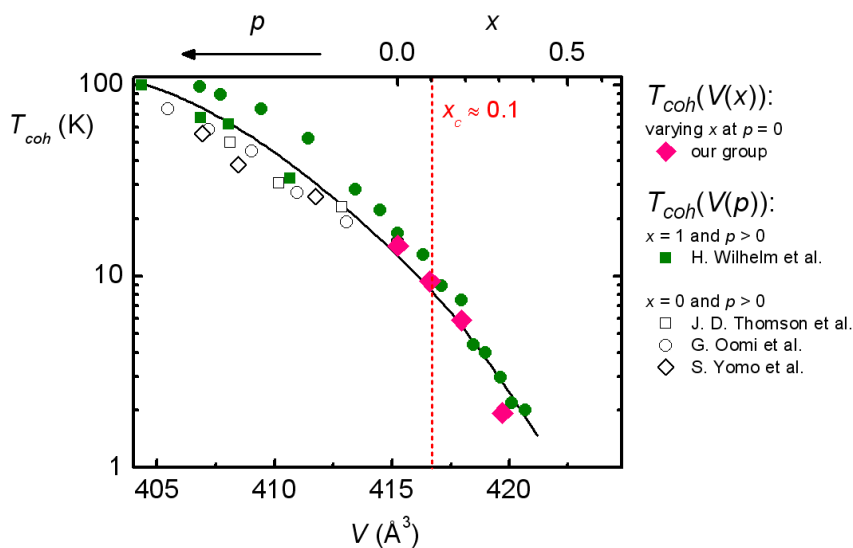


Abbildung 3.18: Kohärenztemperatur  $T_{coh}$  des Kondo-Gitters aus  $\rho_{max}$  mit  $I \parallel b$  für verschiedene  $x$  und unter Druck. Linie dient der übersichtlicheren Darstellung [123–126].

## 3.2 Verhalten im Magnetfeld - Vergleich der Kontrollparameter Druck $p$ und $B$

Neben Druck und Konzentration ist das Magnetfeld ein weiterer Kontrollparameter, dessen Auswirkungen auf  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  in der thermischen Ausdehnung und der Magnetostriktion untersucht werden sollen.

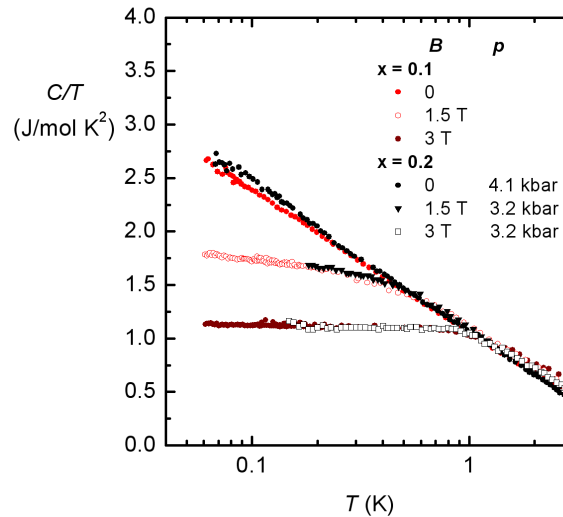


Abbildung 3.19: Spezifische Wärme  $C/T$  für  $x = 0.1$  und  $x = 0.2$  um den kritischen Druck  $3.2 \text{ kbar} < p_c < 4.1 \text{ kbar}$  bei  $B = 0, 1.5$  und  $3 \text{ T}$  [76, 107].

Abbildung 3.19 zeigt die spezifische Wärme  $C/T$  für  $x = 0.1$  und  $x = 0.2$  um den kritischen Druck  $3.2 \text{ kbar} < p_c < 4.1 \text{ kbar}$  bei  $B = 0, 1.5$  und  $3 \text{ T}$  [76, 107]. Das kritische Verhalten beider Substanzen im Nullfeld ist gleich, ebenso das Verhalten im Magnetfeld, wo beide Substanzen bereits FL-Verhalten zeigen. Aus der guten Übereinstimmung bei Nullfeld und  $B > 0 \text{ T}$  folgt über die Maxwellrelationen

$$\left. \frac{\partial^2 M}{\partial T^2} \right|_B = \left. \frac{\partial C_B/T}{\partial B} \right|_T,$$

dass auch die Magnetisierung  $M(T)$  für die beiden Substanzen gleich ist.

### 3.2.1 Thermische Ausdehnung im Magnetfeld

In Abbildung 3.20 ist der Volumenausdehnungskoeffizient  $\alpha_V/T$  für  $x = 0.1$  in Abhängigkeit der Temperatur für verschiedene Felder  $\parallel c$  gezeigt. Das Feld wurde immer parallel zur leichten Achse angelegt, d.h. dass das Dilatometer um  $90^\circ$  gedreht wurde, um die  $a$ - und  $b$ -Achse des Kristalls zu messen. Mit abnehmender Temperatur nimmt  $\alpha_V/T$  im

Nullfeld stark zu und divergiert für  $T \leq 3$  K etwas stärker als logarithmisch, wie schon oben diskutiert wurde.

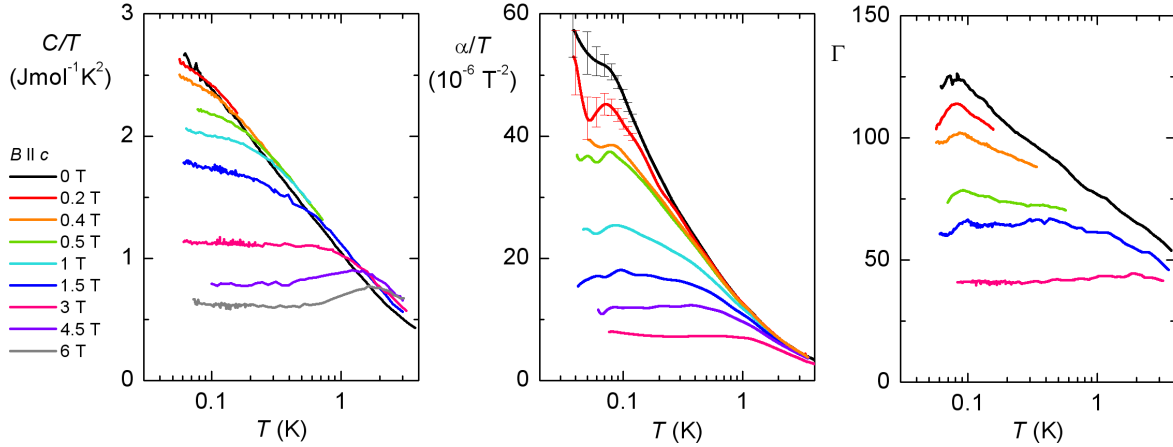


Abbildung 3.20: Vergleich  $C/T$ ,  $\alpha_V/T$  und  $\Gamma_{eff}$  für  $x = 0.1$  im Magnetfeld. Die Feldmessungen der spezifischen Wärme entstammen [75].

Dieses Verhalten ändert sich stark, wenn ein äußeres Magnetfeld von  $B \geq 0.5$  T angelegt wird. Wie auch schon in der spezifischen Wärme (links in Bild 3.20) und für ähnliche Substanzen wie z.B. in  $CeCu_{5.8}Ag_{0.2}$  oder  $YbRh_2(Si_{0.95}Ge_{0.05})_2$  [20] beobachtet, führt ein Anlegen eines äußeren Magnetfeldes zur Unterdrückung des NFL-Verhaltens bis hin zur Wiederherstellung der Fermi-Flüssigkeit. Dies spiegelt sich in einem zunehmend konstant werdenden  $\alpha_V/T$  wider. Auch  $C/T$  zeigt im Magnetfeld zunehmend konstantes Verhalten. Dies hat auch einen konstanten Grüneisenparameter  $\Gamma_{eff}$  zur Folge, siehe Abbildung 3.20, welcher ebenfalls die Unterdrückung des NFL-Verhaltens zeigt.

Für  $x = 0.15$  (Abbildung 3.21) ist die Situation recht ähnlich, allerdings kommt hier eine zusätzliche Feldskala ins Spiel: die Unterdrückung des Antiferromagnetismus. Der Phasenübergang findet im Nullfeld bei  $T_N = 89$  mK statt und die Kurve scheint unterhalb von  $T_N$  für sehr tiefe Temperaturen gegen Null zu gehen. Bei kleinen Feldern wird die Energieskala  $T_N$  mit steigendem Feld unterdrückt. Das kritische Feld für  $x = 0.15$  liegt bei  $B_c \approx 150$  mT [104]. Der Übergang ist stark verbreitert und weist auch hier keinen Vorzeichenwechsel auf.

Wie wir in Kapitel 3.2.3 zeigen werden, ergibt sich für infinitesimale Änderungen der Kontrollparameter eine Vergleichbarkeit von  $p$  und  $B$ :  $\partial S/\partial p \leftrightarrow \partial S/\partial B$ . Dies impliziert, dass analog zu  $\alpha_V(T)$  für  $x_c$  bei  $B_c$  ein Vorzeichenwechsel in  $\alpha(B)$  zu beobachten sein sollte. Die Abhängigkeit der Größe  $a_0/T(B) = \alpha_V(B)/T|_{T \rightarrow 0, const.}$  nach dem Magnetfeld nimmt für  $0.2 \text{ T} \leq B \leq 3 \text{ T}$  im schwächer werdenden Feld zu, siehe Abbildung 3.22. Für  $B \leq 0.3 \text{ T}$  für  $x = 0.15$  fällt  $a_0(B)$  wegen des antiferromagnetischen Phasenübergangs ab. In der spezifischen Wärme wurde eine logarithmische Abhängigkeit für  $C/T = \gamma_0(B)$  für  $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$  beobachtet.



### 3.2 Verhalten im Magnetfeld - Vergleich der Kontrollparameter Druck $p$ und $B$

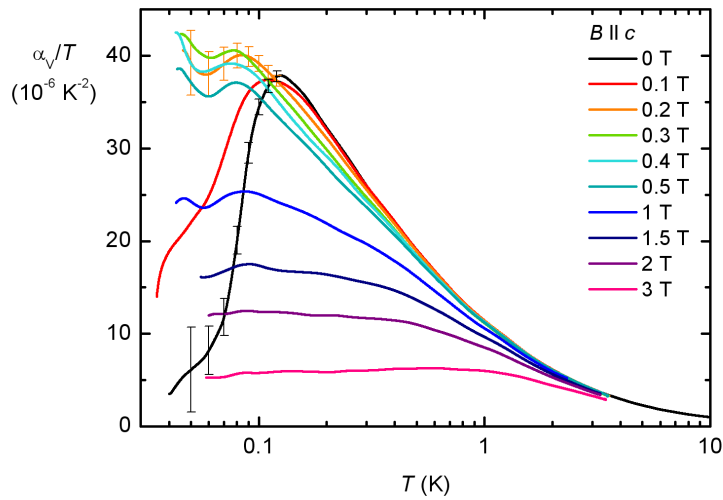


Abbildung 3.21: Thermischer Volumenausdehnungskoeffizient geteilt durch  $T$  von  $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$  über der Temperatur in halblogarithmischer Darstellung für  $B \parallel c$ . Zuerst wird der antiferromagnetische Übergang unterdrückt, danach folgt ein Übergang ins FL-Verhalten.

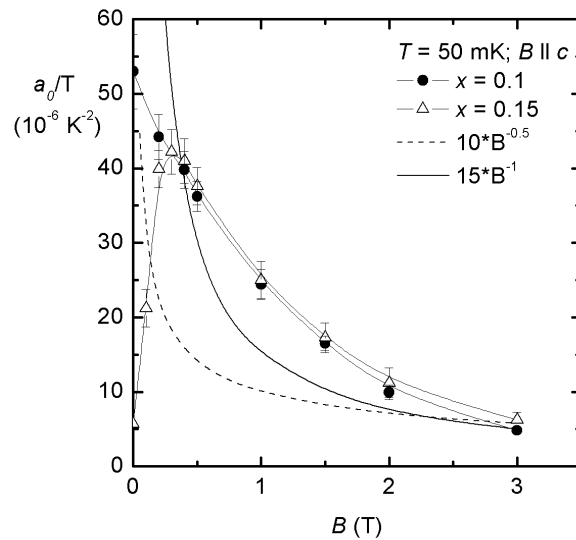


Abbildung 3.22:  $a_0/T(B) = \alpha_V(B)/T|_{T \rightarrow 0}$  bei  $T = 50 \text{ mK}$  für  $x = 0.1$  und  $0.15$  mit  $B \parallel c$ . Die gestrichelte Linie entspricht  $a_0 \sim B^{-0.5}$ , die durchgezogene Linie  $a_0 \sim B^{-1}$ .

Die für einen SDW-QKP im feldinduzierten Fermi-Flüssigkeitsbereich vorhergesagte  $a_0(B)$  - Abhängigkeit sollte im Fall von zwei- bzw. dreidimensionalen AF-Fluktuationen

$$\frac{a_0(B)}{T}(d=2) \sim \frac{1}{B} \quad \text{bzw.} \quad \frac{a_0(B)}{T}(d=3) \sim \frac{1}{\sqrt{B}}$$

sein [17], siehe auch Kapitel 1.2. Die beobachtete Divergenz von  $a_0/T(B)$  weicht von beiden vorhergesagten Verhaltensweisen stark ab. Die flacher verlaufende Divergenz scheint ähnlich wie der Koeffizient der spezifischen Wärme mit einer logarithmischen Abhängigkeit [127].

### 3.2.2 Magnetostriktion

Es wurden isotherme Magnetostruktionsmessungen durchgeführt, um das Verhalten unterhalb von  $T_N$  und am magnetischen quantenkritischen Punkt zu untersuchen. Gewählt wurden für  $x = 0.15$  rund um den Phasenübergang:  $T = 40, 50, 60, 80, 100$  und  $150$  mK. Für  $x = 0.1$  wurden nur Messungen bei  $T = 50, 60$  und  $150$  mK durchgeführt. Die relativen Längenänderungen  $\Delta L_i/L_i$  für  $x = 0.1$  und  $x = 0.15$  für die orthorhombischen Achsen sind in Abbildung 3.23 zu sehen. Das Verhalten ist für beide Konzentrationen sehr ähnlich und anisotrop. Die  $a$ - und  $c$ -Achse zeigen negative Werte mit einem Verhältnis  $\Delta L/L(c) \approx 5 \cdot \Delta L/L(a)$  zu beobachten ist. Die magnetisch leichte Achse zeigt wie erwartet die größte Änderung im Magnetfeld, während die Magnetostriktion entlang der magnetisch härtesten  $b$ -Achse ein positives Vorzeichen mit  $\Delta L/L(b) \approx -2 \cdot \Delta L/L(a)$  hat.

Der Phasenübergang in  $x = 0.15$  ist in  $\Delta L_i/L_i$  nicht klar zu erkennen, daher bilden wir die Ableitung nach dem Feld, hier exemplarisch für Magnetostriktion entlang der  $c$ -Achse in Abbildung 3.24 dargestellt. Der Koeffizient der Magnetostriktion  $\lambda_c(B) = (1/L_c(B)) \cdot (\partial L_c / \partial B)$  zeigt für  $x = 0.15$  einen nichtlinearen Verlauf. Für  $B \rightarrow 0$  ist zu beobachten, wie  $\lambda_c$  nicht gegen Null geht, sondern das Vorzeichen wechselt. Dies ist auf Temperaturinstabilitäten zurückzuführen, die entstehen, da im Abschirmbecher enthaltenes Blei unterhalb von  $B_c = 0.08$  T supraleitend ist.

Besonders bei kleinen Feldern sieht man Abweichungen, die sich als Phasenübergang der Probe identifizieren lassen. Der Phasenübergang ist bei  $40$  mK bis  $60$  mK entlang der magnetisch leichten  $c$ -Achse als Knick erkennbar. An  $T = 150$  mK ist  $\lambda_c$  bereits oberhalb von  $T_N$ . Der Übergang ist zweiter Ordnung und zeigt einen breiten kontinuierlichen Verlauf, es ist somit keine deutlich ausgeprägte Anomalie im Volumen zu sehen. Es ist kein weiterer Hinweis auf eine zusätzliche Energieskala in  $\lambda(B)$  oberhalb von  $B_c$  zu erkennen, wie es z.B. in YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> der Fall ist [49]. Dies spricht gegen eine Interpretation durch das lokale Bild, in welchem ein Sprung in der Fermi-Fläche mit einem Sprung in  $\lambda(B)$  einhergehen könnte.

### 3.2 Verhalten im Magnetfeld - Vergleich der Kontrollparameter Druck $p$ und $B$

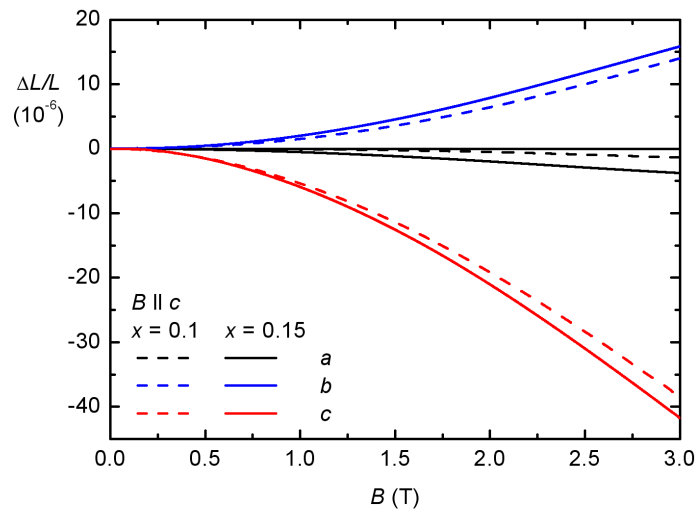


Abbildung 3.23: Die lineare Magnetostraktion  $\Delta L_i/L_i$  für  $x = 0.1$  (gestrichelt) und  $x = 0.15$  (durchgezogene Linie) mit  $B \parallel c$  für  $T = 50$  mK.

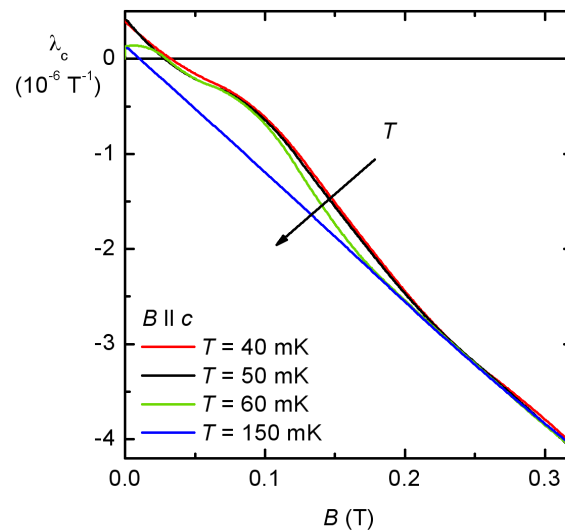


Abbildung 3.24: Der lineare Magnetostruktionskoeffizient  $\lambda_c$  für  $x = 0.15$  mit  $B \parallel c$  und  $T = 40, 50, 60$  und  $150$  mK.

Die Volumenmagnetostriktion  $\Delta V/V \approx \sum_i \Delta L_i/L_i$  von Selten-Erd-Systemen mit instabilen  $4f$ -Momenten im paramagnetischen Zustand hängt meist quadratisch vom Magnetfeld quadratische ab [128].

$$\frac{\Delta V}{V} \sim \frac{B^2}{T + T^*} \quad (3.1)$$

Hier ist  $T^*$  eine charakteristische Temperatur (z.B.  $T_K$ ). Abbildung 3.25 links zeigt die Volumenmagnetostriktion von  $x = 0.1$  und  $0.15$  über  $B^2$  bei  $T = 50$  mK. Die Messdaten folgen dem quadratischen Verhalten oberhalb von  $B_c$  nur bedingt. Abbildung 3.24 rechts zeigt die Volumenmagnetostriktion bei  $T = 150$  mK aufgetragen über dem Quadrat der Magnetisierung. Die Daten für die Magnetisierung stammen von O. Stockert [104] und wurden für  $B = 0 - 2$  T bei ebenfalls  $T = 150$  mK aufgenommen. Die lineare Abhängigkeit

$$\frac{\Delta V}{V} \sim M^2 \quad (3.2)$$

zeigt, dass die Ausrichtung der magnetischen Ce-Momenten durch das angelegte Magnetfeld für die Magnetostriktion verantwortlich sind. Die Kurven zeigen das erwartete proportionale Verhalten sehr gut, was für eine Konsistenz der Daten zueinander spricht und die Magnetostriktion weitgehend durch der Ausrichtung der magnetischen Momente im Feld erklären kann.

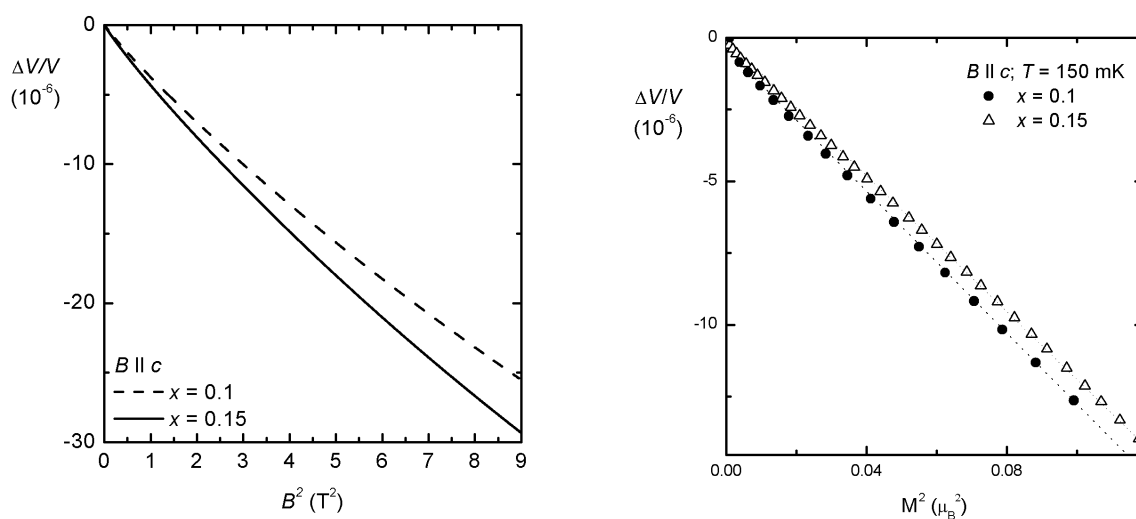
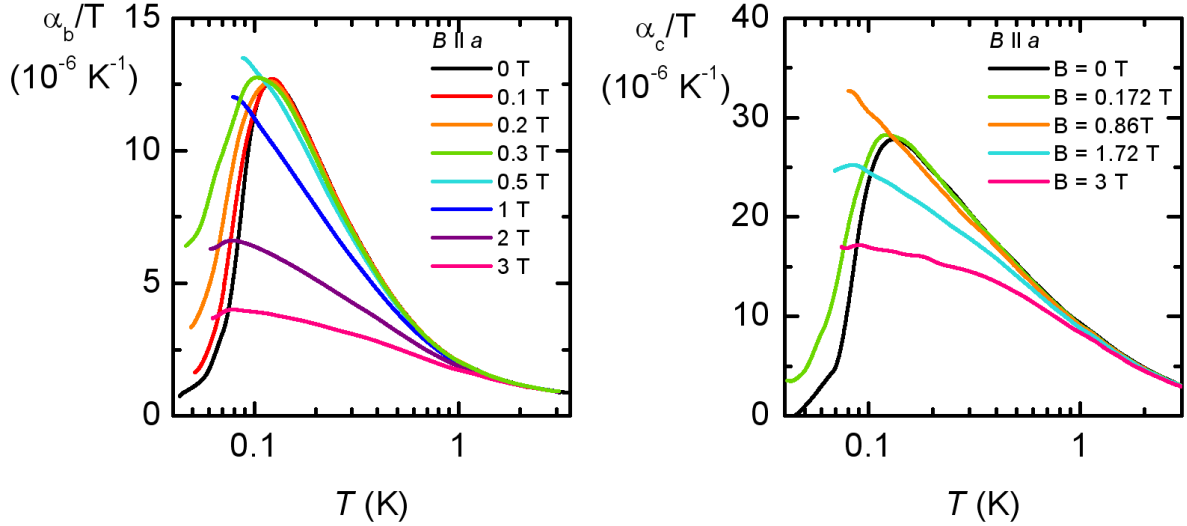


Abbildung 3.25: *Links*: Volumenmagnetostriktion  $\Delta V/V$  über  $B^2$  für  $B \parallel c$  und  $T = 50$  mK. *Rechts*: Relative Volumenänderung  $\Delta V/V$  für  $x = 0.1$  und  $x = 0.15$  für  $B \parallel c$  und  $T = 150$  mK über der Magnetisierung [104] im Quadrat.

**Magnetfeld  $B \parallel a$** 

Bisher wurde das Magnetfeld entlang der magnetisch leichten  $c$ -Achse angelegt. Zusätzlich wurde für  $x = 0.15$  die thermische Ausdehnung mit  $B \parallel a$  für die Achsen  $b$  und  $c$  gemessen, um die Anisotropie der Feldrichtungen zu betrachten, siehe Abbildung 3.26.  $\alpha_b$  (links im Bild) zeigt die Unterdrückung des AFM erst mit deutlich höherem Feld, das kritische Feld der  $a$ -Achse  $B_a$  liegt bei  $B_a \approx 0.25$  T. Für die  $c$ -Achse liegt das kritische Feld  $B_c$  bei  $B_c \approx 0.15$  T. Bei  $B_a$  ist NFL-Verhalten zu beobachten. Mit steigendem Feld divergiert  $\alpha_V/T$  weniger stark. Allerdings sind 3 T entlang dieser Feldrichtung nicht genug, um FL-Verhalten zurückzugewinnen,  $\alpha/T \approx const$  wird noch nicht erreicht.


 Abbildung 3.26:  $\alpha_i/T(T)$  für  $B \parallel a$ . Links:  $b$ -Achse. Rechts:  $c$ -Achse.

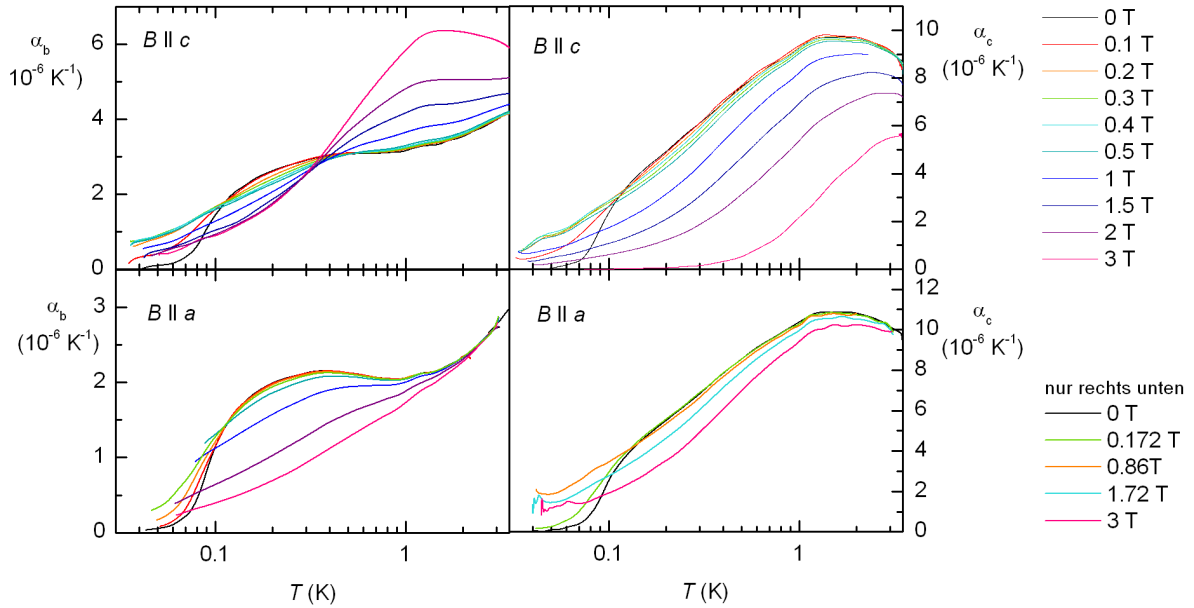
H.G. Schlager [112] schlug ein skaliertes Phasendiagramm für  $x = 0.3$  und  $0.5$  vor, in dem  $B/T_N$  über  $T/T_N$  aufgetragen ist. Für  $B \parallel a$  haben wir die Felder so gewählt, dass die Felder die gleiche Wirkung auf die AFM-Ordnung erzielen und somit die thermischen Ausdehnungsmessungen für  $B \parallel a$  und  $B \parallel c$  miteinander verglichen werden können. Es gilt für die kritischen Felder  $B_a$  und  $B_c$  entlang  $a$  und  $c$ -Achse:

$$B \parallel a = \frac{B_a}{B_c} \cdot B \parallel c$$

Aus diesem Grund wurden für die  $c$ -Achse (rechts im Abbildung 3.26 und 3.27) andere Feldwerte angelegt. Tabelle 3.3 listet die errechneten Wertepaare für den Vergleich der  $c$ -Achse in  $B \parallel a$  und  $c$ .

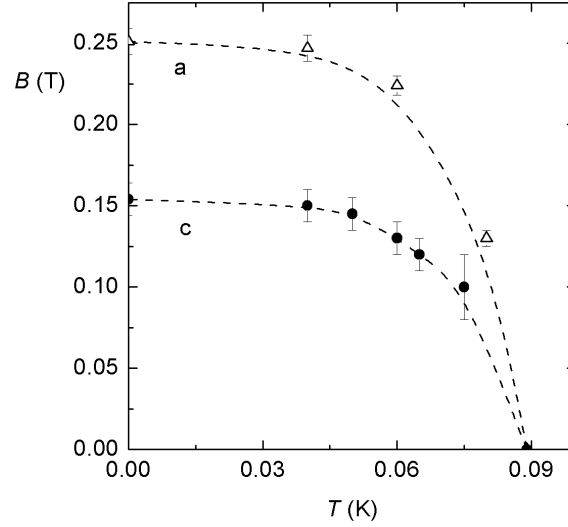
Der direkte Vergleich zeigt, dass die AFM-Ordnung bei den erwarteten Feldern unterdrückt wird und NFL-Verhalten auftritt (Abbildung 3.27). Überraschenderweise sind die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der einzelnen Achsen für die verschiedenen Feldrichtungen recht unterschiedlich. Offensichtlich verbirgt sich hinter der

$B \parallel c$	0.1 T	0.5 T	1 T	3 T
$B \parallel a$	0.172 T	0.86 T	1.72 T	5.16 T

 Tabelle 3.3: Vergleich der angelegten Felder für  $B \parallel c$  und  $B \parallel a$ .

 Abbildung 3.27: Vergleich der thermischen Ausdehnung  $\alpha$  der Kristallachsen  $b$  und  $c$  von  $x = 0.15$  für zwei unterschiedliche Feldrichtungen  $B \parallel a$  bzw.  $B \parallel c$ .

Anomalie im SFS-Zustand eine komplizierte, anisotrope Feldabhängigkeit. Anscheinend hat das Magnetfeld entlang der  $a$ -Richtung eine andere Auswirkung als entlang der  $c$ -Achse und es ist schwieriger die Momente in Feldrichtung auszurichten. Für eine abschließende Analyse müssen die fehlenden Feldrichtungen nachgemessen werden.

Mit Hilfe der Magnetostriktion und der thermischen Ausdehnung kann ein Phasendiagramm für  $B \parallel c$  bzw.  $a$  erstellt werden, siehe Abbildung 3.28. Ein Fit an die Daten mit  $T_N \sim (B_{krit} - B)^\alpha$  ergibt  $B_c \approx 0.153$  T mit einem von wurzelförmigen Verhalten abweichender Exponenten von  $\alpha = 0.2$ . Der Wert des kritischen Feldes ist konsistent zu vorherigen Messungen aus der Magnetisierung ( $B_c \approx 0.15$  T) [104]. Für Feld entlang der  $a$ -Achse erhält man aus einem Fit mit dem gleichen Exponenten  $B_a \approx 0.251$  T. Das Verhalten  $\frac{B_a}{B_c}(x = 0.15) = 1.64$ . ist sehr ähnlich dem Wert von  $\frac{B_a}{B_c}(x = 0.5) = 1.72$  [112].


 Abbildung 3.28: Phasendiagramm für  $x = 0.15$  mit  $B \parallel a$  bzw.  $B \parallel c$ .

### 3.2.3 Vergleich der Kontrollparameter Volumen und Magnetfeld

Die Kontrollparameter Au-Konzentration und Druck wirken sich direkt auf das Volumen der Elementarzelle von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  aus. Die antiferromagnetisch geordnete Phase kann, wie in Kapitel 3.2.2 beschrieben wurde, auch durch ein Magnetfeld unterdrückt werden. Um die Frage zu klären, ob beide Kontrollparameter zum gleichen kritischen Verhalten führen, starten wir mit kleinen Änderungen in  $B$  und  $p$ .

Analog zur temperaturabhängigen Energieskala  $E^* \sim k_B T^*$ , die ein System in einem bestimmten Temperaturbereich dominiert, lässt sich eine einzige feldabhängige Energieskala  $B^*$  definieren, deren Druckabhängigkeit vom magnetoelastischen Grüneisenparameter wiedergegeben wird. Wird das System hauptsächlich durch eine Feldskala  $B^*$  beeinflusst, kann die Magnetisierung des Systems als  $M = M(B/B^*(p))$  geschrieben werden. Über die Maxwellrelationen lässt sich, die Volumenmagnetostriktion mit der Feldabhängigkeit der Magnetisierung bzw. der Suszeptibilität verknüpfen:

$$\begin{aligned}
 V \cdot \lambda_V &= \left. \frac{\partial V}{\partial B} \right|_{p,T} = - \left. \frac{\partial M}{\partial p} \right|_{B,T} \\
 &= B \cdot \frac{\partial \ln B^*}{\partial p} \left. \frac{\partial M}{\partial B} \right|_{p,T} \\
 &= B \cdot \Omega_{Bp} \left. \frac{\partial M}{\partial B} \right|_{p,T} = B \cdot \Omega_{Bp} \cdot \chi
 \end{aligned} \tag{3.3}$$

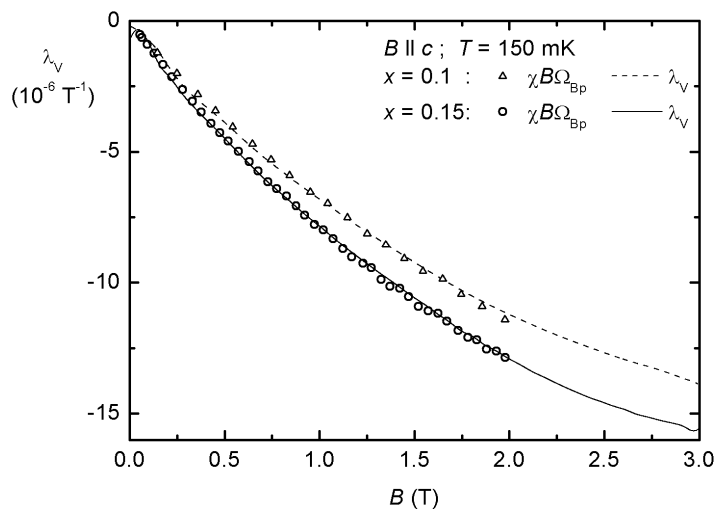


Abbildung 3.29: Magnetfeldabhängigkeit  $\lambda_V = (1/V) \cdot (\partial V / \partial B)$  für beide Konzentrationen  $x = 0.1$  (gestrichelt) und  $x = 0.15$  (durchgezogene Linie) mit  $B \parallel c$  für  $T = 150 \text{ mK}$ . Die offenen Punkte und Dreiecke sind  $\lambda_V$ -Werte, die aus Suszeptibilitätsdaten nach Gleichung 3.3 berechnet wurden [104].

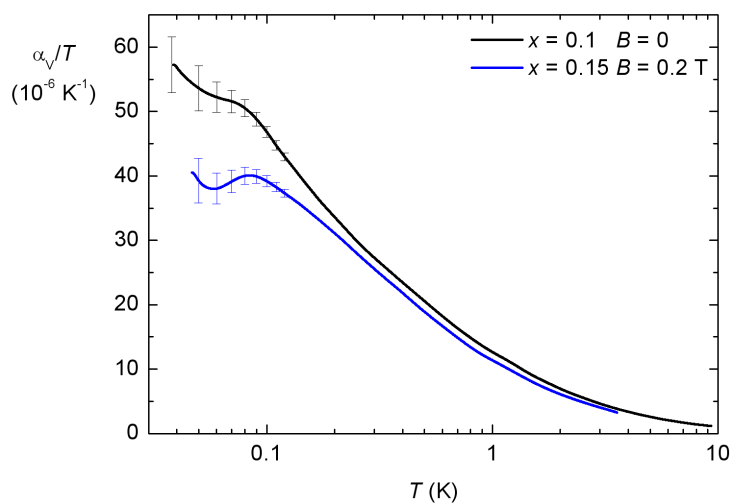


Abbildung 3.30: Vergleich  $x_c = 0.1$  bei  $B = 0 \text{ T}$  mit  $x = 0.15$  bei  $B_c = 0.2 \text{ T}$ . Beide Kurven zeigen von  $10 \text{ K}$  bis hinunter zu  $200 \text{ mK}$  ähnliches Verhalten. Danach flacht die Feldkurve zunehmend ab.



mit dem magnetoelastischen Grüneisenparameter  $\Omega_{Bp} = \frac{\partial \ln B^*}{\partial p}$ . Wir vergleichen die Volumenmagnetostraktion mit der feldabhängigen Suszeptibilität [104]. Abbildung 3.29 zeigt  $\lambda_V$  für beide Konzentrationen  $x = 0.1$  (gestrichelt),  $x = 0.15$  (durchgezogene Linie) mit  $B \parallel c$  für  $T = 150$  mK. Die offenen Punkte und Dreiecke sind  $\lambda_V$ -Werte, die aus Suszeptibilitätsdaten nach Gleichung ?? berechnet wurden. Die Kurven skalieren überraschend gut miteinander. Man erhält für den magnetoelastischen Grüneisenparameter  $\Omega_{Bp} = -39.5 \text{ Mbar}^{-1}$  für  $x = 0.1$  und  $\Omega_{Bp} = -43 \text{ Mbar}^{-1}$  für  $x = 0.15$ . Eine so perfekte Skalierung weist darauf hin, dass  $p$  und  $B$  für sehr kleine Änderungen von einander abhängen, d.h. es gilt  $M = M(B/B^*(p))$  anstatt  $M = M(B/B^*, p/p^*)$  und es existiert nur eine dominierende Feldskala  $B^*$ . Mit Hilfe von Gleichung 3.3 schließen wir, dass für den Vergleich der druckabhängigen und der feldabhängigen Entropie die folgende Proportionalität gilt und beide Kontrollparameter für sehr kleine Werte "austauschbar" sind, siehe auch [129]:

$$\frac{\partial S}{\partial p}(B) \approx B \cdot \Omega_B \frac{\partial S}{\partial B}(p). \quad (3.4)$$

Wir wollen prüfen, ob diese Skalierung von  $p$  und  $B$  auch bei größeren Änderungen von  $p$  und  $B$  weiterhin besteht. Wir unterdrücken die antiferromagnetische Ordnung im Kristall mit  $x = 0.15$  mit  $B_c = 0.2$  T und vergleichen die thermische Ausdehnung mit der Probe an der kritischen Konzentration  $x_c = 0.1$  im Nullfeld, siehe Abbildung 3.30. Beide Kurven skalieren von hohen Temperaturen bis hinunter zu 200 mK sehr gut. Danach flacht die Feldkurve von  $x = 0.15$  zunehmend ab. Es ist eine leichte Diskrepanz zu beobachten.

Ob eine weitere Erhöhung der Änderungen der Kontrollparameter zu einer größeren Diskrepanz führt, zeigt der Vergleich der spezifischen Wärme von  $x = 0.2$  unter Druck bis  $p_c = 6.9$  kbar und im Feld  $B_c = 0.5$  T, siehe Abbildung 1.13 in Kapitel 1.3. Am magnetfeldinduzierten kritischen Punkt erkennt man eine unterschiedliche Temperaturabhängigkeit. Der druckinduzierte QKP bei  $p_c = 3.2$  kbar zeigt wie bereits erwähnt exakt das gleiche Verhalten wie die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  mit dem logarithmischen Verlauf  $C/T \sim a \ln(T_0/T)$ , wie vom 2D-SDW-Modell vorausgesagt. Im Gegensatz dazu kann der feldinduzierte QKP bei  $B_c = 0.5$  T eher durch das SDW-Szenario in drei Dimensionen mit  $C/T \sim \gamma_0 - aT^{0.5}$  beschrieben werden.

Die Kontrollparameter Druck und Dotierung verhalten sich im Vergleich zum Kontrollparameter Magnetfeld recht unterschiedlich, siehe dazu auch Abbildung 1.14. Der Grund für die Ähnlichkeit zwischen Druck und Dotierung liegt an den zu Grunde liegenden mikroskopischen Mechanismen. Druck reduziert das Volumen der Elementarzelle und destabilisiert dadurch die magnetischen Momente durch eine Erhöhung der Hybridisierung zwischen  $4f$ -Elektronen und den Leitungselektronen. Konzentration erhöht das Elementarzellenvolumen in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  und erniedrigt entsprechend die Hybridisierung. Ein Magnetfeld, welches anisotrop nur auf eine Richtung wirkt, bewirkt andererseits, ne-

ben des Aufbrechens der magnetischen Ordnung, eine Unterdrückung des Einzelionen Kondo-Effekts, was die magnetischen Momente eher stabilisiert.

### 3.3 Phasendiagramm

Aus der Magnetostriktion und der thermischen Ausdehnung läßt sich für  $x = 0.15$  ( $B \parallel c$ ) und den schon gemessenen Daten (Referenzen siehe Kapitel 1.3) ein erweitertes  $T_N(B, x)$ -Phasendiagramm erstellen, siehe dazu Abbildung 3.31. Die Phasenübergangslinien  $T_N$  und  $B_c$  wurden entsprechend rot und blau eingefärbt. Für kleine Änderungen des Volumens im Magnetfeld ist das Verhalten sehr ähnlich, die Kurven von  $\lambda$  und  $M$  skalieren, und die Kontrollparameter  $p$  und  $B$  haben eine ähnliche Wirkung auf den Kristall.

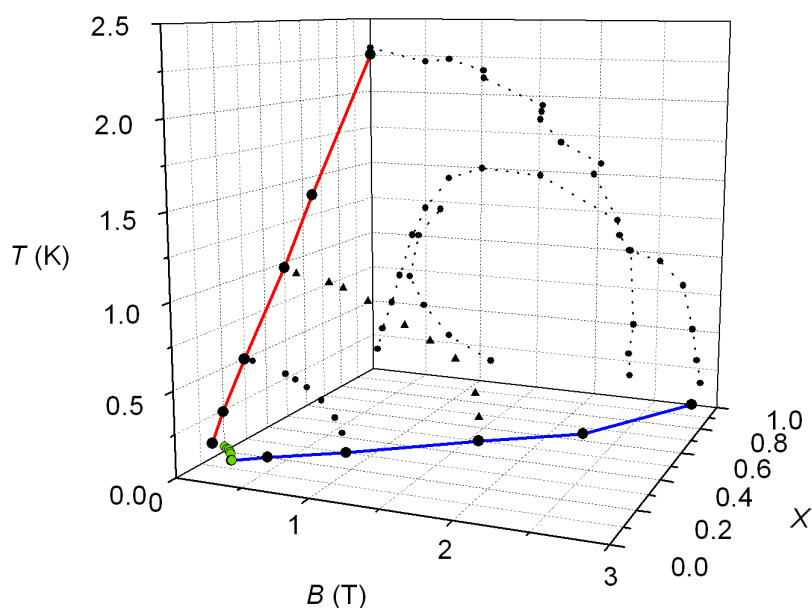


Abbildung 3.31: Phasendiagramm für  $T$  über  $B$  mit  $B \parallel c$  und  $x$  für verschiedene Konzentrationen. Referenzen siehe Kapitel 1.3. Der Beitrag dieser Arbeit ist grün markiert.

Jedoch resultiert mit zunehmendem  $x$  aus den Messungen ein unterschiedliches kritisches Verhalten. Der druckinduzierte QKP ist in Übereinstimmung mit dem 2D-SDW-Szenario, wohingegen der feldinduzierte QKP recht gut mit der dreidimensionalen Version der SDW-Theorie beschrieben werden kann. Die Ursache für dieses unterschiedliche Verhalten könnte in der Reaktion eines SFS-Systems auf die Kontrollparameter  $p$  und  $B$  zu suchen sein. Das Magnetfeld bricht aufgrund seiner Ausrichtung die Symmetrie des Kristalls, unterdrückt den Antiferromagnetismus und zerstört den Kondo-Effekt.

Hydrostatischer Druck  $p$  und chemischer Druck  $x$  unterdrücken ebenfalls den Antiferromagnetismus, verstärken aber den Kondo-Effekt.

Eine Substanz, in welcher die Wirkung von  $B$  und  $p$  gleich scheint, ist der Antiferromagnet  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  [49]. Allerdings ist das kritische Feld dieser Substanz mit  $B_c = 0.05$  T kleiner als das kritische Feld von der Konzentration  $x = 0.15$  mit  $B_c = 0.15$  T. Und der Vergleich von  $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$  mit  $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$  an  $B_c$  zeigt, dass selbst bei  $B = 0.15$  T nahezu das gleiche Verhalten beobachtet wird.

Wenn sich das kritische Verhalten entlang der Linie  $B_c(T \rightarrow 0, x)$  ändert, weist dies auf verschiedene Phasen hin. Gegenwärtig ist aber kein Phasenübergang erkennbar. Die Frage, die diese Arbeit aufwirft, ist, ob dieser Phasenübergang existiert und wo dessen Position im Phasendiagramm ist. Eine Antwort könnte durch weitere Messungen der thermischen Ausdehnung und der Magnetostriktion zu höheren Konzentrationen, wie z.B.  $x = 0.2$ , gefunden werden.



# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde mit  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ , eine der am besten charakterisierten Schwer-Fermion-Substanzen, mit Hilfe der thermischen Ausdehnung untersucht. Das Augenmerk lag auf der kritischen Konzentration  $x_c = 0.1$ , die den Beginn einer antiferromagnetischen Ordnung markiert. Eine weitere Konzentration  $x = 0.15$  wurde im Hinblick auf die Nähe zu diesem quantenkritischen Punkt und dem Verhalten des Antiferromagnetismus im Magnetfeld untersucht. Beide Proben wurden entlang ihrer orthorhombischen Kristallachsen innerhalb des Temperaturbereiches von 30 mK bis 300 K gemessen. Die Hochtemperaturmessungen ( $T > 10$  K) entstanden in Zusammenarbeit mit K. Grube, F. Hardy und C. Meingast [71, 102, 103]. Aufgrund des drehbar gelagerten Dilatometers konnte Längenänderung auch senkrecht zur Richtung des Magnetfeldes gemessen werden.

Das Dilatometer wurde in einen neuen Entmischungskryostaten mitsamt der benötigten Verdrahtung installiert und für eine möglichst hohe Auflösung optimiert. Die geringe thermische Ausdehnung der Messzelle, speziell bei tieferen Temperaturen unter 10 K, spricht für die Qualität der Messzelle. Ebenfalls sind sehr gute Messungen der Magnetostraktion mit kleinen Hysteresen als Funktion des Magnetfeldes oder der Temperatur möglich. Daher konnten wir den Hintergrund, verursacht durch die Messzelle, bei der Auswertung der Daten vernachlässigen.

Schwierigkeiten traten vor allem in der Messung der Temperatur unterhalb von 100 mK auf, die sich aufgrund von Messfehlern des Temperatursensors ergaben. Eine systematische Fehlerabschätzung von  $\alpha(T)$  ergab allerdings, dass die erhöhte Streuung der Messdaten sich innerhalb dieser Fehler bewegt. Eine exaktere Temperaturmessung mit Hilfe einer verbesserten Kalibrierung könnte hier eine noch bessere Messgenauigkeit gewährleisten. Magnetfeldabhängige Messungen wurden bei Feldern unterhalb 0.1 T durch Temperaturschwankungen beeinträchtigt, da das im Abschirmbecher enthaltene Blei unterhalb von  $B_c = 0.08$  T supraleitend wird. Dieses Problem kann durch einen neuen Abschirmbecher aus bleifreiem Messing behoben werden.

Die thermische Ausdehnung  $\alpha_i(T)$  von  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  zeigt Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten um die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  in allen drei Kristallrichtungen. Unter dem Einfluss eines äußeren Magnetfeldes von bis zu  $B = 3$  T wurde das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten nach und nach unterdrückt und die Fermi-Flüssigkeit wieder hergestellt. Ein Vergleich von  $\alpha_V/T$  mit den Voraussagen des itineranten Szenarios für 2D bzw. 3D zeigt, dass die Tieftemperaturdaten für  $T < 1$  K eher durch dreidimensionale kritische Fluktuationen bestimmt wurde. Für Temperaturen oberhalb von  $T = 1$  K folgt  $\alpha_V/T$  dagegen dem zweidimensionalen funktionalen Zusammenhang.

Die aus spezifischer Wärme und thermischer Ausdehnung ermittelte konzentrations- bzw. volumenabhängige Entropie  $S \sim C/T(V)$  ergab, dass die Daten der thermischen Ausdehnung  $\alpha$  konsistent zu denen der spezifischen Wärme  $C_p$  sind. Das in  $C/T(V)$  beobachtete Maximum tritt bei  $x > 0.1$  auf. Unverstanden ist der fehlende Vorzeichenwechsel in  $\alpha$  für  $x = 0.15$  bei  $T_N$ . Ausgelöst werden könnte der Untergrund durch eine weitere Energieskala  $E^*$ , die in der Nähe von  $x_c$  gegen Null geht.

Eine Überprüfung der Dehnungsabhängigkeiten aus  $\alpha_i$  ergibt einen kontinuierlichen Übergang am kritischen Punkt vom Zustand des Kondo-Gitters zur antiferromagnetischen Ordnung. Die Substanz  $x = 0.15$  zeigt im Vergleich zu höheren Konzentrationen isotrope  $\Gamma_i$ . Dies stimmt mit dem fehlenden Vorzeichenwechsel bzw. dem zu  $x > 0.1$  verschobenen Maximum in  $C/T(V)$  überein. Ein Vergleich der Kohärenztemperaturen aus Widerstandsmessungen unter Einfluss von Druck und Konzentration ergibt eine endliche Energieskala des Schwer-Fermion-Zustandes  $T_{coh}$  am QKP, was wiederum für eine Interpretation der Daten nach der itineranten Theorie spricht. Für kleine Werte der Kontrollparameter  $p$  und  $x$  erhält sehr ähnliches Verhalten, wie der Zusammenhang  $T_N(V(x)) = T_N(V(p))$  verdeutlicht.

Die Magnetostriktion  $\lambda$  wurde in Feldern bis zu 3 T mit einer Feldrate von 10 mT/min gemessen. In  $x = 0.15$  ist an  $T_N$  ein kontinuierlicher Übergang beobachtbar. Es findet damit kein Sprung im Volumen statt. Dieser Fakt spricht ebenfalls für das itinerante Szenario, welches eine kontinuierliche Änderung der Fermifläche beinhaltet. Zusammen mit der thermischen Ausdehnung im Feld für  $x = 0.15$  konnte ein  $(T, B, x)$ -Phasendiagramm erstellt werden, welches sich gut in die bestehenden Phasendiagramme der höheren Konzentrationen einfügt.

Ein Vergleich der Kontrollparameter Magnetfeld und Druck ergab eine gute Skalierung der Magnetostriktion  $\lambda_V$  und der Suszeptibilität  $\chi$  für kleine Werte von  $B$  und  $p$ . Ein Erhöhen der Kontrollparameter führt zu einem zunehmend unterschiedlichen kritischen Verhalten. Die Position eines möglichen Phasenüberganges zwischen diesem unterschiedlichen kritischen Verhalten sollte in zukünftigen Messungen untersucht werden.

Damit die in dieser Arbeit aufgeworfenen Fragen weiter verfolgt und beantwortet werden können, sind Messungen der thermischen Ausdehnung bei höheren Goldkonzentrationen erforderlich. Um das Verhalten und die Skalierung im antiferromagnetischen Bereich genauer zu untersuchen, sind Magnetisierungs- und Magnetostruktionsmessungen bei noch tieferen Temperaturen nötig, damit das unterschiedliche Verhalten am Druck- bzw. Magnetfeld-QKP weiter untersucht werden kann. Ein dimensionaler Phasenübergang von 2D- zu 3D-Verhalten mit fallender Temperatur könnte ein weiterer Denkanstoß sein, die Unterschiede zu erklären [130]. Eine Untersuchung des strukturellen Phasenüberganges und dessen kritischen Punktes könnte hilfreich bei der Bestimmung der Position des konzentrationsabhängigen quantenkritischen Punktes in CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> sein.

## Anhang A

### Einfluss der Federdicke - Thermische Ausdehnung unter uniaxialem Druck

Die Dicke und damit die Steifigkeit der Dilatometerfedern hat einen entscheidenden Einfluss auf die eingebauten Proben, wie schon in Kapitel 2.1.5 beschrieben. Durch zu dicke Federn bzw. verkürzte Federwege wird ein nicht zu vernachlässigender Druck auf den Kristall ausgeübt. Dieser Anhang soll eine kurze Analyse dessen geben, was passiert, wenn in einer thermischen Ausdehnungszelle mit Parallelfederführung zu starke Federn verwendet werden. Es folgt eine Abschätzung über die Kraft bzw. den Druck, der auf den Proben lastet.

Wir nehmen den Spezialfall mit einer Federdicke von 0.3 mm und der Probe  $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$  mit einer Auflagefläche von:

$$\begin{aligned}A_{min} &= 1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \\A_{max} &= 5.97 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2\end{aligned}$$

Abschnitt 2.1.3 beschreibt die Bestimmung des linearen Bereiches der Messzelle. Dieser Zusammenhang kann dazu verwendet werden, die Federkonstante der Parallelfederführung zu bestimmen. Die Federkonstante wird aus der Kraft ( $m \cdot g$ ) in Abhängigkeit von der Strecke der Federauslenkung  $\Delta s$  bestimmt. Die Steigung des linearen Bereiches ergibt eine Federkonstante von

$$D = 2.9815 \cdot 10^7 \text{ N/m.}$$

Die Federauslenkung  $\Delta s$  ist die Differenz zwischen dem Abstand der Platten bei unbelasteten Federn und dem Abstand der Platten bei belasteten Federn  $\Delta s = d_{\text{belastet}} - d_{\text{unbelastet}}$ . Dies wird aus der Messung der Kapazität berechnet:

$$\begin{aligned}\Delta C &= 53.6952 \text{ pF} - 1.866 \text{ pF} = 51.8292 \text{ pF} \\ \Rightarrow \Delta s &= 15.9846 \cdot 10^{-6} \text{ m}\end{aligned}$$

Für die minimale/maximale Andruckfläche ergibt sich nun:

$$\begin{aligned}p &= \frac{F}{A} = \frac{D \cdot \Delta s}{A} \\ \Rightarrow p_{min} &= 0.798 \text{ kbar} \\ \Rightarrow p_{max} &= 4.766 \text{ kbar}\end{aligned}$$

(3.5)

Die Abbildung 3.32 rechts zeigt die Kurven für  $x = 0.15$  für  $B$  ll  $c$  unter dem „uniaxialem Druck“ für verschiedene kleine Felder. Links daneben zeigt Bild 3.32 den direkten Vergleich der Messungen mit getauschten Federn. Deutlich ist der Druckeffekt zu sehen,

der die Absolutwerte der Messung mit geringerem Druck nach oben korrigiert. Auch der Phasenübergang ist für die rote Kurve zu höheren Temperaturen verschoben. Eine Bestimmung der Übergangstemperaturen ergibt:  $T_{N,2 \times 0.3} \approx 76$  mK und  $T_{N,0.3+0.2} \approx 89$  mK.

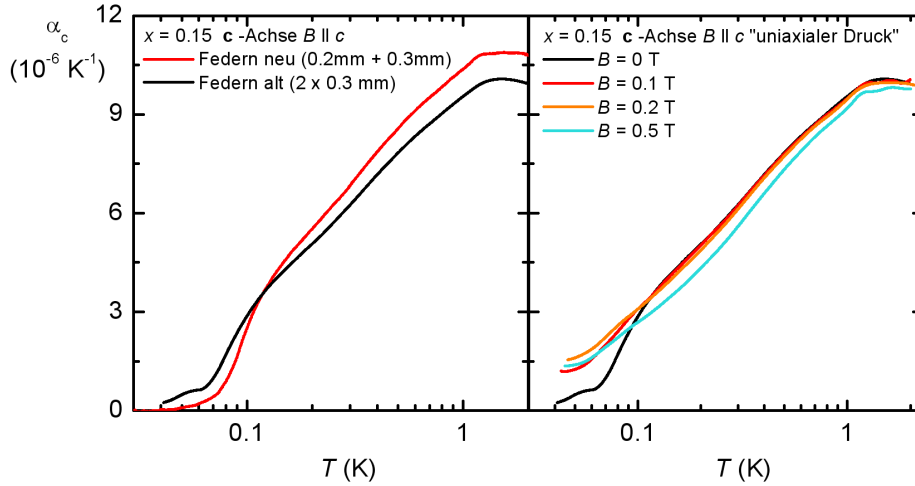


Abbildung 3.32: *Links:* Vergleich der Messungen mit verschiedenen Federn. Schwarz: 0.2 + 0.3 mm; Rot: 2 x 0.3 mm.  
*Rechts:*  $\alpha_c$  im Magnetfeld  $B \parallel c$  mit  $B = 0, 0.1, 0.2$  und  $0.5$  T.

Abbildung 3.33 zeigt einen Vergleich in einem Phasendiagramm  $T_N$  über Druck  $p$  für  $x = 0.15, 0.2$  [131] und  $0.3$  [83]. Der abgeschätzte Druckpunkt mit maximaler Auflagefläche  $p_{max}$  aus dieser Arbeit für  $x = 0.15$  ist mit einem Fehlerbalken versehen. Die durchgezogenen Linien sollen die Linearität der Druckabhängigkeit von  $T_N$  darstellen. Da der kritische Druck  $p_c$  für  $x = 0.15$  unbekannt ist, wurde eine weitere Abschätzung vorgenommen. Aus der hydrostatischen Druckabhängigkeit, gewonnen aus der thermischen Ausdehnung in Kapitel 3.1, kann man den ungefähren kritischen Druck für die Probe  $x = 0.15$  bestimmen. Wir nehmen dabei an, dass die Druckabhängigkeit linear wie für  $x = 0.2$  und  $0.3$  linear verläuft. Die hydrostatische Druckabhängigkeit setzt sich zusammen aus den uniaxialen Druckabhängigkeiten:

$$\begin{aligned} \frac{dT_N}{dp} &= \frac{dT_N}{dp_a} + \frac{dT_N}{dp_b} + \frac{dT_N}{dp_c} \\ \Rightarrow \frac{dT_N}{dp}(x = 0.15) &= -0.4765 \text{ K/GPa} \end{aligned}$$



Für die Druckkurve errechnen wir mit Hilfe von diesem Wert und von  $T_N = 0.089$  K den kritischen Druck  $p_c$ :

$$\frac{dT_N}{dp} \Big|_{p \rightarrow 0} = \left| \frac{0.089 - 0}{0 - p_c} \right| = \frac{0.089}{p_c}$$

$$\Rightarrow p_c = \left| \frac{dT_N}{dp} \right|^{-1} \cdot 0.089 = 0.187 \text{ GPa} = 1.87 \text{ kbar}$$

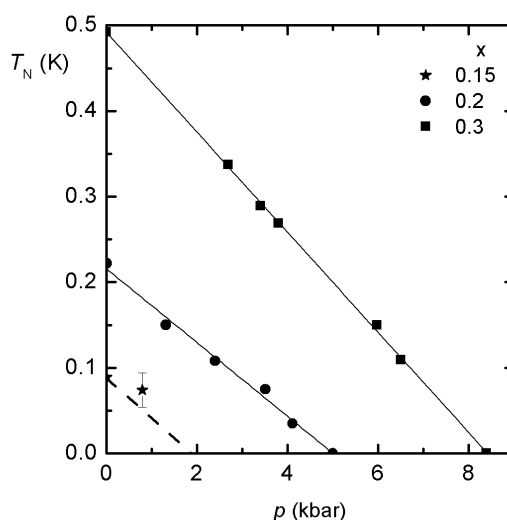


Abbildung 3.33: Vergleich im Phasendiagramm  $T_N$  über Druck  $p$  für  $x = 0.15, 0.2$  und  $0.3$ . Der abgeschätzte Druckpunkt aus dieser Arbeit ist mit einem Fehlerbalken versehen. Die Linien sollen die Linearität der Druckabhängigkeit von  $T_N$  zeigen. Für  $x = 0.15$  wurde ebenfalls eine lineare Kurve, errechnet aus der hydrostatischen Druckabhängigkeit, angenommen.

Die gestrichelte Gerade in Abbildung 3.33 zeigt, wie  $T_N$  in Abhängigkeit des Drucks sinkt. Der abgeschätzte Druckpunkt liegt im Mittel im Bereich des angenommenen Fehlers in der Nähe der gerechneten Linie. Für eine konkrete Nutzung der Methode, um tatsächlich thermische Ausdehnung unter uniaxialen Druck zu messen, ist die Druckbestimmung jedoch zu ungenau. Die Federkonstante kann systematischen Fehlern unterliegen, zudem ist die Andruckfläche nicht ausreichend gut bekannt. Daneben verändert sich der Druck temperaturabhängig, da der präzise Andruck abhängig vom Plattenabstand ist. Die Abschätzung gibt nur den Druck an, der auf der angenommenen Fläche anliegt. Wie sich der Druck dann schließlich in der Probe verteilt und welche Größe der tatsächlich anliegende Druck hat, ist fraglich.



## Anhang B

### Übersicht über die Messungen

Die Tabellen 3.6 - 3.4 geben einen Überblick über die erfolgten Messungen der thermischen Ausdehnung, der Magnetostriktion und der spezifischen Wärme. Ein äußeres Magnetfeld wurde entlang der magnetisch leichten  $c$ -Achse der Kristalle angelegt, wobei für die Messung  $L \parallel a$  bzw.  $b$  für  $B \parallel c$ , das Dilatometer um  $90^\circ$  gedreht wurde. Für die Achsen  $b$  und  $c$  des  $x = 0.15$  - Kristalls wurde das Feld noch zusätzlich an eine andere Richtung angelegt, und zwar  $B \parallel a$ , um die Anisotropie der Achsen im Feld zu untersuchen. Die Messungen für Temperaturen oberhalb 10 K der thermischen Ausdehnung für  $x = 0.1, 0.15$  und  $\text{LaCu}_6$  wurden in Zusammenarbeit mit K. Grube, F. Hardy und C. Meingast durchgeführt.

Probe	$B$ (T)	$\Delta T$ (K)
$\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$	0	1.9 - 300
$\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$	0	1.9 - 300
$\text{CeCu}_{5.8}\text{Au}_{0.2}$	0 10T	0.35 - 300
$\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$	0 10T	0.35 - 300
$\text{CeCu}_{5.5}\text{Au}_{0.5}$	0 3, 6, 8, 10 T	0.35 - 300
$\text{CeCu}_5\text{Au}_1$	0	1.9 - 300

Tabelle 3.4: Aufzählung der erfolgten spezifischen Wärmemessungen bei Temperaturen  $T > 4$  K.

Probe	$\Delta B \parallel c$ (T)	$T$ (mK)
$\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$	0 - 3 - 0	50, 60, 150
$\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$	0 - 3 - 0 "	40, 50, 60, 80, 100, 150

Tabelle 3.5: Aufzählung der erfolgten Magnetostruktionsmessungen  $\Delta B = 0 - 3\text{T}$  mit einer Feldrate von  $r = 10$  mT/min.

Probe	$B \parallel \mathbf{c}$ (T)	$B \parallel \mathbf{a}$ (T)	$\Delta T$ (K)
CeCu <sub>5.9</sub> Au <sub>0.1</sub>	0 ( $a, b, c$ )		0.04 - 10
	0.2 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	0.4 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	0.5 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	1 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	1.5 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	2 ( $a, b, c$ )		0.04 - 3.5
	3 ( $a, b, c$ )		0.04 - 10
CeCu <sub>5.85</sub> Au <sub>0.15</sub>	0 ( $a, b, c$ )	0 ( $b$ )	0.04 - 10 2 - 250
	0.1 ( $a, b, c$ )	0.1 ( $b$ )	0.04 - 3.5
		0.172 ( $c$ )	"
	0.2 ( $a, b, c$ )	0.2 ( $b$ )	0.04 - 3.5
	0.3 ( $a, b, c$ )	0.3 ( $b, c$ )	0.04 - 3.5
	0.4 ( $a, b, c$ )	0.4 ( $b$ )	0.04 - 3.5
	0.5 ( $a, b, c$ )	0.5 ( $b$ )	0.04 - 3.5
		0.86 ( $c$ )	"
	1 ( $a, b, c$ )	1 ( $b$ )	0.04 - 3.5
		1.72 ( $c$ )	"
	1.5 ( $a, b, c$ )	1.5 ( $b$ )	0.04 - 3.5
	2 ( $a, b, c$ )	2 ( $b$ )	0.04 - 3.5
	3 ( $a, b, c$ )	3 ( $b, c$ )	0.04 - 10 2 - 250
			2 - 250
10 ( $a, b, c$ )		2 - 250	
LaCu <sub>6</sub>	0 ( $a, b, c$ )		5 - 300

Tabelle 3.6: Aufzählung der erfolgten Messungen der thermischen Ausdehnung. Die Hochtemperaturmessungen  $\alpha_{HT}$  überspannen einen Temperaturbereich von  $\Delta T = 2$  K - 250 K und wurden von F. Hardy gemessen [103]. Angegeben sind jeweils die konstanten Magnetfelder und die gemessenen Feldrichtungen für die jeweilige Achse. Für die Messungen  $L \parallel a, b$  für  $B \parallel c$ , bzw.  $L \parallel b, c$  mit  $B \parallel a$ , wurde das Dilatometer um  $90^\circ$  gedreht.  $B \parallel a$  wurde nur für die Achsen  $a$  und  $b$  gemessen. Die Messungen für LaCu<sub>6</sub> wurden von C. Meingast durchgeführt [102].

# Literaturverzeichnis

- [1] P.W. Atkins, *Physikalische Chemie* (Wiley-VCH, Weinheim, 1987).
- [2] P. Ehrenfest, *Phasenumwandlungen im ueblichen und erweiterten Sinn - classifiziert nach den entsprechenden Singularitaeten des thermodynamischen Potentials*, Mitteilungen aus dem Kammerlingh Onnes-Institut Leiden **Supplement Nr. 75b**, 628 (1938).
- [3] L. D. Landau, E. M. Lifschitz, *Lehrbuch Der Theoretischen Physik V: Statistische Physik* (Akademie-Verlag, Berlin, 1987), Teil 1.
- [4] W. Gebhardt, U. Krey, *Phasenübergänge und kritische Phänomene* (Vieweg, Braunschweig, 1980).
- [5] S.K. Ma, *Modern Theory of Critical Phenomena* (Westview Press, New York, 2000).
- [6] T. Vojta, *Von Ordnung zu Unordnung durch Quantenfluktuationen*, Physik in unserer Zeit, **32**, 38 (2001).
- [7] R.B. Griffiths, *Dependence of Critical Indices on a Parameter*, Phys. Rev. Lett. **24**, 1479 (1970).
- [8] K. G. Wilson, *The renormalization group and critical phenomena*, Rev. Mod. Phys. **55**, 583 (1983).
- [9] A.J. Schofield, *Non-Fermi liquids*, Contemp. Phys. **40**, 95 (1999).
- [10] A.J. Schofield, *Quantum criticality in metals*, Physics World **8**, 23 (2003).
- [11] M. Vojta, *Quantum phase transitions*, Rep. Prog. Phys, **66**, 2069 (2003).
- [12] S. Sachdev, *Quantum phase transitions* (Cambridge University Press, Cambridge, 1999).
- [13] T. Senthil, S. Sachdev, M. Vojta, *Quantum phase transitions out of the heavy Fermi liquid*, Physica B **359-361**, 9 (2005).
- [14] M. Garst, A. Rosch, *Sign change of the Grüneisen parameter and magnetocaloric effect near quantum critical points*, Phys. Rev. B **72**, 205129 (2005).
- [15] S.L. Sondhi, S.M. Girvin, J.P. Carini, D. Shahar, *Continuous quantum phase transitions*, Rev. Mod. Phys. (1997).

- [16] M. Garst, *Quantenphasenübergänge: Grüneisen-Parameter, dimensionaler Crossover und gekoppelte Störstellen*, Dissertation, Universität Karlsruhe, 2003.
- [17] L. Zhu, M. Garst, A. Rosch, Q. Si, *Universally diverging Grüneisen parameter and magnetocaloric effect close to quantum critical points*, Phys. Rev. Lett. **91**, (2003).
- [18] R. KÜchler, *Divergence of the Grüneisen Ratio at Quantum Critical Points in Heavy Fermion Metals*, Phys. Rev. Lett. **91**, 066405 (2003).
- [19] R. KÜchler, *Low-temperature thermal expansion and magnetostriction of  $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  ( $x = 0$  and  $0.05$ )*, J. Magn. Magn. Mat. **272-276**, 229 (2004).
- [20] R. KÜchler, *Thermische Ausdehnung und divergierendes Grüneisenverhältnis in Schwere-Fermionen-Systemen*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2005.
- [21] E. Grüneisen, *Theorie des festen Zustandes einatomiger Elemente*, Ann. Phys. **39**, (1912).
- [22] T.H.K. Barron, in *Thermal Expansion of Solids*, Hrsg.: C.Y. Ho (AMS International, Materials Park, Ohio, 1998).
- [23] L. D. Landau, *The Theory of a Fermi Liquid*, Sov. Phys. JETP, **3**, 920 (1957).
- [24] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Festkörperphysik* (Oldenbourg Verlag, München, 2001).
- [25] H. v. Löhneysen, *Fermi-Flüssigkeiten aus stark korrelierten Elektronen*, Physikalische Blätter **51**, 941 (1995).
- [26] D. Vollhardt, P. Wölfle, *The Superfluid Phases of Helium-3* (Taylor and Francis, London, 1990).
- [27] K. Kadowaki, S. B. Woods, *Universal Relationship of the Resistivity and Specific Heat in Heavy-Fermion Compounds*, Solid State Communications **58**, 507 (1986).
- [28] W. Meissner, B. Voigt, *Messungen mit Hilfe von flüssigem Helium XI Widerstand der reinen Metalle in tiefen Temperaturen*, Ann. Phys. **399**, 761 (1930).
- [29] J. Kondo, *Resistance Minimum in Dilute Magnetic Alloys*, Prog. Theor. Phys. **32**, 37 (1964).
- [30] E. Bauer, R. Hauser, *Highly Correlated Electron Systems - The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Skript, Wien, 2003), lecture Script.
- [31] M. A. Ruderman, C. Kittel, *Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons*, Phys. Rev., **96**, 99 (1954).
- [32] T. Kasuya, *A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener's Model*, Prog. Theor. Phys. **16**, 45 (1956).

- [33] K. Yosida, *Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys*, Phys. Rev. **106**, 893 (1957).
- [34] S. Doniach, *Kondo Lattice and weak Antiferromagnetism*, Physica **91B**, 231 (1977).
- [35] H. v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta, P. Wölfle, *Fermi-liquid Instabilities at Magnetic Quantum Phase Transitions*, Rev. Mod. Phys. (2007).
- [36] J. A. Hertz, *Quantum critical phenomena*, Phys. Rev. B **14**, 1165 (1976).
- [37] T. Moriya, *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism* (Springer Verlag, Heidelberg, 1985), Vol. 56, und Ref. darin.
- [38] A.J. Millis, *Effect of a nonzero temperature on quantum critical points in itinerant fermion systems*, Phys. Rev. B, **48**, 7183 (1993).
- [39] A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert, H. v. Löhneysen, *Mechanism for the Non-Fermi-Liquid Behavior in CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>*, Phys. Rev. Lett., **79**, 159 (1997).
- [40] P. Coleman, *Theories of non-Fermi liquid behaviour in heavy fermions*, Physica B **259 - 261**, 353 (1999).
- [41] P. Coleman, C. Pépin, *Heavy Electron Quantum Criticality*, Acta Phys. Pol. B **34**, 691 (2003).
- [42] P. Coleman, *Magnetic spins that last for ever*, Nature **413**, 788 (2001).
- [43] P. Coleman, C. Pépin, *What is the fate of the heavy electron at a quantum critical point?*, Physica B **312 - 313**, 383 (2002).
- [44] A. Schröder, G. Aeppli, H. v. Löhneysen, *Onset of antiferromagnetism in heavy-fermion metals*, Nature **407**, 351 (2000).
- [45] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, J.L. Smith, *Locally critical quantum phase transitions in strongly correlated metals*, Nature, **413**, 804 (2001).
- [46] Q. Si, *The local quantum critical point and non-Fermi liquid properties*, J. Phys. Condens. Matter **15**, (2003).
- [47] Q. Si, *Quantum phase transitions and Correlated Electrons*, arXiv:cond-mat/0302110 (2004).
- [48] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman, Q. Si, *Hall-effect evolution across a heavy-fermion quantum critical point*, Nature (2004).
- [49] P. Gegenwart, Q. Si, F. Steglich, *Quantum criticality in heavy-fermion metals*, Nature Physics **4**, (2008).
- [50] C. Pépin, *Fractionalization and Fermi-Surface Volume in heavy-fermion compounds: The Case of YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>*, Phys. Rev. Lett. **94**, (2005).

- [51] H. v. Löhneysen, *Non-Fermi-Liquid Behaviour in a Heavy-Fermion Alloy at a Magnetic Instability*, Phys. Rev. Lett. **72**, 3262 (1994).
- [52] H. v. Löhneysen, *Non-Fermi-liquid behaviour in heavy-fermion systems*, Physica B, **206 & 207**, 101 (1995).
- [53] H. v. Löhneysen, *Non-Fermi-liquid behavior in strongly correlated electron systems*, Physica B **230 - 232**, 550 (1997).
- [54] M.L. Vrtis, J.D. Jorgensen, D.G. Hinks, *Structural Phase Transition in CeCu<sub>6</sub>*, Physica, **136 B**, 489 (1986).
- [55] E. Gratz, E. Bauer, H. Nowotny, H. Mueller, S. Zemirli, *Lattice Distortion In CeCu<sub>6</sub>*, J. Magn. Magn. Mater. **63 & 64**, 312 (1987).
- [56] A. Amato, D. Jaccard, *Thermodynamic and Transport Properties of CeCu<sub>6</sub>*, J. Low Temp. Phys. **68**, 371 (1987).
- [57] Y. Onuki, Y. Shimizu, T. Komatsubara, *Anisotropic Magnetic Property of Kondo Lattice Substance: CeCu<sub>6</sub>*, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 304 (1985).
- [58] H.G. Schlager, *Magnetic Ordering in CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> Single Crystals: Thermodynamic and Transport Properties*, J. Low Temp. Phys., **90**, 181 (1993).
- [59] A. Schröder, *Magnetization of CeCu<sub>6</sub> at low temperatures*, J. Magn. Magn. Mater. **108**, 47 (1992).
- [60] E.A. Schuberth, J. Schupp, R. Freese, K. Andres, *More evidence for magnetic ordering in CeCu<sub>6</sub> at mK temperatures*, Phys. Rev. B **51**, 12892 (1995).
- [61] L. Pollack, M.J.R. Hoch, C. Jin, E. N. Smith, J.M. Parpia, D.L. Hawthorne, D.A. Geller, D.M. Lee, R.C. Richardson, *Low-temperature order in the heavy-fermion compound CeCu<sub>6</sub>*, Phys. Rev. B **52**, R15707 (1995).
- [62] H. Okumura, K. Kakurai, Y. Yoshida, Y. Onuki, Y. Endoh, *Magnetic structure of CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>*, J. Magn. Magn. Mater. **177 - 181**, 405 (1998).
- [63] H. Tsujii, E. Tanaka, Y. Ode, T. Katoh, T. Mamiya, S. Araki, R. Settai, Y. Onuki, *Magnetic Order in the Heavy Fermion Compound CeCu<sub>6</sub> at mK Temperatures*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5407 (2000).
- [64] G. Aeppli, H. Yoshizawa, Y. Endoh, E. Bucher, J. Hufnagl, Y. Onuki, T. Komatsubara, *Wave-Vector- and Magnetic-Field-Dependent Spin Fluctuations in the Heavy-Fermion System CeCu<sub>6</sub>*, Phys. Rev. Lett. **57**, 122 (1986).
- [65] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, A. Amato, B. Hennion, *A Neutron Scattering Study Of Magnetic Excitations In The Heavy Fermion Compound CeCu<sub>6</sub>*, J. Magn. Magn. Mater., **63 & 64**, 289 (1987).



- [66] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat - Mignod, J.L. Jacoud, J. Flouquet, J.M. Mignot, E. Walker, D. Jaccard, A. Amato, C. Vettier, *Temperature and Magnetic Field Dependence Of Magnetic Correlations In The Heavy Fermion Compound CeCu<sub>6</sub>*, J. de Phys., **8 Colloque C8**, S. C8 (1988).
- [67] J. Rossat - Mignod, L.P. Regnault, J.L. Jacoud, *Inelastic Neutron Scattering Study Of Cerium Heavy Fermion Compounds*, J. Magn. Magn. Mater. **76 & 77**, 376 (1988).
- [68] M. Ruck, G. Portisch, H.G. Schlager, M. Sieck, H. v. Löhneysen, *Structure and Electrical Resistivity of the Heavy Fermion Compound CeCu<sub>5</sub>Au*, Acta Cryst., **B 49**, 936 (1993).
- [69] T. Pietrus, B. Bogenberger, S. Mock, M. Sieck, H. v. Löhneysen, *Pressure dependence of the Néel Temperature in antiferromagnetic CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> for 0.3 ≤ x ≤ 1.3*, Physica B **206 & 207**, 317 (1995).
- [70] P. Schweiss, Private Mitteilung - Röntgen-Vierkreis-Diffraktometer, IFP, 2008.
- [71] K. Grube, Private Mitteilung, 2005.
- [72] K. Grube, W.H. Fietz, U. Tutsch, O. Stockert, H. v. Löhneysen, *Suppression of the structural phase transition in CeCu<sub>6</sub> by pressure and Au doping*, Phys. Rev. B **60**, 11947 (1999).
- [73] R.A. Robinson, D.J. Goossens, M.S. Torikachvili, K. Kakurai, H. Okumura, *A quantum multi-critical point in CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>*, Physica B **385-386**, 38 (2006).
- [74] A. Germann, A.K. Nigam, A. Schröder, H. v. Löhneysen, *Magnetic Ordering in the heavy-fermion alloys CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> and CeCu<sub>6-x</sub>Ag<sub>x</sub>*, J. Phys. (Paris) Colloq. **49 C8**, 755 (1988).
- [75] T. Pietrus, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1994.
- [76] M. Sieck, *Thermische Eigenschaften von Schwer-Fermionen-Systemen unter uniaxialen und hydrostatischem Druck: Anisotropie der magnetischen Ordnung in CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub> und (B, T, p)-Phasendiagramm von UPt<sub>3</sub>*, Dissertation, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, Shaker Verlag Aachen, 1996.
- [77] M. Sieck, F. Huster, H. v. Löhneysen, *Uniaxial pressure dependence of the Néel temperature in CeCu<sub>5.8</sub>Au<sub>0.2</sub>*, Physica B **230 - 232**, 583 (1997).
- [78] F. Obermair, C. Pfleiderer, O. Stockert, H. v. Löhneysen, *Uniaxial stress experiments at the quantum phase transition of CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>*, Physica B **312-313**, 461 (2002).
- [79] A. Amato, *Muon-spin-relaxation studies on the heavy-fermion system with non-Fermi-liquid behavior CeCu<sub>5.9</sub>Au<sub>0.1</sub>*, Phys. Rev. B **52**, 54 (1995).

- [80] O. O. Bernal, D. E. MacLaughlin, *Kondo disorder and non-Fermi-liquid behavior in  $UCu_{5-x}Pd_x$  and  $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$* , Phys. Rev. B **54**, 13000 (1996).
- [81] C. Paschke, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1993.
- [82] H. v. Löhneysen, *Investigation of non-Fermi-liquid behavior in  $CeCu_{6-x}Au_x$* , Physica B **223&224**, 471 (1996).
- [83] B. Bogenberger, *Tuning of Non-Fermi-Liquid Behaviour with Pressure*, Phys. Rev. Lett. **74**, 1016 (1995).
- [84] T. Moriya, T. Takimoto, *Anomalous Properties around Magnetic Instability in Heavy Electron Systems*, J. Phys. Soc. Jpn., **64**, 960 (1995), und Ref. darin.
- [85] D. Finsterbusch, H. Willig, B. Wolf, G. Bruls, B. Lüthi, M. Waffenschmidt, O. Stockert, A. Schröder, H. v. Löhneysen, *Thermodynamic and Transport Properties of  $CeCu_{6-x}Au_x$ : Fermi-liquid vs. non-Fermi-liquid behaviour*, Ann. Physik **5**, 184 (1996).
- [86] H. v. Löhneysen, A. Neubert, T. Pietrus, A. Schröder, *Magnetic order and transport in the heavy-fermion system  $CeCu_{6-x}Au_x$* , Eur. Phys. J. B **5**, 447 (1998).
- [87] H. v. Löhneysen, *Magnetic order and transport in the heavy-fermion system  $CeCu_{6-x}Au_x$* , Eur. Phys. J. B, **5**, 447 (1998).
- [88] O. Stockert, *Two-Dimensional Fluctuations at the Quantum-Critical Point of  $CeCu_{6-x}Au_x$* , Phys. Rev. Lett. **80**, 5627 (1998).
- [89] A. Schröder, J.W. Lynn, R.W. Erwin, M. Loewenhaupt, H. v. Löhneysen, *Magnetic structure of the heavy fermion ally  $CeCu_{5.5}Au_{0.5}$* , Physica B **199-200**, 47 (1994).
- [90] A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili, P. Coleman, *Scaling of Magnetic Fluctuations near a Quantum Phase Transition*, Phys. Rev. Lett. **80**, 5623 (1998).
- [91] P. Estrela, A. de Visser, O. Stockert, K. Grube, H. v. Löhneysen, *Thermal expansion of  $CeCu_{6-x}Au_x$* , J. Magn. Magn. Mat. **272-276**, 23 (2004).
- [92] A. de Visser, J.J.M. Franse, A. Lacerda, P. Haen, J. Flouquet, *Grüneisen parameters of heavy fermion systems*, Physica B **163**, 49 (1990).
- [93] O.V. Lounasmaa, *Experimental Principles and Methods Below 1K* (Academic Press, London and New York, 1974).
- [94] T.H.K. Barron, G. K. White, *Heat Capacity and Thermal Expansion at Low Temperatures*, 1st ed. (Springer Verlag, Berlin, 1999).
- [95] F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, 3 ed. (Springer Verlag, Berlin, 2007).

- [96] C. Enns, S. Hunklinger, *Tieftemperaturphysik* (Springer Verlag, Heidelberg, 2000).
- [97] Microsoft Office Clipart.
- [98] R. Pott, R. Schefzyk, *Apparatus für measuring the thermal expansion of solids between 1.5 and 300 K*, J. Phys. E: Sci. Instrum. **16**, 444 (1983).
- [99] S. Drobnik, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 2004.
- [100] R. Schäfer, Private Mitteilung - Programm zur Steuerung der Temperatur und Messung., 2006.
- [101] M. Röger, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 2006.
- [102] C. Meingast, Private Mitteilung - Thermische Ausdehnung 5K - 300K an  $\text{LaCu}_6$ ., 2007.
- [103] F. Hardy, Private Mitteilung - Thermische Ausdehnung 2K-250K an  $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$ , 2007.
- [104] O. Stockert, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1994.
- [105] R. Frommknecht, Private Mitteilung - EDX, IFP.
- [106] Th. Wolf, Private Mitteilung - Herstellung von  $\text{LaCu}_6$  - Einkristallen im Fluss., 2006.
- [107] M. Waffenschmidt, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1997.
- [108] A. Hamann, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 2006.
- [109] O. Stockert, *Spindynamik und magnetische Ordnung in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$* , Dissertation, Universität Karlsruhe, Cuvillier Verlag Göttingen, 1999.
- [110] A. de Visser, A. Lacerda, P. Haen, J. Flouquet, F.E. Kayzel, J.J.M. Franse, *Thermal expansion of monocrystalline heavy-fermion  $\text{CeCu}_6$* , Phys. Rev. B **39**, 11301 (1989).
- [111] S. Holtmeier, A. de Visser, P. Haen, J. Flouquet, E. Walker, *Suppression of the Grüneisen parameter of  $\text{CeCu}_6$  by a magnetic field*, Physica B **205**, 1 (1995).
- [112] H.G. Schlager, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1991.
- [113] T. Pietrus, *Thermodynamische Eigenschaften und elektronischer Transport in  $(\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x)_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ ,  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{BiPt}$  und  $\text{Ce}_7\text{Ni}_3$* , Dissertation, Universität Karlsruhe, Cuvillier Verlag Göttingen, 1999.

- [114] B. Stroka, *Zur Messung der spezifischen Wärme von Selten-Erd-Mischkristallen: kritische Exponenten von  $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$  und Kristallfeldanomalien in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$* , Dissertation, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1991.
- [115] D. Vollhardt, *Characteristics Crossing Points in Specific Heat Curves of Correlated Systems*, Phys. Rev. Lett. **78**, 1307 (1997).
- [116] M. Eckstein, M. Kollar, D. Vollhardt, *Isosbestic points in the spectral function of correlated electrons*, J. Low Temp. Phys. **147**, 279 (2007).
- [117] J.G. Sereni, C. Geibel, M.G. Berisso, P. Hellmann, O. Trovarelli, F. Steglich, *Scaling of the " $C_p \propto T \ln T$ " dependence in Ce systems*, Physica B **230-232**, 580 (1997).
- [118] K. Grube, Private Mitteilung, 2008.
- [119] V.T. Rajan, *Magnetic Susceptibility and Specific Heat of the Coqblin-Schrieffer Model*, Phys. Rev. Lett. **51**, 308 (1986).
- [120] A. de Visser, H.P. van der Meulen, B.J. Kors, J.J.M. Franse, *Grüneisen parameter inversion in  $U(\text{Pt}, \text{Pd})_3$* , J. Magn. Magn. Mat. **108**, 61 (1992).
- [121] H. v. Löhneysen, A. Schröder, T. Trappmann, M. Welsch, *Evolution of magnetic ordering in  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  heavy-fermion alloys*, J. Magn. Magn. Mater. **108**, 45 (1992).
- [122] D. Weber, *Electron-Phonon Coupling in the Heavy-Fermion Compound  $\text{CeCu}_6$* , Europhys. Lett. **3**, 827 (1987).
- [123] H. Wilhelm, K. Alami-Yadri, B. Revaz, D. Jaccard, *Detailed investigation of the magnetic phase diagram of  $\text{CeRu}_2\text{Ge}_2$  up to 11 GPa*, Phys. Rev. B **59**, 3651 (1999).
- [124] G. Oomi, T. Kagayama, Y. Uwatoko, *Design of High Pressure Apparatus to Use at Low Temperature and High magnetic Field*, Jpn. J. Appl. Phys. **32**, (1993).
- [125] J.D. Thompson, Z. Fisk, *Kondo-lattice-mixed-valence resistance scaling in heavy-fermion  $\text{CeCu}_6$  under pressure*, Phys. Rev. B **31**, 389 (1985).
- [126] S. Yomo, L. Gao, R.L. Meng, P.H. Hor, C.W. Chu, J. Susaki, *Electrical resistivity of  $\text{CeCu}_6$  under high pressure*, J. Magn. Magn. Mater. **76+77**, 257 (1988).
- [127] G.R. Stewart, *Non-Fermi-liquid behavior in d- and f- electron metals*, Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001).
- [128] J. Ziegler, H.U. Häfner, D. Wohlleben, *Volume magnetostriction of rare-earth metals with unstable 4f shells*, Phys. Rev. Lett. **56**, 193 (1986).
- [129] P. Thalmeier, *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* (Elsevier Science Publishers, ADDRESS, 1991), Vol. 14, Chap. 96.

- [130] J.G. Donath, F. Steglich, E.D. Bauer, J.L. Sarrao, P. Gegenwart, *Dimensional crossover of Quantum Critical Behavior in CeCoIn<sub>5</sub>*, Phys. Rev. Lett. **100**, 136401 (2008).
- [131] B. Will, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, 1999.



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Dem Forschungszentrum Karlsruhe danke ich für die Gewährung des Doktorandens-tipendiums.

Bei Herrn Prof. Dr. H. v. Löhneysen möchte ich mich sehr bedanken. Er war Anstoss für die herausfordernde Themenstellung und gab mir die Möglichkeit, nahezu fünf Jahre in der Grundlagenforschung zu arbeiten. Bei Herrn Prof. Dr. G. Weiß bedanke ich mich für die Übernahme des Korreferats und sein Interesse an meiner Arbeit.

Ein besonders herzlicher Dank gebührt Dr. Kai Grube, der meine Arbeit in jeder Hin-sicht begleitete und mir stets mit Rat und Tat zur Seite stand. Ebenfalls sehr herzlich bedanken möchte ich mich bei Dr. Roland Schäfer, der mir im Labor eine unentbehrliche Hilfe war.

Ich bedanke mich bei Dr. Christoph Meingast für die Hochtemperaturmessungen der thermischen Ausdehnung und seine Diskussionsbereitschaft. Für die Versorgung mit Kühlflüssigkeiten und frischen Handtüchern bedanke ich mich bei Herrn R. Brand. Den Werkstätten unter der Leitung der Herren O. Walz und M. Schlenker danke ich für ihre stete Hilfsbereitschaft und präzisen Anfertigungen.

Sehr herzlich bedanke ich mich bei Edith Maass für ihre Hilfestellung in allen Lebensla-gen. Sie ist die wahre Seele des IFP. Allen Kollegen des IFP und Freunden am Physika-lischen Institut danke ich für ihre Unterstützung und die vielen lustigen Kaffeerunden. Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Kollegen Dr. Christian Pinta und Sandra Drotziger bedanken, für die vielen Gespräche und den Spass, den wir zusammen hat-ten. Für die Hochtemperaturmessungen der thermischen Ausdehnung und die Gespräche über Politik bedanke ich mich bei Dr. Frédéric Hardy (Je te remercie pour tout!).

Besonders herzlicher Dank geht an meine Eltern, Herrn Prof. Dr. Oswald Drobnik und Else Drobnik, und an meinen Lebensgefährten Dr. Anusch Daemi-Ahwazi. Sie haben mir den Rückhalt gegeben, den nur eine Familie geben kann.