

**Thermische Ausdehnung,
Magnetostriktion und
Thermokraft
von CeCoIn_5 und $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$
bei sehr tiefen Temperaturen**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik des
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Sebastian Zaum
aus Kehl

Tag der mündlichen Prüfung: 02.12.2011

Referent: Prof. Dr. H. v. Löhneysen
Korreferent: Prof. Dr. G. Weiß

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Experimenteller Aufbau	2
2.1	Thermische Ausdehnung	2
2.1.1	Messgrößen	2
2.1.2	Versuchsaufbau	3
2.1.3	Messung der thermischen Ausdehnung	4
2.1.4	Verdrahtung	5
2.1.5	Temperatursensoren	6
2.1.6	Regelung	7
2.2	Thermokraft	8
2.2.1	Messgröße	8
2.2.2	Versuchsaufbau	8
2.2.3	Regelung	9
3	Grundlagen	11
3.1	Schwer-Fermion-Systeme	11
3.1.1	Thermodynamik am quantenkritischen Punkt	12
3.1.2	Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten	14
3.2	Druckabhängigkeiten charakteristischer Energieskalen	14
3.2.1	Thermische Ausdehnung	14
3.2.2	Druckabhängigkeiten von Phasentübergängen	15
3.2.3	Grüneisenparameter	15
3.2.4	Magnetostriktion	16
3.2.5	Dehnungsabhängigkeit	16
4	CeCoIn₅	17
4.1	Einleitung	17
4.1.1	CeIn ₃	17
4.1.2	CeMIn ₅ ($M = \text{Co, Rh, Ir}$)	17
4.1.3	Supraleitung in CeCoIn ₅	19
4.1.4	Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten in CeCoIn ₅	21
4.1.5	Motivation	22
4.1.6	Proben	23
4.2	Messungen $B \parallel c$	23
4.2.1	Bisherige Messungen	23
4.2.2	Thermische Ausdehnung	23
4.2.3	Druckabhängigkeit charakteristischer Energieskalen	26

4.2.4	Skalierungsverhalten von α_V für $B \geq B_{c2}^0$	28
4.2.5	(B, T) -Phasendiagramm für $B \parallel c$	29
4.2.6	Die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten	31
4.2.7	Die Dehnungsabhängigkeiten von T_c	33
4.3	Messungen $B \parallel a$	34
4.3.1	Einleitung	34
4.3.2	Thermische Ausdehnung	35
4.3.3	Magnetostriktion	35
4.3.4	Die Druckabhängigkeiten von T_c	39
4.4	$\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$	40
4.4.1	Einleitung	40
4.4.2	Thermische Ausdehnung	41
4.4.3	Magnetostriktion	44
4.4.4	Phasendiagramm	44
4.4.5	Vergleich des quantenkritischen Verhaltens	44
5	$\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$	47
5.1	Einleitung	47
5.1.1	Struktur	47
5.1.2	Phasendiagramm	47
5.1.3	Thermische Ausdehnung	48
5.1.4	Quantenkritischer Punkt	50
5.1.5	Lokales Szenario	52
5.1.6	Motivation	54
5.2	Thermische Ausdehnung	55
5.2.1	Bisherige Messungen	55
5.2.2	Überblick	55
5.2.3	CeCu_6	58
5.2.4	$\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$	59
5.2.5	$\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$	61
5.2.6	$\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$	64
5.3	Magnetostriktion	67
5.3.1	Messungen bei $T = 100$ mK	67
5.3.2	Diskussion der Messergebnisse	69
5.3.3	Temperaturabhängigkeit der zusätzlichen Energieskala	70
5.4	Thermokraft	72
5.4.1	Grundlagen	72
5.4.2	Bisherige Messungen	73
5.4.3	Messungen	73
5.4.4	Diskussion der Messergebnisse	76
5.4.5	Vergleich mit YbRh_2Si_2	78
6	Zusammenfassung und Ausblick	80
	Literaturverzeichnis	82

Kapitel 1

Einleitung

In den letzten Jahren haben kontinuierliche Phasenübergänge, die durch nicht-thermische Kontrollparameter unterdrückt werden, viele wissenschaftliche Untersuchungen angeregt, da sich die elektronischen Eigenschaften an diesen sogenannten quantenkritischen Punkten nicht mit der Standardtheorie für Fermi-Flüssigkeiten beschreiben lassen. In ihrer Nähe treten häufig neuartige Phasen auf. In dieser Arbeit wurde das quantenkritische Verhalten von zwei Schwer-Fermion-Systemen, $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ und CeCoIn_5 , mit Hilfe von Messungen der thermischen Ausdehnung, der Magnetostriktion und der Thermokraft untersucht. In der Verbindung CeCu_6 kann mit negativem chemischen Druck durch die Substitution von Cu mit Au eine antiferromagnetische Ordnung erzeugt werden. Das Verhalten an diesem quantenkritischen Punkt weicht jedoch von der konventionellen Theorie von Hertz, Millis und Moriya ab. Eine mögliche Erklärung würde nach neueren theoretischen Vorstellungen die Existenz einer weiteren charakteristische Energieskala liefern, die gleichzeitig mit der antiferromagnetischen Übergangstemperatur verschwindet. Um magnetisch relevante Wechselwirkungsenergien zu suchen, wurden Magnetostruktionsmessungen an $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ -Kristallen mit unterschiedlichem Goldgehalt durchgeführt. Tatsächlich wurden Hinweise auf eine weitere Energieskala gefunden, die in der Nähe der kritischen Golddotierung verschwindet. CeCoIn_5 ist ein Schwer-Fermion-Supraleiter, bei dem der Vergleich mit verwandten Verbindungen (CeIrIn_5 , CeRhIn_5) die Vermutung nahelegt, dass die supraleitende Phase den Einsatz antiferromagnetischer Ordnung verdeckt. Wenn die Supraleitung mit einem Magnetfeld unterdrückt wird, treten, wie schon länger bekannt, deutliche Abweichungen vom üblichen Fermi-Flüssigkeitsverhalten auf. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass Abweichungen nicht durch kritische, supraleitende Fluktuationen erklärt werden können, aber auf einen naheliegenden quantenkritischen Punkt hindeuten. Die Messungen der thermischen Ausdehnung legen nahe, dass die Supraleitung eine druck- und feldabhängige Phasengrenze verbirgt. Diese quantenkritische Linie markiert wahrscheinlich den Beginn der antiferromagnetischen Ordnung.

Kapitel 2

Experimenteller Aufbau

In der vorliegenden Arbeit werden Messungen der thermischen Ausdehnung, der Magnetostriktion und der Thermokraft vorgestellt, welche in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Entmischungskryostaten MX400 der Firma Oxford Instruments durchgeführt wurden. Der Mischkryostat erreicht eine tiefste Temperatur von 8 mK. Mit dem eingebauten Magneten kann ein Feld von 14 T (16 T mit Lambda-Stufe) erzeugt werden. Der Mischkryostat und das Dilatometer zur Messung der thermischen Ausdehnung wurde in früheren Arbeiten [1, 2] aufgebaut und beschrieben. In dieser Arbeit wurden unter anderem die Temperatursensoren für Magnetfelder von bis zu 14 T kalibriert und die Verkabelung der Experimente im Mischkryostaten erneuert, um Messungen bei Temperaturen von bis zu 10 mK zu ermöglichen. Mit der Thermokraft wurde zudem eine weitere Messoption hinzugefügt.

2.1 Thermische Ausdehnung

2.1.1 Messgrößen

Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α_i ist definiert als die partielle Ableitung der Länge nach der Temperatur entlang einer Richtung i eines Festkörpers bei konstantem Druck¹ p und Magnetfeld B :

$$\alpha_i = \frac{1}{L_i(T)} \left. \frac{\partial L_i(T)}{\partial T} \right|_{p,B}. \quad (2.1)$$

Der thermische Volumenausdehnungskoeffizient $\beta(T)$ ist analog definiert. Ist die Kristallsymmetrie höher als monoklin, so kann er aus der Addition der linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten dreier senkrecht zueinander stehenden Kristallrichtungen berechnet werden.

$$\alpha_V = \sum \alpha_i = \frac{1}{V(T)} \left. \frac{\partial V(T)}{\partial T} \right|_{p,B}. \quad (2.2)$$

¹Die Probe befindet sich im inneren Vakuum des Kryostaten, was einem Druck $p < 10^{-6}$ mbar entspricht.

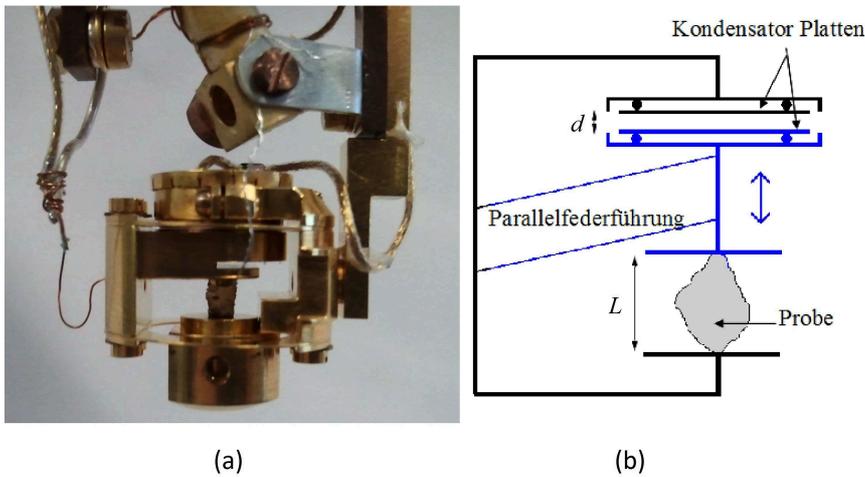


Abbildung 2.1: (a) Kapazitives Dilatometer; (b) Funktionsprinzip der kapazitiven Dilatometrie. Die blau markierten Bereiche lassen sich gegenüber dem Rest bewegen.

Der Proportionalitätsfaktor, der die Längenänderung bei veränderlichem Magnetfeld und konstanter Temperatur und konstantem Druck verbindet, wird lineare Magnetostruktionskoeffizient $\lambda(B)$ genannt:

$$\lambda_i(B) = \frac{1}{L_i(B)} \left. \frac{\partial L_i(B)}{\partial B} \right|_{T,p}. \quad (2.3)$$

2.1.2 Versuchsaufbau

Die thermische Ausdehnung wurde mit einem kapazitiven Dilatometer, das in Abbildung 2.1 zu sehen ist, gemessen. Bei diesem Messprinzip wird die Längenänderung der Probe mechanisch auf den Abstand zweier Kondensatorplatten übertragen.

Die obere Kondensatorplatte ist fest mit dem Rahmen des Dilatometers und dem Probenhalter verbunden. Die untere Kondensatorplatte ist frei beweglich an einer Parallelfederführung aufgehängt und mit der Probe verbunden. Längenänderungen durch die thermische Ausdehnung oder Magnetostruktion der Probe werden daher direkt auf die untere Kondensatorplatte übertragen. Die Parallelfederführung sorgt dafür, dass die Kondensatorplatten stets parallel zueinander ausgerichtet sind. Zudem werden Störungen durch mechanische Reibung auf ein Minimum reduziert. Die Federn üben eine leichte uniaxiale Kraft von weniger als 0.05 N auf die Probe aus. Die Kondensatorplatten sind zur elektrischen Abschirmung von einem Metallgehäuse umgeben.

Für die Federn des Dilatometers, die eine gewisse Härte und Elastizität aufweisen müssen, wurde eine Legierung aus 98% Kupfer und 2% Beryllium ausgewählt. Der Rest des Dilatometers wurde ebenfalls aus der Cu:Be-Legierung hergestellt, um Störungen der Messungen durch unterschiedliche thermische Ausdehnungen der Materialien zu vermeiden. Einzige Ausnahme sind jeweils drei 100 μm dicke Nylonfäden, die die Kondensatorplatten von der Erde isolie-

ren. Aufgrund ihrer geringen Dicke ist der Einfluss der Isolierung auf die thermische Ausdehnung vernachlässigbar. Das gesamte Dilatometer ist vergoldet, um eine möglichst gute thermische Ankopplung zu gewährleisten.

Aufgrund seiner kompakten Bauweise lässt sich das Dilatometer beliebig zum Feld orientieren, so dass die thermische Ausdehnung und Magnetostriktion parallel oder senkrecht zur Feldrichtung gemessen werden können.

Um eine möglichst gute Auflösung zu erreichen, wurde versucht bei kleinen Längenänderungen eine möglichst große Kapazitätsänderung zu erzielen. Da für den Plattenkondensator $C \propto d^{-1}$ gilt, bedeutet das, dass der Messabstand der Platten möglichst klein zu wählen ist. Dies setzt voraus, dass die Platten besonders eben geschliffen und parallel zueinander eingebaut werden. Bei einem typischen Plattenabstand von $20 \mu\text{m}$ wird eine Auflösung von $\Delta L \leq 0.001 \text{ \AA}$ erreicht. Bei einer Probenlänge von $L = 1 \text{ mm}$ entspricht das einer relativen Auflösung von $\Delta L/L = 10^{-10}$.

Beim Einbau der Probe wird diese zwischen Probenhalter und unterer Kondensatorplatte festgeklemmt. Über eine spezielle Schraube kann der Probenhalter bewegt und somit der Abstand der Kondensatorplatten bei Raumtemperatur eingestellt werden. Es können Proben mit einer Länge von wenigen μm bis zu 10 mm gemessen werden.

Die Verbindung zwischen Mischkammer und Dilatometer wurde bisher über kupferbeschichtete Leiterplatten hergestellt. Um eine bessere thermische Ankopplung an die Mischkammer zu erreichen, wurden die Leiterplatten zusammen mit einem Großteil der Kupfer-Beryllium- und Messing-Halterung des Dilatometers durch eine leichtere Konstruktion aus einer Silberlegierung Ag 935 (93.5% Silber, 6.5% Kupfer) ersetzt. Aufgrund der besseren Wärmeankopplung an die Mischkammer und der, wegen der geringen Masse und dem kleineren Hyperfeinbeitrag von Silber, kleineren Wärmekapazität bei tiefen Temperaturen, sind die Relaxationszeiten im Vergleich zu früheren Arbeiten [2] deutlich reduziert worden. Auf eine Halterung aus reinem Silber wurde verzichtet, um die Wirbelströme durch eine Änderung des Magnetfeldes bei Magnetostruktionsmessungen zu verringern.

2.1.3 Messung der thermischen Ausdehnung

Die Längenänderung wird aus der Kapazitätsänderung mit der Formel für den idealen Plattenkondensator berechnet:

$$C = \epsilon_0 \epsilon_r \frac{A}{d}. \quad (2.4)$$

Dabei ist $A = 369.8 \text{ mm}^2$ die Fläche der Kondensatorplatten, $\epsilon_0 = 8.854187 \times 10^{-12} \text{ As/Vm}$ und $\epsilon_r = 1$ die elektrischen Feldkonstanten, und d der Abstand der Platten. Die Gültigkeit dieser Formel für das Dilatometer wurde experimentell [1] bestätigt.

Die einwandfreie Funktion des Dilatometers wurde in der vorangegangenen Arbeit [2] anhand von Messungen an Si-Einkristallen und Leermessungen überprüft. Dabei erwies sich die thermische Ausdehnung von Cu:Be um drei Größenordnungen kleiner als die in dieser Arbeit gemessenen Schwer-Fermion-Systemen. Der Vergleich mit Literaturdaten von CeCoIn_5 (vgl. Abbildung 4.6) und $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ (vgl. Abbildung 5.9) bestätigt ebenfalls die einwandfreie Funktion des Dilatometers. Daher wird auf eine Kalibrierung verzichtet.

Die Kapazität wird mit einer Kapazitätsmessbrücke AH 2550A von Andeen-Hagerling (Anregungsspannung = 15 V, Anregungsfrequenz = 1 kHz, Integrationszeit = 9 s) ausgelesen.

Die thermische Ausdehnung wird mit der Näherung

$$\alpha \approx \frac{1}{L(T = 300 \text{ K})} \cdot \frac{\Delta L}{\Delta T}$$

für ein bestimmtes Temperaturintervall ermittelt. Dabei wird die Temperatur kontinuierlich geändert und die Daten in dem Intervall ΔT als arithmetischer Mittelwert zusammengefasst. Die Intervalle werden temperaturabhängig gewählt und variieren zwischen $\Delta T = 3 \text{ mK}$ bei tiefen Temperaturen bis zu $\Delta T = 25 \text{ mK}$ bei hohen Temperaturen. Für $T \rightarrow 0$ gehen der thermische Ausdehnungskoeffizient α und das Temperaturintervall ΔT zwischen zwei Datenpunkten gegen Null, d.h. man erreicht zwangsläufig die Auflösungsgrenze der Messapparaturen.

2.1.4 Verdrahtung

Die in vorangegangenen Arbeit [2] beschriebene Verdrahtung wurde fast komplett geändert und ersetzt, da der hohe Wärmeeintrag über die elektrischen Zuleitungen, insbesondere die Koaxialkabel, Messungen unterhalb von 40 mK nicht erlaubt hat.

Die Leitungen für die Thermometer und Heizer werden zur Reduktion elektromagnetischer Störungen über PI-Filter in den Kryostaten geführt und sind paarweise verdrillt. Vom Kryostatenkopf bis zur 4 K-Stufe werden Cu:Be-Kabel mit höherem thermischen Widerstand und guter mechanischer Belastbarkeit verwendet. Von der 4 K-Stufe bis zur Mischkammer werden supraleitende Niob-Titan-Kabel verwendet. Die Koaxialkabel für die Kapazitätsmessungen wurden in diesem Bereich durch ein Meter lange supraleitende Koaxialkabel mit supraleitenden Niob-Innenleiter und Edelstahl-Außenleiter der Firma Coax Co. (SC-033/50-Nb-SS assembly $\varnothing = 0.33 \text{ mm}$, Impedanz = 50Ω) ersetzt. Die supraleitenden Kabel haben unterhalb von $T_c = 9.6 \text{ K}$ keinen elektrischen Gleichstromwiderstand. Zudem transportieren die Cooper-Paare, die Ladungsträger der Supraleitung, keine Entropie, d.h. sie tragen nicht zum Wärmetransport bei. Die Experimente sind mit Kupferkabeln mit der Mischkammer verbunden. Die Kabel werden auf Höhe der 4 K-Stufe, des 1 K-Topf, der Destille und der Mischkammer über „heat sinks“ thermisch angekoppelt. Die „heat sinks“ sind vergoldete Kupferzylinder. Diese werden mit Molybdän-Unterlegscheiben und Edelstahlschrauben an den verschiedenen Stufen angebracht. Durch die geringere thermische Ausdehnung von Molybdän im Vergleich zu Edelstahl werden die „heat sinks“ beim Abkühlen des Kryostaten zusätzlich festgezogen, wodurch eine gute thermische Kopplung entsteht. Die Koaxialkabel werden um die „heat sinks“ gewickelt und mit silberhaltigem Epoxidharz (Epo-Tek EE 129-4) verklebt. Die anderen Leitungen werden mit GE Varnish 7031 an den „heat sinks“ verklebt. Die Koaxialkabel wurden, zusätzlich zu den „heat sinks“, teilweise mit einem dünnen Kupferdraht unwickelt und ebenfalls mit silberhaltigem Epoxidharz verklebt. Der Kupferdraht ist mit den verschiedenen Temperaturstufen thermisch verbunden. Dadurch wird der Innenleiter über über den Außenleiter und die Teflonisolierung gekühlt.

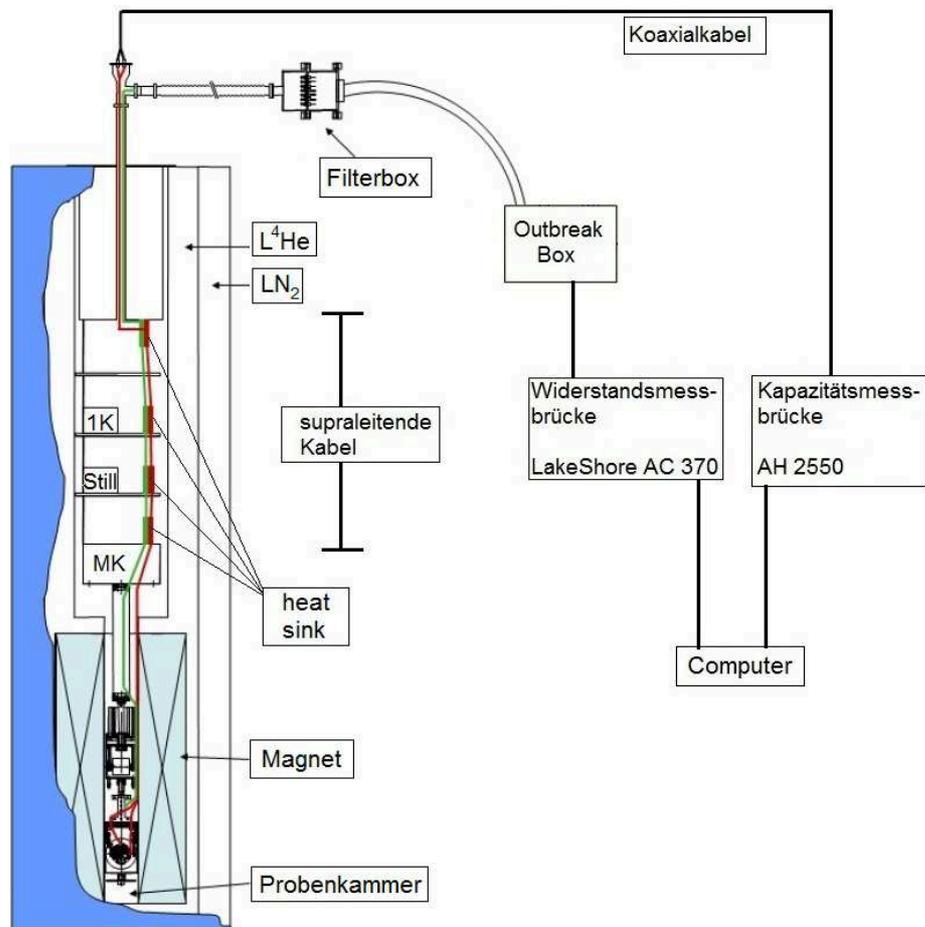


Abbildung 2.2: Der Kryostat mit Peripherie.

Nach der neuen Verdrahtung erreicht der Mischkryostat eine tiefste Temperatur von weniger als 10 mK, was einer Erweiterung des Messbereichs von etwa 20 mK entspricht. Die Verkabelung ist schematisch in Abbildung 2.2 dargestellt.

2.1.5 Temperatursensoren

Die Temperatursensoren sind dicht oberhalb des Dilatometers bzw. im Probenhalter für die Messung der Thermokraft befestigt. Für die Temperaturmessung bei tiefen Temperaturen $10 \text{ mK} < T < 4 \text{ K}$ werden RuO_2 -Widerstände der Firma LakeShore verwendet, welche von LakeShore in einem Temperaturbereich von $50 \text{ mK} < T < 10 \text{ K}$ bei Nullfeld kalibriert wurden. Für höhere Temperaturen wird aufgrund der besseren $R(T)$ -Charakteristik ein Cernox-Widerstand, ebenfalls von LakeShore, verwendet, der bei Nullfeld für $100 \text{ mK} < T < 325 \text{ K}$ kalibriert wurde. Die Widerstände der Temperatursensoren werden mit der Widerstandsmessbrücke AC370 von LakeShore ausgelesen.

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde der bisher verwendete, von LakeShore kalibrierte RuO_2 -Chip, vier weitere unkalibrierte RuO_2 -Chips sowie der Cernox-

Temperatursensor kalibriert.

Die erneute Kalibration wurde aus drei Gründen notwendig: Erstens konnte mit der neuen Verdrahtung bei so tiefen Temperaturen gemessen werden, dass eine einfache Extrapolation des $R(T)$ -Verlaufs nicht mehr vertrauenswürdig war. Zweitens wurden bei den früheren Messungen [1] eine systematische Anomalie bei $T \approx 80$ mK beobachtet (vgl. [1]). Drittens sollten vermehrt Messungen bei hohen Feldern (bis $B = 14$ T) durchgeführt werden. Nach Angaben des Herstellers haben die RuO₂-Widerstände bei tiefen Temperaturen einen nicht vernachlässigbaren Magnetowiderstand, der zu Abweichungen von bis zu 20 % bei $B = 14$ T führen kann.

Für die Kalibration wurde das Feldzentrum mit einer Hall-Sonde THS118 von Toshiba bestimmt und die Widerstände dort eingebaut. Thermisch wurden die Widerstände mit einer sauerstofffreien Kupferstange an die Mischkammer gekoppelt.

Für die Kalibration unterhalb von $T = 50$ mK wurde ein CMN-Thermometer an der Mischkammer angebracht. Für die höheren Temperaturen wurde gegen einen kalibrierten RuO₂-Widerstand abgeglichen, der ebenfalls an der Mischkammer befestigt war. Aus den Messungen mit der Hallsonde war bekannt, dass das Streufeld an der Mischkammer weniger als 3 % des Magnetfeldes am Feldzentrum beträgt.

Der Cernox-Chip entspricht in seiner $R(T)$ -Charakteristik den von LakeShore angegebenen Werten. Für die unkalibrierten RuO₂-Chips und den bisher verwendeten Thermometer wurden Eich Tabellen aufgenommen. Beim bisher verwendeten Thermometer wurde bei tiefen Temperaturen eine minimale Abweichung gegenüber der bisher verwendeten Eich Tabelle gefunden, die für die oben erwähnte Anomalie bei $T = 80$ mK verantwortlich war. Die Abweichung liegt innerhalb der von LakeShore angegebenen Fehlergrenzen. Da die Abweichungen sehr klein sind (< 1 mK), konnten die Daten nachträglich korrigiert werden.

Für die neue Kalibration wurde die $R(T)$ -Abhängigkeit im Nullfeld, analog zur LakeShore Eichung, mit einem Chebichev-Polynom mit 12 Parametern interpoliert. Da es aus Zeitgründen unmöglich ist, den gesamten Temperatur- und Feldbereich auszumessen, wurde der Magnetowiderstand bei festen Temperaturen (20, 50, 100, 200, 500, 1134, 1982.5 und 4330 mK) bestimmt. Aus der Literatur ist der qualitative funktionale Verlauf des Magnetowiderstands der RuO₂-Chips bekannt [3]:

$$R(B, T) = a_1(T) * B^{1/2} * \left(1 + \left(\frac{B}{b_1(T)} \right)^{-3/2} \right)^{-1} + a_2(T) * B^{1/2}. \quad (2.5)$$

Unsere Daten lassen sich damit gut beschreiben. Die Temperaturabhängigkeit der Koeffizienten $a_1(T)$, $a_2(T)$, $b_1(T)$ wurde mit einem kubischen Spline interpoliert, wodurch $R(T, B)$ bzw. $T(R, B)$ bestimmt werden können.

2.1.6 Regelung

Als Heizer für die thermischen Ausdehnungsmessungen wird ein Dehnungsmessstreifen mit 120 Ω -Widerstand und als Stromquelle ein Keithley SourceMeter 2400 verwendet. Das Messprogramm² steuert die Heizleistung über einen Proportional-Integral-Regler.

²R. Schäfer Messprogramm zur thermischen Ausdehnung und Magnetostriktion.

Die Temperatur wird bei der Messung der thermischen Ausdehnung kontinuierlich variiert. Im Gegensatz zur statischen Methode, bei der in bestimmten Abständen konstante Temperaturen angefahren werden, hat dies den Vorteil, dass in kürzerer Zeit mehr Messpunkte aufgenommen werden können. Systematische Fehler durch Drifts der Messapparaturen können durch die kürzere Gesamtmesszeit minimiert werden. Gleichzeitig wird durch die hohe Punktdichte und eine geeignete Mittelung das statistische Rauschen reduziert. Allerdings ist darauf zu achten, dass der Temperatursensor und das Dilatometer möglichst die gleiche Temperatur haben. Daher wird so langsam gemessen, dass zwischen Aufheiz- und Abkühlmessungen keine Abweichungen zu sehen sind. In der Praxis entspricht das, je nach Wärmekapazität der Probe, 4 bis 6 Stunden pro Messung. Die Temperaturänderungsrate wird mit abnehmender Temperatur reduziert, um bei tiefen Temperaturen, bei denen es aufgrund der geringen thermischen Leitfähigkeit große thermische Relaxationszeiten gibt, möglichst nahe am thermischen Gleichgewicht zu sein.

Mit der momentanen thermischen Kopplung an die Mischkammer kann bis zu einer Maximaltemperatur von etwa 3 K gemessen werden. Die Temperatur der Mischkammer bleibt dabei unterhalb der kritischen Temperatur des Phasenübergangs der $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Phasenseparation. Für Messungen bis 10 K wird der Kryostat über den 1 K-Topf auf 1.8 K gekühlt. Ein Drittel der Mischung wird im System gelassen, um den thermischen Kontakt zwischen dem 1 K-Topf und der Mischkammer herzustellen. Diese zweistufige Vorgehensweise hat den Vorteil, dass Regelprobleme, die durch die veränderte Kühlleistung beim Überschreiten der Phasengrenzlinie der $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischung entstehen, vermieden werden.

Die Magnetostruktionsmessungen können, dank der besseren thermischen Ankopplung und der bei tiefen Temperaturen erhöhten Kühlleistung am Experiment, mit einer höheren Rate (0.05 T/min bei 100 mK) im Vergleich zu [2] durchgeführt werden, ohne dass sich dabei die Apparatur durch Wirbelströme aufwärmt.

2.2 Thermokraft

2.2.1 Messgröße

Die Thermokraft S ist definiert als die Spannung U , die beim Anlegen eines Temperaturgradienten ΔT längs einer Probe entsteht (siehe Abbildung 2.3):

$$\Delta S = \frac{U}{\Delta T}. \quad (2.6)$$

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde die Thermokraft als eine weitere Messoption für den Mischkryostat aufgebaut. Die Messplattform befindet sich 11 cm oberhalb des Feldzentrums ($B_{\text{Probe}} = 0.52 \cdot B_{\text{Feldzentrum}}$), so dass sie gleichzeitig mit der thermischen Ausdehnung verwendet werden kann. Ihr kompakter Aufbau erlaubt, die Probe in beliebigem Winkel zum Feld auszurichten.

2.2.2 Versuchsaufbau

Der Aufbau der Thermokraft besteht aus einem glasfaserverstärktem Kunststoffrahmen, zwei RuO_2 -Temperatursensoren und einem 120 Ω -Dehnungsmess-

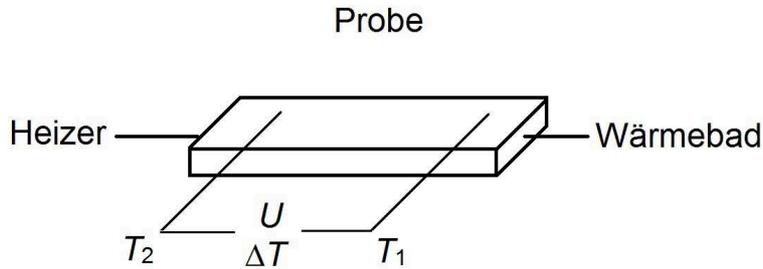


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Thermokraftmessung.

streifen, der als Heizwiderstand verwendet wird (siehe Abbildung 2.4). Die Plattform wird über eine Kupferhalterung, die gleichzeitig als Wärmebad dient, mit der Silberhalterung verbunden. Die drei Widerstände sind thermisch isoliert über dünne Nylonfäden mit dem Rahmen verbunden. Die elektrischen Kontakte werden über 10 cm lange, supraleitende NiTi-Drähte hergestellt. Diese enden auf Löt pads, die auf dem Rahmen angebracht sind. Bei den Löt pads findet der Übergang zur 4-Punkt-Messung der RuO_2 -Widerstände statt. Der Kontakt zur Probe wird über verdrehte, weichgeglühte Silberdrähte ($\varnothing = 0.2 \text{ mm}$) hergestellt. An der Halterung der Widerstände werden diese Drähte mit M1,4-Schrauben festgeklemmt. Die Widerstände werden über die Zuleitungen, welche um die Halterung der Widerstände gewickelt sind, thermisch geankert. An der Probe werden die Drähte mit silberhaltigem Epoxidharz befestigt. Ein vierter Draht verbindet die Probe mit dem Wärmebad. An den inneren Kontakten, den Temperatursensoren, wird zusätzlich die Spannung abgegriffen.

Im Gegensatz zu früheren Messungen [4] haben wir auf supraleitende Kontakte zur Probe verzichtet, um dadurch die Probe besser an die Thermometer, den Heizer und das Wärmebad zu koppeln. Die infolgedessen kürzeren Relaxationszeiten τ haben die Messzeit deutlich verringert. Das hat zusammen mit einer verbesserten Wärmedämmung an den äußeren Kontakten zum Nanovoltmeter den Einfluss von Temperaturschwankungen im Laborraum reduziert. Mit der hier verwendeten Anordnung ergibt sich $\tau \approx 1 \text{ min}$.

Die Thermokraft von Silber ist im Vergleich zu dem in dieser Arbeit gemessenen Schwer-Fermion-System $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ vernachlässigbar klein [5].

Die RuO_2 -Widerstände werden mit der Widerstandsmessbrücke AC370 von LakeShore, die Spannung mit einem Nanovoltmeter von Keithley (182 Sensitive Digital Voltmeter) ausgelesen. Als Stromquelle für den Heizer wird ein Knick DC-Calibrator J152 verwendet.

2.2.3 Regelung

Die Badtemperatur kann mit einem weiteren Heizer, einem RuO_2 -Chip, eingestellt werden. Der Heizer befindet sich zwischen der Mischkammer und der Mess-

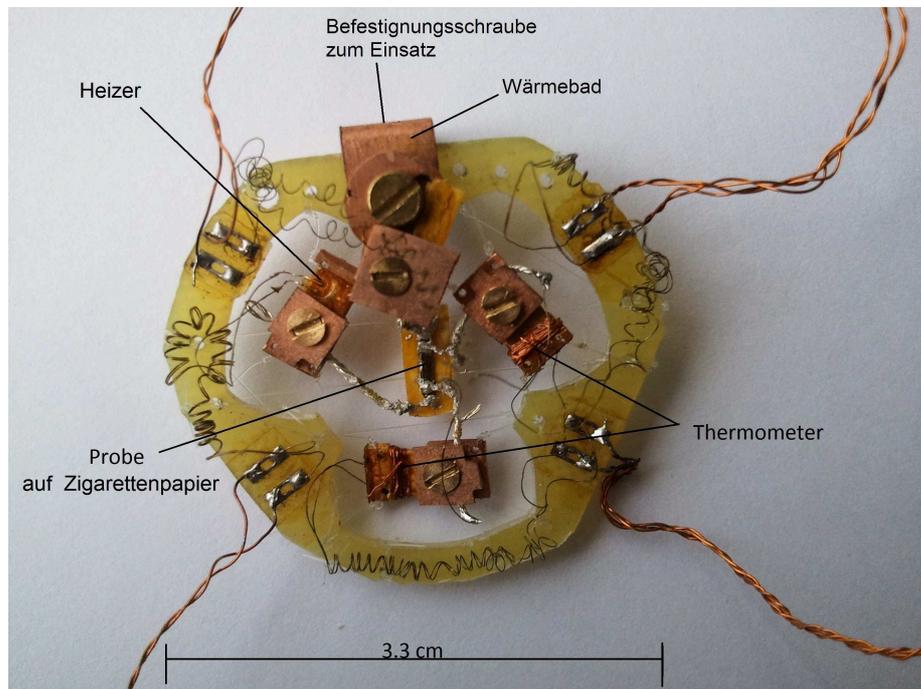


Abbildung 2.4: Aufbau der Thermokraft mit eingebauter Probe.

plattform und wird mit einem weiteren Knick DC-Calibrator J152 mit Strom versorgt. Alle Mess- und Steuergeräte sind über GPIB-Kabel mit einem Computer verbunden.

Die Messungen werden über ein selbst geschriebenes Programm gesteuert. Zu Beginn der Messung werden die Temperatursensoren aufeinander abgeglichen. Dies ist notwendig, da sich der Widerstand der Thermometer durch thermisches Zyklieren geringfügig verändern kann. Die Eichgenauigkeit der Thermometer beträgt ungefähr 1 mK. Daher wurde als Temperaturgradient $\Delta T = \Delta T_{\text{Heizer an}} - \Delta T_{\text{Heizer aus}}$ benutzt. Zudem wird der Offset der Thermospannung abgezogen, der sich durch einen Temperaturgradienten in den Zuleitungen ergibt.

Nach dem Einstellen einer Badtemperatur wird 15 Minuten gewartet, bis sich das System im thermischen Quasigleichgewicht befindet. Anschließend werden Temperaturgradienten zwischen 5 bis 15% der Badtemperatur eingestellt. Bei tiefen Temperaturen ($T < 1\text{ K}$) wird 5 Minuten gewartet, um einen neuen Temperaturgradienten einzustellen, bei höheren Temperaturen ($T > 1\text{ K}$) etwa 3 Minuten.

Um das statistische Rauschen zu reduzieren, wird für jeden Datenpunkt über 10 Messpunkte gemittelt. Auf eine weitere Mittelung der Daten („running average“) wurde verzichtet.

Kapitel 3

Grundlagen

3.1 Schwer-Fermion-Systeme

Schwer-Fermion-Systeme sind mit starken elektronischen Korrelationen sehr empfindlich auf Druck, Änderungen der chemischen Zusammensetzung oder Magnetfeld. Sie sind daher zur Untersuchung von Quantenphasenübergängen besonders geeignet. Die $4f$ - oder $5f$ -Atome sind periodisch in einer Metallmatrix angeordnet. Aufgrund der nicht vollständig gefüllten f -Schale tragen diese Ionen bei Temperaturen oberhalb der Kondo-Temperatur T_K ein magnetisches Moment. Die Hybridisierung zwischen den f -Orbitalen und dem Leitungsband führt zusammen mit der Coulomb-Abstoßung innerhalb der f -Orbitale zu einer effektiven Austauschwechselwirkung J , die Ursache des Kondo-Effekts ist [6]. Durch diese Wechselwirkung werden die Momente mit sinkender Temperatur zunehmend abgeschirmt. In Konkurrenz dazu steht die RKKY-Wechselwirkung zwischen den f -Momenten, die durch die Spinpolarisation der Leitungselektronen vermittelt wird und zu einem magnetisch geordneten, häufig antiferromagnetischen Grundzustand führt. Insbesondere J hängt wegen der Hybridisierung sehr stark von den interatomaren Abständen und damit dem Kristallvolumen und dem äußeren Druck ab.

Die beiden Wechselwirkungen hängen unterschiedlich von der Austauschwechselwirkung J ab:

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

$$T_{\text{RKKY}} \propto J^2 \cdot N(E_F).$$

Wie im Doniach-Phasendiagramm [7] in Abbildung 3.1 dargestellt, bestimmt das Zusammenspiel beider Wechselwirkungen, ob das System einen magnetisch geordneten oder paramagnetischen Grundzustand einnimmt. Sind beide Energieskalen gleich groß, so befindet sich das System in der Nähe eines quantenkritischen Punkts.

Da die $4f$ -Ionen regelmäßig angeordnet sind, bildet sich bei sehr tiefen Temperaturen, der Kohärenz-Temperatur $T_{coh} < T_K$, eine neue Bandstruktur aus, deren Eigenschaften als Fermi-Flüssigkeit aus extrem schweren Quasiteilchen beschrieben werden kann. Diese zeichnet sich durch charakteristische Tempe-

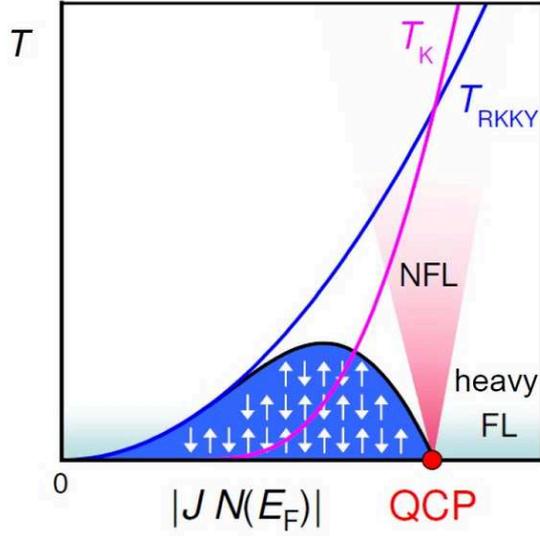


Abbildung 3.1: Das Dziadosz-Phasendiagramm [7] zeigt die Abhängigkeit von T_K und T_{RKKY} von der Hybridisierungsstärke J . Bei J_c sind beide Energieskalen etwa gleich stark und man erhält einen quantenkritischen Punkt. Für $T_K > T_{\text{RKKY}}$ erhält man in der Nähe des quantenkritischen Punkts eine schwere Fermi-Flüssigkeit und für $T_K < T_{\text{RKKY}}$ Antiferromagnetismus.

raturabhängigkeiten der spezifischen Wärme C/T , der thermischen Ausdehnung α_V , des elektrischen Widerstands ρ und des Seebeck-Koeffizienten \tilde{S}/T aus:

$$\frac{C}{T} = \gamma = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 N(E_F) = \frac{k_B^2}{3} \hbar k_F \cdot m^* = \text{constant} \quad (3.1)$$

$$\frac{\alpha_V}{T} = - \left. \frac{\left(\partial \gamma_0 \frac{m^*}{m} \right)_T}{\partial p} \right|_T = \text{constant} \quad (3.2)$$

$$\rho = \rho_0 + AT^2 \quad (3.3)$$

$$\frac{\tilde{S}}{T} \propto \text{constant}. \quad (3.4)$$

Dabei ist γ_0 der Sommerfeld-Koeffizient, $\hbar k_F$ der Fermi-Impuls und $N(E_F)$ die Zustandsdichte an der Fermi-Energie E_F . In diesem Kondo-Gitter bilden die f -Elektronen unterhalb einer vergleichsweise niedrigen Fermi-Temperatur ($T_F < 100$ K) einen Teil des Fermi-Volumens, das bei $T = 0$ von der Fermi-Fläche begrenzt wird.

3.1.1 Thermodynamik am quantenkritischen Punkt

Ein qualitatives Verständnis für das Verhalten der thermischen Ausdehnung und spezifischen Wärme erhält man bei Betrachtung der Entropie S . In Abbildung 3.3 ist die Entropie schematisch als Funktion der Temperatur und des

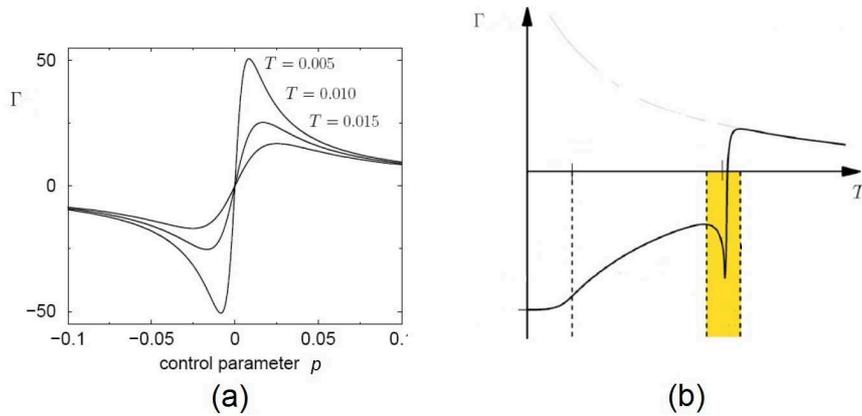


Abbildung 3.2: Grüneisenparameter $\Gamma = V/\kappa_S \cdot \alpha_V/C$ in Abhängigkeit des Kontrollparameters p (a) und der Temperatur (b) nach [8]. Der Zusammenhang zwischen Γ und der Entropie S wird in Abschnitt 3.2.3 gegeben.

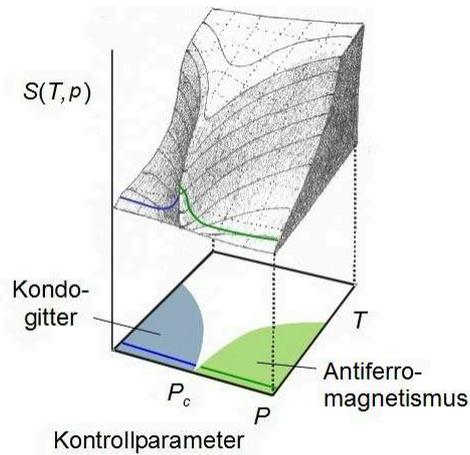


Abbildung 3.3: Entropie S als Funktion der Temperatur T und des Drucks p .

Drucks dargestellt. Als Funktion des Kontrollparameters besitzt die Entropie am quantenkritischen Punkt ein Maximum aufgrund der Konkurrenz zweier Grundzustände. Ist der Kontrollparameter proportional zum Druck, wechselt der thermische Ausdehnungskoeffizient $\alpha \propto -\partial S/\partial p$ sein Vorzeichen am quantenkritischen Punkt, wie in Abbildung 3.2 qualitativ für den Grüneisenparameter¹ dargestellt. Es ist zu beachten, dass der Vorzeichenwechsel für endliche Temperaturen am klassischen Phasenübergang stattfindet [8]. Innerhalb der geordneten Phase setzt sich die Divergenz mit umgekehrtem Vorzeichen fort [8].

¹Da die spezifische Wärme C immer positiv ist, wird der Vorzeichenwechsel im Grüneisenparameter Γ allein durch den thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_V bestimmt.

	$d = 2, z = 3$	$d = 3, z = 2$	$d = 3, z = 3$	$d = 2, z = 2$
α_{cr}	$Tr^{-3/2}$	$Tr^{-1/2}$	Tr^{-1}	Tr^{-1}
C_{cr}	$Tr^{-1/2}$	$-Tr^{1/2}$	$Tl \log \frac{1}{r}$	$T \log \frac{1}{r}$
$\Gamma_{r,cr}$	$(2r)^{-1}$	$-(2r)^{-1}$	$(r \log \frac{1}{r})^{-1}$	$(r \log \frac{1}{r})^{-1}$

	$d = 2, z = 3$	$d = 3, z = 2$	$d = 3, z = 3$	$d = 2, z = 2$
α_{cr}	$\log \frac{1}{T}$	$T^{1/2}$	$T^{1/3}$	$\log \log \frac{1}{T}$
C_{cr}	$T^{2/3}$	$-T^{3/2}$	$T \log(\frac{1}{T})$	$T \log \frac{1}{T}$
$\Gamma_{r,cr}$	$T^{-2/3} \log \frac{1}{T}$	$-T^{-1}$	$(T^{2/3} \log \frac{1}{T})^{-1}$	$\frac{\log \log \frac{1}{T}}{T \log \frac{1}{T}}$

Tabelle 3.1: Ergebnisse der Rechnungen von Zhu *et. al.* [12]. α_{cr} , C_{cr} und Γ_{cr} in Abhängigkeit des normalisierten Kontrollparameters r (z. B.: $r = (p - p_c)/p_c$ oder $r = (H - H_c)/H_c$) im Fermi-Flüssigkeitsbereich und der Temperatur T im quantenkritischen Bereich. d steht für die räumliche Dimension der Fluktuationen, z für den dynamischen kritischen Exponenten ($z = 2$ für AFM-Systeme, $z = 3$ für FM-Systeme).

3.1.2 Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten

Die Theorie von Hertz, Millis und Moriya (HMM) [9, 10, 11] beschreibt den einfachsten Fall eines magnetischen quantenkritischen Punkts in einem Metall. Hier wird nur der magnetische Ordnungsparameter als kritischer Freiheitsgrad betrachtet. Im Rahmen dieses Modells wurde das Skalierungsverhalten in der Nähe des quantenkritischen Punkts von Zhu *et al.* [12] für die spezifische Wärme, die thermische Ausdehnung und den Grüneisenparameter berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.1 dargestellt: Die starken Abweichungen vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten werden als Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten bezeichnet.

3.2 Druckabhängigkeiten charakteristischer Energieskalen

Die charakteristischen Energien, die die Eigenschaften von Festkörper bestimmen, hängen üblicherweise vom Kristallgitter, d.h. insbesondere von den Gitterparametern und dem Volumen ab. Bei geordneten Zuständen ist die charakteristische Energieskala durch die Übergangstemperatur gegeben.

3.2.1 Thermische Ausdehnung

Mit den Maxwell-Relationen kann der thermische Volumenausdehnungskoeffizient α_V als

$$\alpha_V = -\frac{1}{V} \left. \frac{\partial S}{\partial p} \right|_T$$

geschrieben werden. Das bedeutet, dass die thermische Ausdehnung durch die Druckabhängigkeit der Entropie gegeben ist.

3.2.2 Druckabhängigkeiten von Phasenübergängen

Die Ordnung eines Phasenübergangs wird nach Ehrenfest durch die niedrigste Ableitung eines thermodynamischen Potentials bestimmt, welche beim Überschreiten der Phasengrenze nicht mehr stetig ist. Mit dem Differential der Gibbsschen freien Enthalpie $dG = -SdT + Vdp$ sind bei einem Phasenübergang erster Ordnung somit die Entropie S und das Volumen V unstetig:

$$-S = \left. \frac{\partial G}{\partial T} \right|_p, \quad V = \left. \frac{\partial G}{\partial p} \right|_T.$$

Bei einem Phasenübergang zweiter Ordnung sind entsprechend die spezifische Wärme C , der thermische Volumenausdehnungskoeffizient α_V und die isotherme Kompressibilität κ unstetig:

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

Eine Besonderheit von Phasenübergängen zweiter Ordnung ist, dass die Korrelationslänge bei Annäherung an T_c divergiert, d.h. es gibt Fluktuationen auf allen Längenskalen. Dadurch werden die mikroskopischen Details unwichtig und man findet ein universelles Verhalten.

Für einen Phasenübergang erster Ordnung ist die Druckabhängigkeit von T_c durch die Clausius-Clapeyron-Gleichung [13] gegeben:

$$\left. \frac{\partial T_c}{\partial p} \right|_{p \rightarrow 0} = \frac{V \cdot (\Delta L_i(T)/L_i(T))}{\Delta S}.$$

Die Druckabhängigkeit von T_c eines Phasenübergangs zweiter Ordnung ist durch die Ehrenfest-Relation [14] gegeben:

$$\left. \frac{\partial T_c}{\partial p} \right|_{p \rightarrow 0} = V \cdot T_c \cdot \frac{\Delta \alpha_V}{\Delta C}. \quad (3.5)$$

3.2.3 Grüneisenparameter

Das Grüneisenparameter ist der Quotient aus der thermischen Ausdehnung und der spezifischen Wärme bei konstantem Druck:

$$\Gamma = \frac{V}{\kappa_S} \frac{\alpha_V}{C_p}. \quad (3.6)$$

Dabei ist κ_S die adiabatische Kompressibilität. Wird ein System von einer charakteristischen Energieskala E^* dominiert, kann die Entropie in der Form $S = f(T/E^*)$ geschrieben werden. Setzt man dies in Gleichung 3.6 ein, so erhält man:

$$\Gamma = \frac{V}{\kappa_S} \frac{\alpha_V}{C_p} = -\frac{V}{T} \frac{\frac{\partial S}{\partial V}}{\frac{\partial S}{\partial T}} = \frac{V}{E^*} \frac{\partial E^*}{\partial V}. \quad (3.7)$$

Der Grüneisenparameter gibt somit die Volumenabhängigkeit bzw. Druckabhängigkeit der charakteristischen Energie wieder. Normalerweise ist die Druckabhängigkeit von E^* klein und eine lineare Funktion von p . Der Grüneisenparameter ist daher kaum temperaturabhängig, bzw. α ist proportional zu C , was als Grüneisengesetz bezeichnet wird. Die Besonderheit an einem quantenkritischen Punkt ist, dass E^* für $T \rightarrow 0$ gegen Null geht. Aus Gleichung 3.7 folgt daher, dass Γ an einem quantenkritischen Punkt divergiert und große Werte annimmt.

3.2.4 Magnetostriktion

Der lineare Magnetostruktionskoeffizient λ_i ($i = a, b, c$) kann mit der Maxwell-Relation als

$$\lambda_i = \frac{1}{V} \frac{\partial L_i}{\partial B} = \frac{1}{V} \frac{\partial M}{\partial p_i} \Big|_{T, B}$$

geschrieben werden. D.h. die Magnetostriktion beschreibt die Druckabhängigkeit der Magnetisierung. Daher kann die Magnetostriktion verwendet werden, um magnetische Energieskalen eines Systems aufzufinden.

3.2.5 Dehnungsabhängigkeit

Beim Anlegen eines uniaxialen Drucks entstehen im Kristall gleichzeitig Querdehnungen, was als Poisson-Effekt bezeichnet wird. Dieser Effekt kann mit Hilfe der elastischen Konstanten c_{ij} herausgerechnet werden. Gleichung 3.5 wird dann zur Dehnungsabhängigkeit der Entropie:

$$\frac{\partial T^*}{\partial \epsilon_i} = \sum_{j=1}^3 c_{ij} \cdot \frac{\partial T^*}{\partial p_j}$$

Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient $\alpha_i \propto \partial S / \partial p_i$ wird zu

$$\frac{dS}{d\epsilon_i} = \sum_{j=1}^3 c_{ij} \alpha_j \tag{3.8}$$

Kapitel 4

CeCoIn₅

4.1 Einleitung

4.1.1 CeIn₃

Die Verbindung CeIn₃ gehört zu den ersten Verbindungen, in denen unkonventionelle Supraleitung in unmittelbarer Nähe eines magnetischen quantenkritischen Punkts entdeckt wurde [16]. Bei Normaldruck ordnen die 4*f*-Momente der Ce-Ionen antiferromagnetisch. Wie im Phasendiagramm 4.1 (b) zu sehen, wird diese Ordnung mit zunehmendem hydrostatischen Druck unterdrückt. Der quantenkritische Punkt am Ende des Antiferromagnetismus wird von der supraleitenden Phase verdeckt. Auch der erste Schwer-Fermion-Supraleiter CeCu₂Si₂ befindet sich in der Nähe eines quantenkritischen Punkts [17, 18]. Mittlerweile wurde dieses Verhalten in vielen Antiferromagneten beobachtet. Beispiele hierfür finden sich nicht nur bei anderen Schwer-Fermion-Systemen, sondern auch bei den organischen sowie den kürzlich entdeckten Eisen-Pniktid-Supraleitern. Der verdeckte quantenkritische Punkt zeigt sich in einem ausgeprägten Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten bei Temperaturen oberhalb der Sprungtemperatur. Üblicherweise liegt das T_c -Maximum direkt bei dem kritischen Druck oder Kristallvolumen, an dem die antiferromagnetische Ordnung ohne Supraleitung verschwinden würde. Da hier auch die magnetischen, quantenkritischen Fluktuationen am stärksten sind, geht man allgemein davon aus, dass die unkonventionelle Supraleitung durch diese Fluktuationen erzeugt wird [16].

4.1.2 CeMIn₅ ($M = \text{Co, Rh, Ir}$)

Die maximale kritische Temperatur von CeIn₃ beträgt $T_c \approx 200$ mK. Die Sprungtemperatur kann jedoch auf bis zu 2.3 K gesteigert werden, wenn die elektronische Bandstruktur durch eine Veränderung der Kristallstruktur „zweidimensionaler“ gemacht wird [19, 21, 22, 23, 24]. Hierzu wurden in die kubische Kristallstruktur (siehe Abbildung 4.1 (a)) $M\text{In}_2$ -Schichten eingebaut. M steht für die isoelektronischen Übergangsmetallionen Co, Rh und Ir. Die entlang der *c*-Achse gestapelte, tetragonale Kristallstruktur der entstehenden CeMIn₅-Verbindungen ist in Abbildung 4.2 zusammen mit ihrem Phasendiagramm bei Normaldruck dargestellt. In Tabelle 4.1 sind ihre wesentlichen Eigenschaften zusammengefasst.

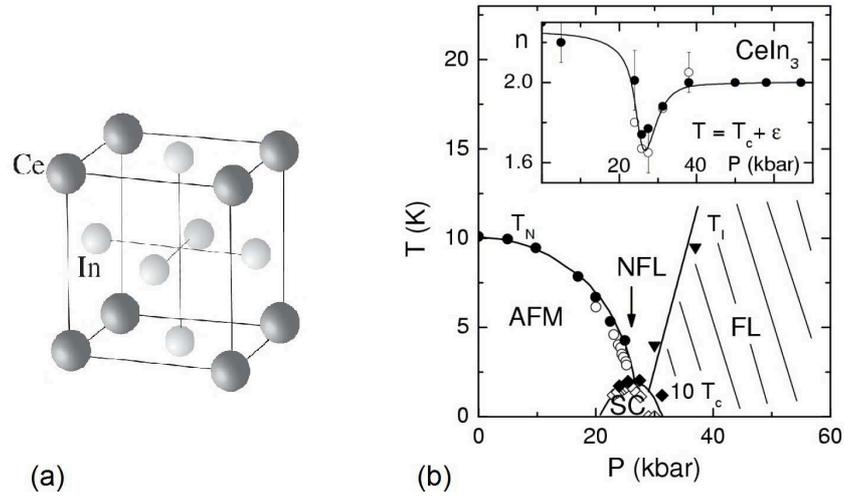


Abbildung 4.1: (a) Kristallstruktur von CeIn_3 . (b) Phasendiagramm von CeIn_3 als Funktion des Kontrollparameters Druck p . T_c ist mit einem Faktor 10 multipliziert. Im Inset ist der Exponent n der Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes $\rho = \rho_0 + A \cdot T^n$ aufgetragen. \bullet ist von Knebel *et al.* [15], \circ und \diamond sind von Mathur *et al.* [16].

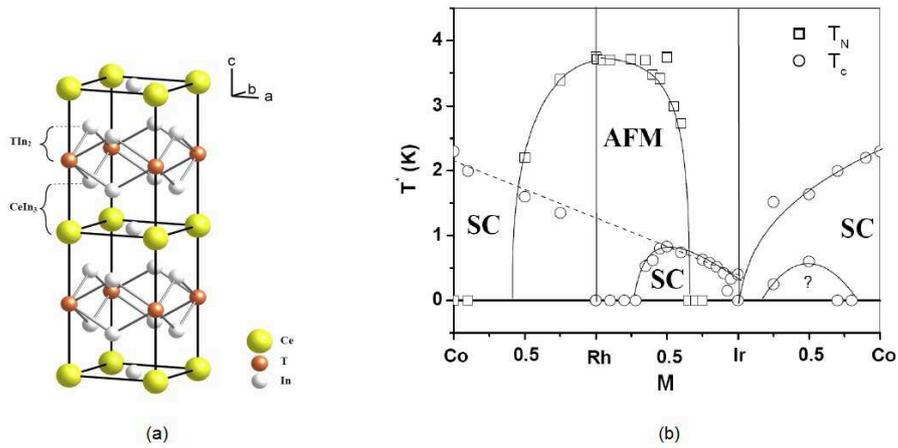


Abbildung 4.2: (a) Kristallstruktur von CeMIn_5 ($M = \text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$). (b) Phasendiagramm von CeMIn_5 ($M = \text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$) als Funktion der Dotierung M bei Nomaldruck [19].

	T_N (K)	T_c (K)	a, b (Å)	c (Å)	c/a	V (Å ³)
CeIn ₃	10	-	4.689	-	1	103.1
CeIrIn ₅	-	0.4	4.668	7.515	1.601	163.67
CeRhIn ₅	3.8	-	4.652	7.542	1.621	163.03
CeCoIn ₅	-	2.3	4.614	7.552	1.637	160.96

Tabelle 4.1: Eigenschaften von CeIn₃ und CeMIn₅ ($M = \text{Co, Rh, Ir}$). Das c/a -Verhältnis zeigt, dass mit abnehmendem Ionenradius von M der zweidimensionale Charakter und somit auch T_c dieser Verbindungen ansteigt. Die Daten sind aus [20] entnommen.

CeIrIn₅ ist vermutlich ein d -Wellen-Supraleiter [25] mit einer Übergangstemperatur von $T_c(p = 0) = 0.4$ K. Die Nähe zu einem quantenkritischen Punkt wird durch Nicht-Fermiflüssigkeitsverhalten in der Suszeptibilität [26], dem elektrischen Widerstand $\Delta\rho = \rho - \rho_0 \propto T^{-1.3}$ [27] und der spezifischen Wärme [28] belegt. Langreichweitige magnetische Ordnung wird nicht beobachtet.

CeRhIn₅ ordnet unter Normaldruck bei $T_N = 3.7$ K antiferromagnetisch [29]. Analog zu CeIn₃ kann mit Druck die magnetische Ordnung unterdrückt werden. Der Endpunkt der magnetischen Ordnung ist ebenfalls von einer supraleitenden Phase umgeben. Dabei gibt es einen Druckbereich, in dem Antiferromagnetismus und Supraleitung koexistieren [30, 31]. Wie im Phasendiagramm 4.2 (b) dargestellt, kann die magnetische Ordnung auch mit chemischem Druck durch das teilweise Ersetzen von Rh durch Co- oder Ir-Ionen unterdrückt werden.

CeCoIn₅ besitzt mit $T_c(p_{cr} = 1.5 \text{ GPa}) \approx 2.6$ K die höchste supraleitende Übergangstemperatur aller bisher untersuchten Ce-basierten Schwer-Fermion-Systeme. Zudem wird CeCoIn₅ im Gegensatz zu vielen anderen unkonventionellen Supraleitern bereits bei Normaldruck unterhalb von $T_c = 2.3$ K supraleitend. Es ist daher für experimentelle Untersuchungen unkonventioneller Supraleitung besonders geeignet.

4.1.3 Supraleitung in CeCoIn₅

Aus Messungen der thermischen Leitfähigkeit [33] und spezifischen Wärme [34] in Abhängigkeit vom Winkel zum angelegten Feld kann geschlossen werden, dass die Supraleitung in CeCoIn₅ unkonventionell ist und einen Ordnungsparameter mit $d_{x^2-y^2}$ -Symmetrie besitzt. Da die Gesamtwellenfunktion antisymmetrisch sein muss, sind die Cooperpaare im Singulett-Zustand. Die spezifische Wärmeanomalie ΔC bei T_c ist ungewöhnlich groß und deutet auf eine stark koppelnde Supraleitung mit $\Delta C/C_n|_{T_c} \approx 4.5$ (BCS-Wert: 1.43) hin, wobei C_n der Wert der spezifischen Wärme bei T_c im normalleitenden Zustand ist. In kleinen Magnetfeldern verhält sich CeCoIn₅ wie ein normaler Typ II-Supraleiter, d.h. das Feld dringt in der Form von Flussschläuchen in die Probe ein. Das obere kritische Feld, bei dem die Supraleitung zerstört wird, spiegelt die Anisotropie der elektronischen Struktur wider. $B_{c2}^0 = B_{c2}(T \rightarrow 0)$ beträgt 5 T für $B \parallel c$ und ungefähr 12 T für $B \perp c$. In Abbildung 4.3 sind die entsprechenden (B, T) -Phasendiagramme abgebildet.

Normalerweise wird die Supraleitung am kritischen Feld B_{c2}^0 durch die Dich-

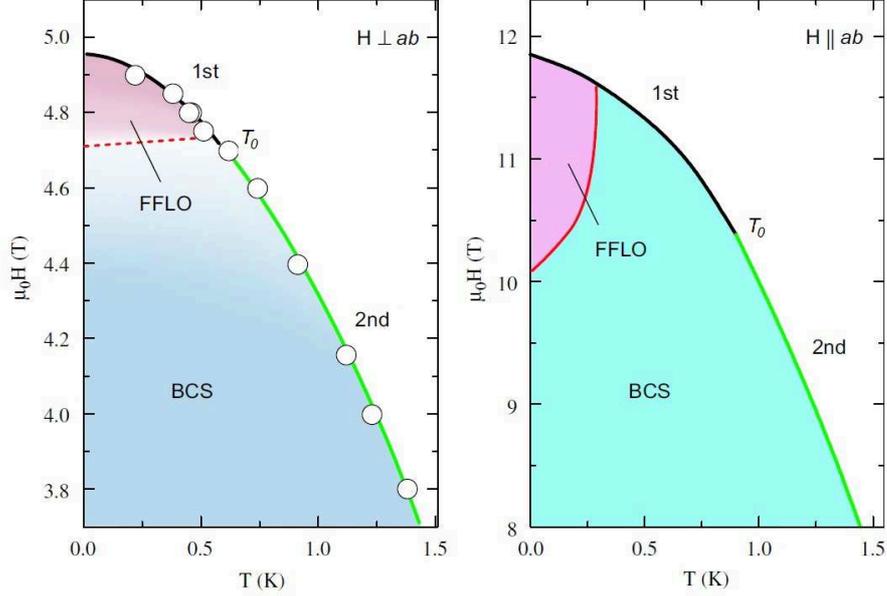


Abbildung 4.3: Phasendiagramm von CeCoIn_5 als Funktion des Magnetfeldes B für (a) $B \parallel c$ und (b) $B \parallel a$ [32].

te der normalleitenden Flussschläuche zerstört. In diesem Fall spricht man vom Orbital-Limit (B_{c2}^{orbital}). Es besteht allerdings auch die Möglichkeit, dass das externe Magnetfeld die antiparallelen Spins der Cooper-Paare aufbricht und dadurch die Supraleitung zerstört wird. Das obere kritische Feld wird dann durch das sogenannte Pauli-Limit (B_{c2}^{Pauli}) begrenzt. Falls der Einfluss des Pauli-Limits dominiert, d.h. wenn der Maki-Parameter $\alpha_{\text{Maki}} = \sqrt{2}B_{c2}^{\text{orbital}}/B_{c2}^{\text{Pauli}} \geq 1$ [35], wechselt die supraleitende Phasengrenze an einem trikritischen Punkt von einem Übergang zweiter Ordnung zu einem Übergang erster Ordnung. Wenn zudem $\alpha_{\text{Maki}} \geq 1.8$ und die mittlere freie Weglänge l der Ladungsträger größer als die Kohärenzlänge der Cooper-Paare ξ ist, kann sich in der Nähe von B_{c2}^0 ein neuartiger, räumlich inhomogener supraleitender Zustand ausbilden, die sogenannte Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov-Phase (FFLO-Phase) [36, 37]. Da in diesem Zustand Cooper-Paare einen effektiven Impuls ($k \uparrow, -k + q \downarrow$) besitzen, ist der Ordnungsparameter räumlich mit abwechselnd normal- und supraleitenden Bereichen moduliert.

In CeCoIn_5 macht eine Abschätzung des Orbital- und Pauli-Limits [39] deutlich, dass B_{c2}^0 in erster Linie durch das Pauli-Limit begrenzt ist. In Übereinstimmung mit dem hohen Maki-Parameter von $\alpha_{\text{Maki}} \geq 3.5$ wurde für beide Feldrichtungen ein trikritischer Punkt bei $T_0 \approx 0.7 \text{ K}$ beobachtet [40]. Da zudem l mit mehreren 1000 \AA deutlich größer als $\xi_a = 82 \text{ \AA}$ bzw. $\xi_c = 32 \text{ \AA}$ ist [41, 42], sind anscheinend alle Kriterien für die Entstehung eines FFLO-Zustands erfüllt. Wie im Phasendiagramm 4.3 zu sehen, existiert in CeCoIn_5 tatsächlich eine Hochfeld-Phase nahe B_{c2}^0 , die lange als möglicher Kandidat für einen FFLO-Zustand gehandelt wurde [43, 44]. Neuere Neutronenstreuexperimente [38] und theoretische Arbeiten [45] haben jedoch eine Koexistenz von

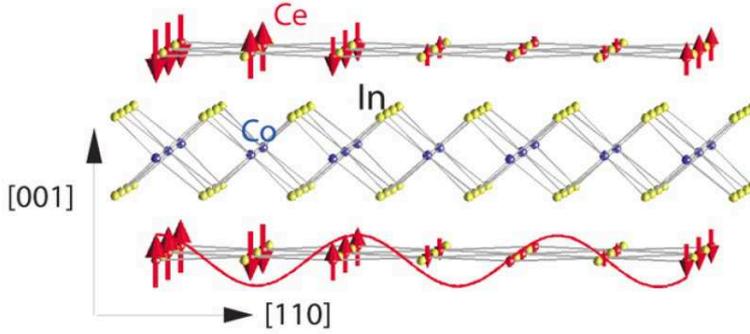


Abbildung 4.4: Magnetische Struktur der Q-Phase von CeCoIn_5 bei $T = 60$ mK und $B = 11$ T. Die roten Pfeile zeigen die Richtung der statischen magnetischen Momente der lokalisierten Ce^{3+} -Ionen an. Die durchgezogene rote Linie bildet die auf die (hhl) -Ebene projizierte Amplitude der magnetischen Momente entlang der c -Achse ab [38].

Supraleitung und magnetischer Ordnung in Form einer Spin-Dichte-Welle gefunden, die mit der klassischen FFLO-Phase nicht vereinbar ist. Für die neue Ordnung wurde der Name Q-Phase etabliert. In Abbildung 4.4 ist die magnetische Struktur der Phase schematisch dargestellt.

4.1.4 Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten in CeCoIn_5

In CeCoIn_5 ist für $p \geq 0$ keine magnetische Ordnung vorhanden. Die Nähe zu einer solchen Ordnung offenbart sich jedoch in den antiferromagnetischen Fluktuationen, die mit Neutronenstreuexperimenten in der Q-Phase beobachtet wurden [38]. Eine langreichweitige antiferromagnetische Ordnung kann durch negativen chemischen Druck durch Dotieren mit Cd erzeugt werden. Wird eine Cd-dotierte Probe hydrostatischem Druck ausgesetzt, lässt sich der Antiferromagnetismus unterdrücken und die Supraleitung wieder herstellen. Das resultierende (p, T) -Phasendiagramm spiegelt im Wesentlichen die Druckabhängigkeit von CeRhIn_5 wider (siehe Abbildung 4.5).

Wie zu erwarten macht sich in CeCoIn_5 die Nähe zu einem quantenkritischen Punkt bereits bei Normaldruck durch Abweichungen vom üblichen Fermi-Flüssigkeitsverhalten bemerkbar. Überraschenderweise nehmen diese Abweichungen jedoch mit zunehmendem Feld zu und erreichen ihr Maximum am kritischen Feld B_{c2}^0 für $B \parallel c$. Diese Abweichungen werden unter anderem in der spezifischen Wärme mit $C/T \propto -\log(T)$ [47], dem linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_c [48], der thermischen Leitfähigkeit κ [49] und dem elektrischen Widerstandsverlauf mit $\rho = \rho_0 + A \cdot T$ [50] beobachtet. Bei genaueren Untersuchungen in der Nähe von B_{c2}^0 fällt auf, dass sowohl in $\alpha_c(T)$ als auch in $\kappa(T)$ und $\rho(T)$ das kritische Skalierungsverhalten bis $T_{cr} \approx 300$ mK der HMM-Theorie folgt, aber bei tieferen Temperaturen mit einem flacheren Verlauf davon abweicht. Diese Abweichung wurde einem Übergang von zwei- zu dreidimensionalen Fluktuationen zugeschrieben [48, 49].

Da der supraleitende Übergang bei B_{c2}^0 diskontinuierlich ist, kann der quantenkritische Punkt nicht durch das Verschwinden der Supraleitung entstehen.

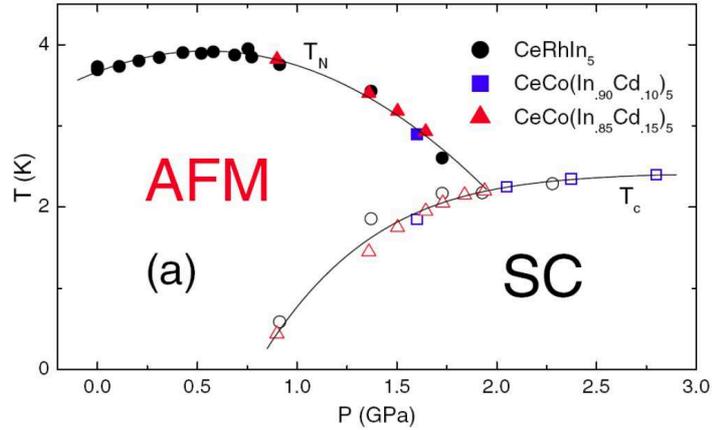


Abbildung 4.5: Vergleich der Phasendiagramme von CeRhIn_5 , $\text{CeCo}(\text{In}_{0.9}\text{Cd}_{0.1})_5$ und $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$. $\text{CeCo}(\text{In}_{0.9}\text{Cd}_{0.1})_5$ wurde um $+0.9$ GPa und $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$ um $+1.7$ GPa verschoben, um die unterschiedlichen negativen Druckeffekte der Cd-Konzentrationen zu berücksichtigen [46].

Über die exakte Lage des quantenkritischen Punkts wurden widersprüchliche Ergebnisse veröffentlicht: Hall-Effekt-Messungen weisen auf einen quantenkritischen Punkt innerhalb der supraleitenden Phase am Phasenübergang zweiter Ordnung zur Q-Phase hin [47, 51]. Dies impliziert, dass Fluktuationen der Q-Phase für das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten verantwortlich sind. Im Gegensatz dazu deuten Messungen des elektrischen Widerstands unter hydrostatischem Druck [50] auf einen quantenkritischen Punkt bei negativem Druck oder eine druck- und feldabhängige quantenkritische Linie hin, die durch Supraleitung verdeckt wird [52].

4.1.5 Motivation

Da CeCoIn_5 ein Schwer-Fermion-System ist, reagieren seine Eigenschaften sehr empfindlich auf Druck. Daher sind thermische Ausdehnungsmessungen besonders geeignet, um die Lage des quantenkritischen Punkts und das kritische Skalierungsverhalten bei B_{c2}^0 zu untersuchen. Diese Messungen bieten zudem die Möglichkeit die uniaxiale Druckabhängigkeit von T_c zu bestimmen. Die starke Abhängigkeit der Supraleitung von anisotropen Verzerrungen der Kristallstruktur zeigt sich bereits im Phasendiagramm in Abbildung 4.2 (b). Entlang der Mischungsreihe Co-Rh-Ir nimmt das c/a -Verhältnis der tetragonalen Struktur und gleichzeitig das maximal erreichbare T_c stetig ab (siehe die gestrichelte Linie). Um diese Fragen zu klären, wurden im Rahmen dieser Arbeit Messungen der thermischen Ausdehnung und der Magnetostriktion an CeCoIn_5 und $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ -Einkristallen durchgeführt.

4.1.6 Proben

Die Proben wurden von E. Bauer¹ hergestellt. Die Ausgangsmaterialien wurden im atomaren Verhältnis von Ce:Co:In = 1:1:20 in einem Schmelztiegel, der mit einem Quarzrohr verschlossen war, auf $T = 1050^\circ\text{C}$ erhitzt. In der Abkühlphase wurden die Schmelze zunächst schnell auf $T = 750^\circ\text{C}$ abgeschreckt und anschließend mit einer Rate von $0.5^\circ\text{C}/\text{Stunde}$ auf $T = 450^\circ\text{C}$ langsam abgekühlt. Das Flussmittel Indium wurde mit einer Zentrifuge entfernt. Die Einkristalle sind aufgrund ihrer zweidimensionalen Struktur schichtartig aufgebaut: Sie sind entlang der c -Achse ungefähr 0.5 mm dick und entlang der anderen Achsen typischerweise 2 bis 3 mm lang. Zur weiteren Charakterisierung der Proben wurden spezifische Wärme- und Magnetisierungsmessungen durchgeführt [2]. Diese zeigen eine gute Übereinstimmung mit der Literatur [53, 39, 54].

4.2 Messungen $B \parallel c$

4.2.1 Bisherige Messungen

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen an CeCoIn_5 sind eine Fortsetzung meiner Diplomarbeit [2]. Dort wurden bei hohen Feldern für $T \rightarrow 0$ ein negativer, divergierender Beitrag in α_c gemessen. Da $\alpha_i \propto -\partial S/\partial p_i$, muss im Widerspruch zu den Messungen α_i für $T \rightarrow 0$ gegen Null gehen. Zudem wurde in Magnetostruktionsmessungen entlang der a -Achse ausgeprägte Quantenoszillationen beobachtet. Da die Oszillationen auch bei höheren Temperaturen von mindestens $T = 4\text{ K}$ sichtbar waren, konnten sie nicht von schweren Quasiteilchen herrühren, da die Amplitude der Quantenoszillationen bei endlichen Temperaturen exponentiell mit m^* abnimmt. Die naheliegendste Erklärung für die Anomalien ist eine Fremdphase wie beispielsweise Reste des Indiumflussmittels, das bei der Kristallzüchtung verwendet wurde. In der Tat wurde in Magnetisierungsmessungen Indium in den Proben gefunden, dessen Konzentration mit der Stärke der Anomalien skalierte. Für die nachfolgenden Messungen wurden Proben mit einem vernachlässigbaren Indiumüberschuss von weniger als 3% ausgewählt. Die beschriebenen Anomalien konnten in diesen Proben nicht beobachtet werden.

4.2.2 Thermische Ausdehnung

Für $B \parallel c$ wurden thermische Ausdehnungsmessungen zwischen $T = 40\text{ mK}$ und 3 K bei konstanten Magnetfeldern von bis zu 14 T durchgeführt. In Abbildung 4.6 sind die gemessenen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten für die a - und c -Achse als Funktion der Temperatur aufgetragen. Der resultierende Volumenausdehnungskoeffizient $\alpha_V = 2\alpha_a + \alpha_c$ wird in Abbildung 4.7 gezeigt. Um Abweichungen vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten $\alpha_i \propto T$ deutlich herauszustellen, wurden die Koeffizienten in den drei Abbildungen durch T geteilt.

Ein Vergleich der beiden linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten offenbart ihre anisotrope Temperaturabhängigkeit, die sich besonders in den unterschiedlichen uniaxialen Druckabhängigkeiten von T_c widerspiegelt. Darauf

¹Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico 87545, USA

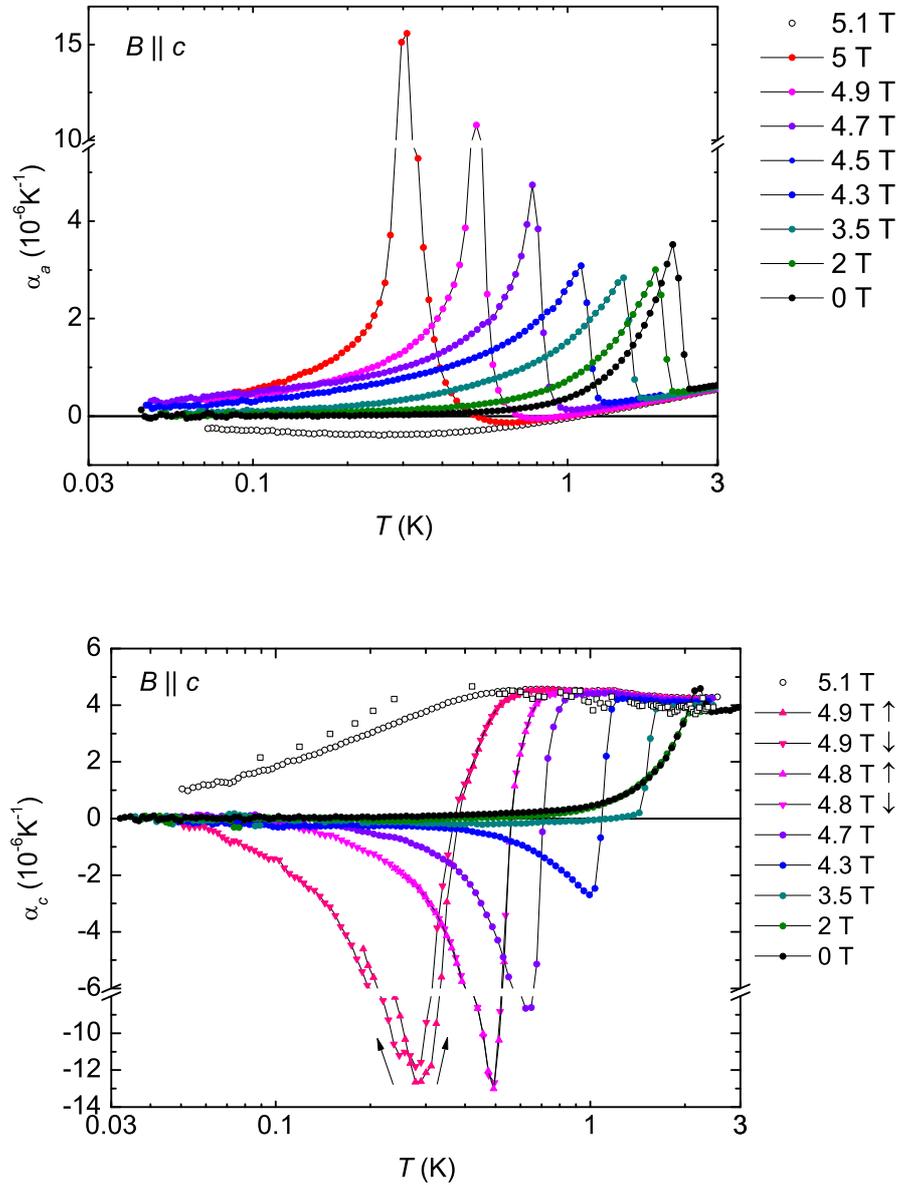


Abbildung 4.6: Die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_a und α_c als Funktion der Temperatur in halblogarithmischer Darstellung. Der Wechsel zu einem Phasenübergang 1. Ordnung ist deutlich in der Hysterese der Aufwärm- und Abkühlkurven in α_c/T erkennbar. Die offenen Symbole (\square) sind α_c -Messungen von Donath *et al.* [48].

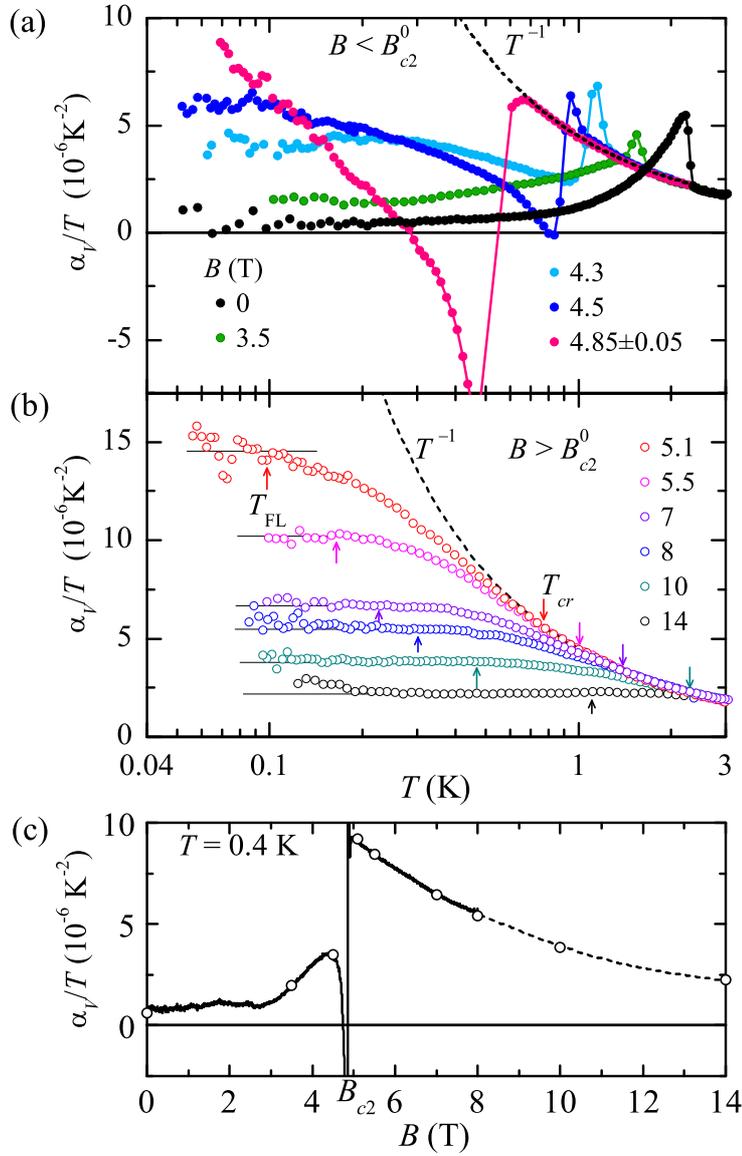


Abbildung 4.7: Der Koeffizient der thermischen Volumenausdehnung α_V/T in halblogarithmischer Auftragung für Felder $B < B_{c2}^0$ (a) und $B > B_{c2}^0$ (b). Um eine bessere Auflösung zu erzielen, wurden verschiedene Proben für α_a und α_c verwendet. Da die Proben leicht unterschiedliche B_{c2}^0 haben, sind die Daten für $B = 4.85$ T aus Messungen bei $B = 4.8$ T und 4.9 T zusammengesetzt, die das gleiche T_c haben. Die gestrichelte Linie zeigt das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten nach der HMM-Theorie. (c) α_V/T als Funktion von B bei $T = 0.4$ K. Die durchgezogene Linie stammt aus Magnetostruktionsmessungen, die offenen Symbole (\circ) von thermischen Ausdehnungsmessungen. Die gestrichelte Linie ist eine Hilfslinie.

kommen wir in Abschnitt 4.2.7 zurück. Die wesentlichen gemeinsamen Merkmale finden sich in der Volumenausdehnung, die im folgenden diskutiert werden soll.

Im Nullfeld ist das Einsetzen der Supraleitung bei $T_c = 2.3\text{ K}$ durch die typische Anomalie eines Phasenübergangs 2. Ordnung gekennzeichnet. Für tiefere Temperaturen geht α_V/T wegen der supraleitenden Lücke im Energiespektrum der Quasiteilchen asymptotisch gegen Null. Ein angelegtes Magnetfeld verschiebt den Phasenübergang zu kleineren Temperaturen. Gleichzeitig wächst der absolute Betrag von α_V/T bei tiefen Temperaturen an und beginnt schließlich oberhalb von $B \approx 4.5\text{ T}$ für $T \rightarrow 0$ zu divergieren. Wegen des Fermi-Flüssigkeitsverhaltens im Zentrum der Flussschläuche würde man normalerweise in Typ II Supraleitern ein konstantes α_V/T für $T \rightarrow 0$ erwarten.

Möglicherweise wird die Divergenz durch quantenkritische Fluktuationen der normalleitenden Flussschläuche hervorgerufen. Dieser Erklärungsversuch scheint von Messungen der spezifischen Wärme bestätigt zu werden: Im Nullfeld bleibt die Entropie zwischen normal- und supraleitendem Zustand nur erhalten, wenn als Untergrund ein Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten mit $C/T \propto -\log T$ angenommen wird [53, 55]. Eine andere Erklärung bieten die Fluktuationen bzw. die Temperatur- und Druckabhängigkeit von B_{c2} . Im Abschnitt über den Grüneisenparameter in CeCoIn_5 werden diese im einzelnen diskutiert.

Wenn das angelegte Magnetfeld bei B_{c2}^0 die Supraleitung vollständig unterdrückt hat, divergiert α_V/T nahezu im gesamten untersuchten Temperaturbereich von $T \approx 90\text{ mK}$ bis 3 K . In diesem Feldbereich von $\approx 5.1\text{ T}$ erreicht α_V/T seine höchsten Werte².

Für höhere Felder findet man bei tiefen Temperaturen einen mit dem Feld anwachsenden Fermi-Flüssigkeitsbereich. Abgesehen vom negativen Peak des Phasenübergangs erster Ordnung, ist α_V/T im gesamten gemessenen Feld- und Temperaturbereich positiv. Dies ist ein unerwartetes Ergebnis, da das Fehlen eines Vorzeichenwechsels in der thermischen Ausdehnung bedeutet, dass die Entropie S kein Maximum als Funktion von p bei B_{c2}^0 besitzt. Stattdessen wächst die Entropie unter negativem Druck oder mit größerem Kristallvolumen an. Bei B_{c2}^0 spricht der fehlende Vorzeichenwechsel für einen quantenkritischen Punkt bei negativem Druck und gegen einen quantenkritischen Punkt bei $p = 0$.

4.2.3 Druckabhängigkeit charakteristischer Energieskalen

Grüneisenparameter

Der Grüneisenparameter Γ eröffnet eine weitere Möglichkeit die Existenz eines quantenkritischen Punkts zu überprüfen. Für Berechnung von Γ wurden spezifische Wärme- sowie Kompressibilitätsdaten aus der Literatur verwendet [47, 40, 39, 57]. Die spezifische Wärme bei $B = 10\text{ T}$ und 14 T wurde zwischen $T = 0.4\text{ K}$ und 3 K mit einem Physical Properties Measurements System von der Firma Quantum Design gemessen. Abbildung 4.8 zeigt den resultierenden Grüneisenparameter bei verschiedenen konstanten Feldern. $\Gamma(T)$ erreicht mit 80 die für Schwer-Fermion-Systeme typischen hohen Werte [58]. Wie bereits erwähnt, zeichnen sich Schwer-Fermion-Systeme durch eine hohe

²Das $\alpha_c(B)/T$ -Maximum bei einer konstanten Temperatur von $T = 100\text{ mK}$ ist bei einem Feld $B > B_{c2}^0$, da anscheinend supraleitenden Fluktuationen bereits oberhalb von B_{c2}^0 einsetzen. Dieser Effekt ist besonders gut in Widerstandsmessungen zu beobachten [56]

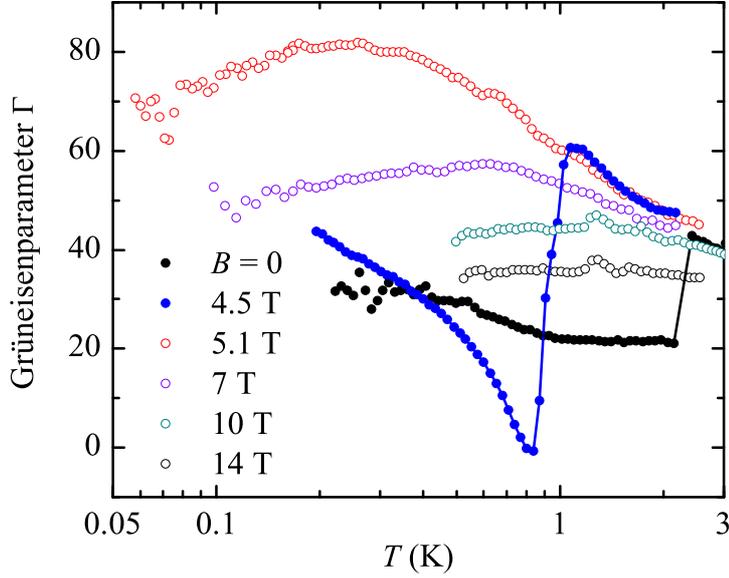


Abbildung 4.8: Der Grüneisenparameter Γ in halblogarithmischer Auftragung. Die Daten der spezifischen Wärme mit abgezogenem Hyperfeinbeitrag der Kernmomente für $B < 10$ T stammen aus [47], [40] und [39]. Unter der Annahme $\kappa_S \approx \kappa_T$ wird $\kappa_S = 1.31 \times 10^{-2} \text{ GPa}^{-1}$ aus [57] verwendet.

Druckabhängigkeit ihrer charakteristischen Energieskalen aus. Genauso wie α_V besitzt Γ für alle Felder das gleiche positive Vorzeichen. Am kritischen Feld $B_{c2}^0 \approx 5.1$ T findet man die größten Γ -Werte. Mit abnehmender Temperatur wächst hier $\Gamma(T)$ zunächst an, beginnt aber unterhalb von $T \approx 260$ mK wieder zu sinken. Die großen Werte und die anfängliche Divergenz von $\Gamma(T)$ deuten auf einen druckinduzierten quantenkritischen Punkt in der Nähe von B_{c2}^0 hin. Das Ausbleiben der Divergenz bei tiefen Temperaturen spricht jedoch gegen einen quantenkritischen Punkt bei Normaldruck und B_{c2}^0 .

Druckabhängigkeit von T_c

Aus den Anomalien in α_a , α_c und C bei T_c wurde im Bereich des Phasenübergangs 2. Ordnung mit Hilfe der Ehrenfestrelation die uniaxialen Druckabhängigkeiten der supraleitenden Sprungtemperatur bestimmt. Abbildung 4.9 zeigt dT_c/dp_a und dT_c/dp_c als Funktion von B . Bei kleinen Feldern sind beide uniaxialen Druckabhängigkeiten positiv. Mit zunehmendem B nimmt dT_c/dp_c stetig ab und wird schließlich negativ. Obwohl dT_c/dp_a im ganzen Feldbereich positiv bleibt, führt die starke Abnahme von dT_c/dp_c zu einem Vorzeichenwechsel der hydrostatischen Druckabhängigkeit von T_c , $dT_c/dp = 2dT_c/dp_a + dT_c/dp_c$, bei einem Feld von $B_+ = 4.1 \pm 0.2$ T. Dieses Verhalten ist in guter Übereinstimmung mit Experimenten unter hydrostatischem Druck [59].

Wenn für $B \leq B_{c2}^0$ die Supraleitung die dominierende Energieskala von CeCoIn_5 ist, gilt $E^* \propto T_c$. Der Grüneisenparameter sollte dann durch $-d \ln T_c / d \ln V = (T_c \kappa_S)^{-1} dT_c / dp$ für $T \ll T_c$ bestimmt sein. Im Feldbereich

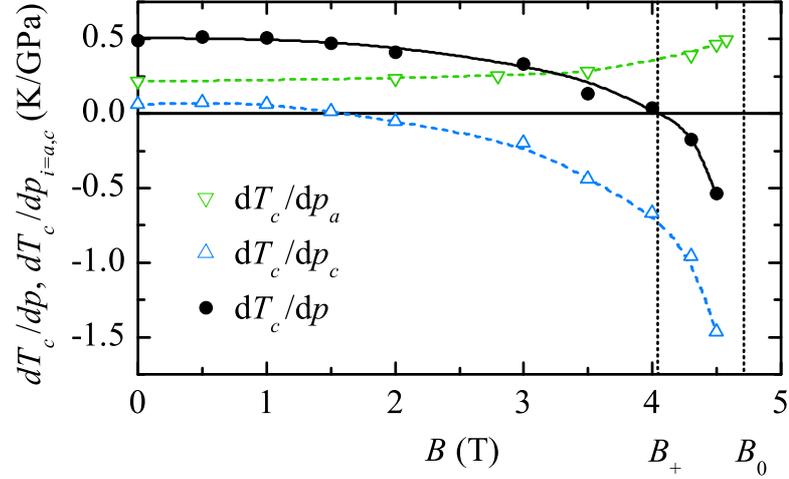


Abbildung 4.9: Uniaxiale und hydrostatische Druckabhängigkeiten von T_c als Funktion des Feldes. Die durchgezogenen Linien sind Hilfslinien.

$B_+ < B < B_{c2}$ ist dT_c/dp negativ. Dies sollte für die Supraleitung einen negativen Grüneisenparameter erwarten lassen. Im Experiment ist Γ für tiefe Temperaturen jedoch immer positiv. Aus diesem Grund können die Druckabhängigkeit von B_{c2} oder Fluktuationen der Q-Phase nicht für das beobachtete Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten verantwortlich sein.

4.2.4 Skalierungsverhalten von α_V für $B \geq B_{c2}^0$

Wenn man den Temperaturverlauf von α_V/T für $B \geq B_{c2}^0$ in Abbildung 4.7 (b) näher betrachtet, fällt auf, dass sich das kritische Verhalten unterhalb einer spezifischen Temperatur T_{cr} verändert. Oberhalb von T_{cr} ist $\alpha_V/T \propto T^{-1}$ und damit kompatibel zur HMM-Theorie quantenkritischer Punkte in dreidimensionalen Systemen. Unterhalb von T_{cr} ist die Divergenz dagegen schwächer als erwartet ausgeprägt. Mit zunehmendem B setzt die Abweichung vom kritischen Verhalten bei immer höheren Temperaturen T_{cr} ein. Wie bereits erwähnt (vergleiche Tabelle 3.1), wurde versucht die Änderung mit einem Übergang von zwei- zu dreidimensionalen kritischen Fluktuationen zu erklären [48]. In diesem Modell sollte man für α_V/T drei verschiedene Temperaturabhängigkeiten deutlich unterscheiden können: Für $T > T_{cr}$ wird $\alpha_V/T \propto T^{-1}$ erwartet. Wenn mit abnehmendem T bei T_{cr} die Kohärenzlänge der kritischen Fluktuationen den Abstand der CeIn₃ Schichten erreicht, sollten die Fluktuationen dreidimensional und somit $\alpha_V/T \propto T^{1/2}$ werden. Bei noch tieferen Temperaturen würde das Fermi-Flüssigkeitsverhalten bei T_{FL} einsetzen und α_V/T einen konstanten Wert annehmen. Da T_{cr} in diesem Erklärungsmodell im wesentlichen durch den Abstand der CeIn₃-Schichten gegeben ist, müssten T_{cr} und T_{FL} eine klar unterscheidbare Feldabhängigkeit aufweisen.

Um diese Erklärung mit unseren Messungen zu überprüfen, wurden die α_V/T -Daten für $B > B_{c2}^0$ mit T/T_{cr} aufeinander skaliert (siehe Abbil-

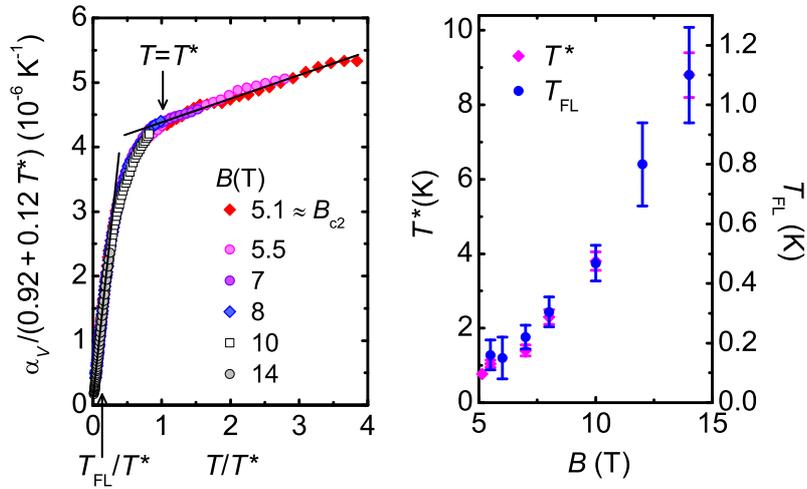


Abbildung 4.10: (a) Die thermische Volumenausdehnung α_V/T für $B \geq B_{c2}$. Die Kurven wurden mit den Parametern T_{cr} aufeinander skaliert. (b) Die Feldabhängigkeit von T_{cr} und T_{FL} in Abhängigkeit des Magnetfeldes.

Abbildung 4.10 (a)). Erstaunlicherweise fallen sie auf eine gemeinsame Kurve zusammen. Folglich müssen T_{cr} und T_{FL} proportional zueinander sein und die gleiche Feldabhängigkeit besitzen (siehe Abbildung 4.10 (b)). Da somit T_{cr} keine unabhängige Energieskala ist, kann der Übergang zu dreidimensionalen Fluktuationen als Erklärung ausgeschlossen werden. Die Skalierungsdarstellung in Abbildung 4.10 (a) zeigt deutlich, dass sich bei T_{cr} der stetige Übergang zum Fermi-Flüssigkeitszustand ankündigt und daher $T_{cr} \propto T_{FL}$ sein muss. Da für $B = B_{c2}^0$ der quantenkritische Punkt bei negativen Drücken liegt, ist die Änderung im kritischen Verhalten bereits hier beobachtbar.

4.2.5 (B, T) -Phasendiagramm für $B \parallel c$

Die ermittelten charakteristischen Temperaturen T_c und T_{FL} (bzw. T_{cr}) wurden in einem (B, T) -Phasendiagramm von CeCoIn_5 bei Normaldruck zusammengefasst (siehe Abbildung 4.11 (a)). Im Rahmen des experimentellen Fehlers stimmen die T_{FL} -Werte der thermischen Ausdehnung mit Messungen der spezifischen Wärme [47], des elektrischen Widerstandes [62, 49] und des Hall-Effekts überein. Geht man von einer linearen Feldabhängigkeit von T_{FL} aus, verschwindet T_{FL} bei einem Feld von $B_{cr} = 4.1 \pm 0.1 \text{ T}$ weit unterhalb von B_{c2}^0 . Dieses Verhalten wird von Literaturdaten unterstützt: Das extrapolierte Maximum des Magnetowiderstandes $\rho(B)$ und das Minimum des differentiellen Hall-Widerstandes gehen ungefähr beim gleichen Feld gegen Null [60, 61]. Daher wurde bereits von Singh *et al.* [61] ein quantenkritischer Punkt bei B_{cr} postuliert. Ein Vergleich mit der Druckabhängigkeit von T_c zeigt, dass B_{cr} mit dem Feld B_+ übereinstimmt. Dies legt nahe, dass bei Normaldruck der quantenkritische Punkt von der Supraleitung verdeckt ist und bei dem Feld $< B_{c2}^0$ liegt, an dem $T_c(p)$ maximal ist.

Der scheinbare Widerspruch zwischen einem quantenkritischen Punkt, der

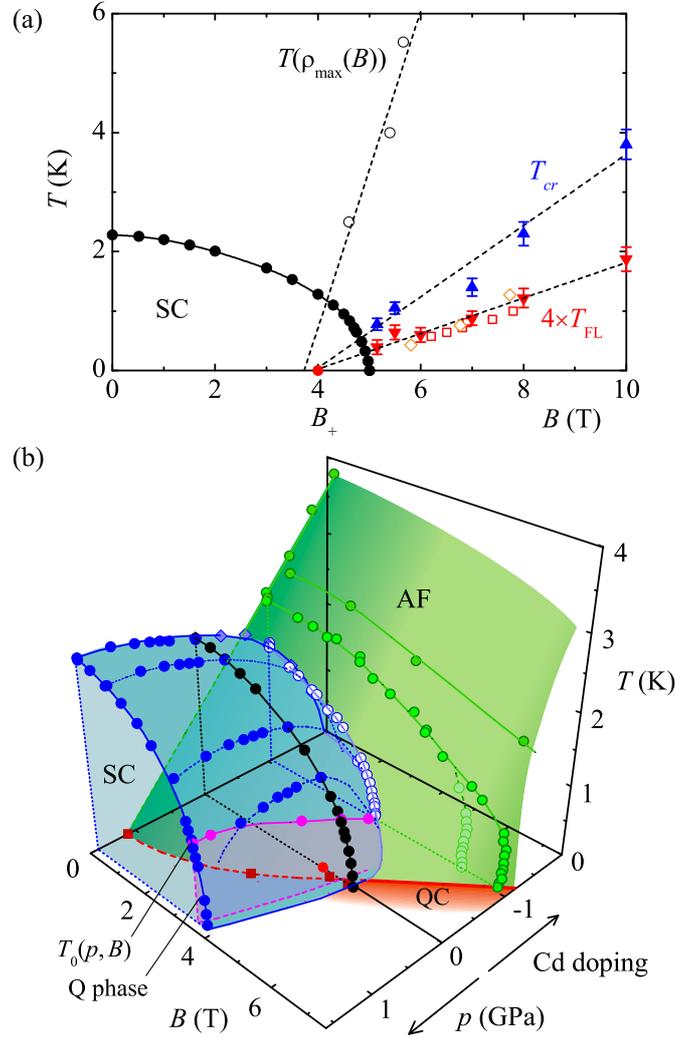


Abbildung 4.11: (a) Das (B, T) -Phasendiagramm von CeCoIn_5 bei Normaldruck zusammengestellt aus den thermischen Ausdehnungsmessungen mit T_c (schwarze Punkte), dem Beginn des Fermi-Flüssigkeitsverhalten T_{FL} und dem Wechsel im kritischen Verhalten T_{cr} . Zusätzlich werden aus der Literatur die Daten des Maximums des Magnetowiderstands $T(\rho_{\text{max}}(B))$ [60] und T_{FL} aus Hall-Effekt- (\square , [61]) und Widerstandsmessungen gezeigt (\diamond , [62]). (b) Hypothetisches (p, B, T) Phasendiagramm von CeCoIn_5 . Die Daten aus (a) wurden durch Literaturdaten unter hydrostatischem Druck (\bullet [52, 54, 63, 64]) und unter negativem chemischen Druck an $\text{CeCoIn}_{5-x}\text{Cd}_x$ ergänzt (\bullet und \circ [65, 66, 67]). Aufgrund der unterschiedlichen Probenqualität und variierenden T_c -Definitionen wurden die Daten so skaliert, dass sie dort wo sie zusammenreffen übereinstimmen. B_+ (\blacksquare), das trikritische Feld B_0 [59] und der Ursprung des Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhaltens (\blacksquare [52]) wurden auf die $T = 0$ Ebene projiziert.

sich bei $p = 0$ und B_+ oder bei einem negativen Druck und B_{cr}^0 befindet, kann mit einer quantenkritischen Linie, die durch die Supraleitung abgeschirmt wird, auf einfache Weise gelöst werden. Eine solche Linie wird auch durch die thermischen Ausdehnungsmessungen bei höheren Feldern unterstützt, da alle Kurven oberhalb von T_c bzw. T_{FL} in das gleiche quantenkritische Verhalten münden. Erste Anzeichen einer p - und B -abhängigen quantenkritischen Linie wurden in Widerstandsmessungen unter hohem Druck von Ronning *et al.* [52] gefunden.

Um zu prüfen, ob diese Messungen mit den Druckabhängigkeiten von T_c und dem Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten der hier vorgestellten Messungen übereinstimmen, wurde das Phasendiagramm von Abbildung 4.11 (a) mit Literaturdaten zu endlichen Drücken erweitert und in Abbildung 4.11 (b) abgebildet. Hierbei ist negativer Druck, wie oben beschrieben, durch das Ersetzen von In durch Cd erzeugt worden. Experimente unter hydrostatischen Druck an $\text{CeCoIn}_{5-x}\text{Cd}_x$ zeigen, dass eine Cd-Konzentration von 5% einem Druck von -0.7 GPa entspricht [46]. Mit zunehmender Cd-Konzentration wird die Supraleitung unterdrückt und eine langreichweitige antiferromagnetische Ordnung entsteht. Eine lineare Extrapolation der Néel-Temperatur zu positiven Drücken zeigt, dass der Antiferromagnetismus bei dem Druck unterdrückt wird, an dem T_c ein Maximum aufweist. Dies wird häufig in unkonventionellen Supraleitern nahe einer antiferromagnetischen Phase beobachtet und wird normalerweise als Hinweis darauf gewertet, dass Spinfluktuationen den Paarungsmechanismus der Cooperpaare bilden [68, 69]. Wie in Abbildung 4.11 in der Ebene $T = 0$ gezeigt wird, folgt das Maximum der Supraleitung mit zunehmendem B dem Ursprung des Nicht-Fermiflüssigkeitsverhaltens bis es bei $p = 0$ ein Feld nahe B_+ erreicht. Für höhere Felder, insbesondere bei B_{c2}^0 , setzt sich die Linie in Übereinstimmung zu unseren Ergebnissen zu negativen Drücken fort.

Im Gegensatz zum p - und B -abhängigen Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten folgt der trikritische supraleitende Übergang und der Beginn der Q-Phase dem oberen kritischen Feld $B_{c2}^0(p, B)$ und entfernt sich unter Druck von der quantenkritischen Linie. Aus diesem Grund kann weder der trikritische Punkt noch die Q-Phase für das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten verantwortlich sein. Auf der anderen Seite liegen die quantenkritische Linie und die T_c -Maxima bei ähnlichen Feldern. Das quantenkritische Verhalten scheint daher von der Phasengrenze zur antiferromagnetischen Ordnung herzuführen.

4.2.6 Die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten

Nachdem die thermische Ausdehnung des Volumens behandelt wurde, sollen nun die Beiträge entlang der a - und c -Achse diskutiert werden. In den Abbildungen 4.6 sind die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von CeCoIn_5 zu sehen. Im Nullfeld ist α_c im supraleitenden Zustand positiv. Mit zunehmendem Feld ändert sich jedoch sein Vorzeichen, während α_a positiv bleibt. Das Vorzeichen wird durch die uniaxialen Druckabhängigkeiten von T_c bestimmt, die in Abbildung 4.9 dargestellt sind.

Beachtenswerterweise sind die beiden linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten am kritischen Feld nicht proportional zueinander. Dies wird besonders bei $T \approx 1.5\text{ K}$ deutlich (vgl. Abbildungen 4.6). Hier weist α_a einen Vorzeichenwechsel als Funktion der Temperatur auf, während α_c nahezu konstant bleibt. Die einzelnen Kristallachsen sind über das elastische Gitter miteinander

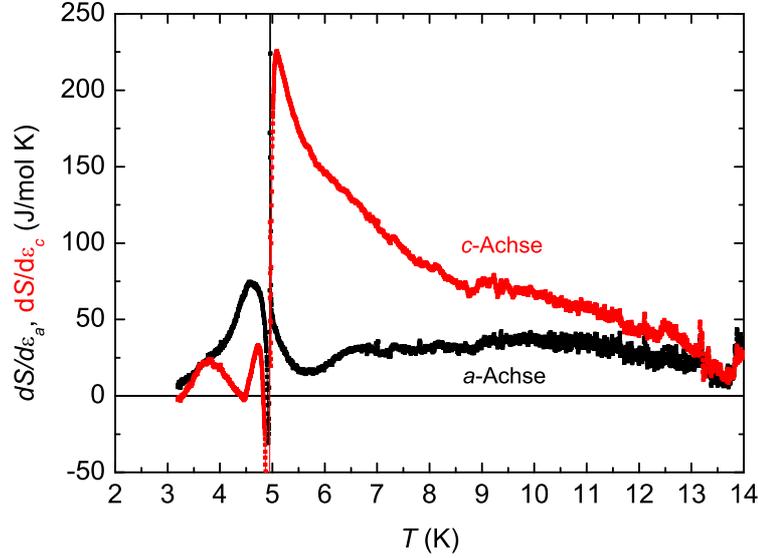


Abbildung 4.12: Uniaxiale Dehnungsabhängigkeiten der Entropie $dS/d\epsilon_i$ als Funktion des Feldes bei 100 mK. Die elastischen Konstanten sind aus [70] entnommen.

gekoppelt. Wenn das System durch eine einzige charakteristische Energieskala bestimmt wird, müssen daher die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten aller Achsen zueinander proportional sein. Im Umkehrschluss gilt, dass falls das nicht der Fall ist, mehrere Energieskalen gleichzeitig vorliegen müssen, die unterschiedliche uniaxiale Druckabhängigkeiten aufweisen. Demzufolge müssen mehrere Energieskalen das quantenkritische Verhalten in CeCoIn_5 bestimmen. Über die Natur der Energieskalen kann allerdings nur spekuliert werden. Im quantenkritischen Bild könnte dies der Hinweis auf ein lokales Szenario sein, welches sich dadurch auszeichnet, dass zwei Energieskalen am quantenkritischen Punkt gegen Null gehen. Eine alternative Erklärung wäre der Einfluss des tritritischen Punktes der supraleitenden Phasengrenze.

Wenn die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten bei einer tiefen konstanten Temperatur als Funktion von B betrachtet werden, wird deutlich, dass im Gegensatz zu $\alpha_V(B)$ ein Vorzeichenwechsel bei B_{c2}^0 stattfindet. Dieser Vorzeichenwechsel ist aber nicht auf ein Entropiemaximum an der quantenkritischen Linie zurückzuführen. Stattdessen wird er durch den Poisson-Effekt verursacht. Dies wird deutlich, wenn man statt der Druckabhängigkeit der Entropie $\partial S/\partial p_i$ ihre Dehnungsabhängigkeit $\partial S/\partial \epsilon_i$ betrachtet (vgl. Abbildung 4.12). Diese sind über die elastischen Konstanten c_{ij} miteinander verknüpft (siehe Gleichung 3.8). Abgesehen von dem scharfen Peak am Phasenübergang erster Ordnung sind $dS/d\epsilon_a$ und $dS/d\epsilon_c$ im ganzen gemessenen Feldbereich ebenso wie α_V positiv.

Neben dem Phasenübergang bei B_{c2}^0 zeigen $dS/d\epsilon_a$ und $dS/d\epsilon_c$ als Funktion von B eine weitere Anomalie bei $B_Q \approx 4.5$ T (siehe Abbildung 4.12). Die

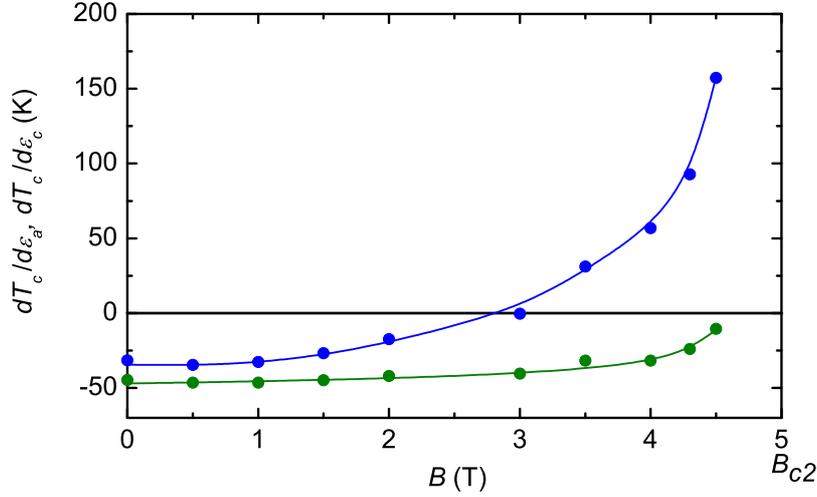


Abbildung 4.13: Dehnungsabhängigkeiten des supraleitenden Übergangs $T_c/d\epsilon_i$ ($i = a, c$) als Funktion von B . Die durchgezogenen Linien sind Hilfslinien.

se kann dem Übergang zur Q-Phase zugeordnet werden [2]. Seine Dehnungsabhängigkeiten $dB_Q/d\epsilon_i$ ($i = a, c$) können nur qualitativ mit Hilfe von Suszeptibilitätsmessungen χ [71] abgeschätzt werden. Da $\chi = dM/dB$ bei B_Q einen positiven Peak aufweist, ist $dB_Q/d\epsilon_a$ positiv und $dB_Q/d\epsilon_c$ negativ. Folglich nimmt B_Q ab und damit der Bereich der Q-Phase zu, wenn die Struktur durch ein steigendes c/a -Verhältnis zweidimensionaler gemacht wird. Umgekehrt führt ein abnehmendes c/a -Verhältnis zum Anstieg von B_Q und damit für $B_Q \rightarrow B_{c2}^0$ zum Verschwinden der Q-Phase. Dieser Sachverhalt scheint von CeRhIn_5 unter Druck und CeIrIn_5 bestätigt zu werden, da beide Verbindungen ein deutlich kleineres c/a -Verhältnis besitzen und zudem keine Anzeichen für eine Q-Phase beobachtet wurden.

4.2.7 Die Dehnungsabhängigkeiten von T_c

Der Vergleich der kubischen Verbindung CeIn_3 mit dem tetragonalen CeCoIn_5 und seiner mehr als 10 mal höheren optimalen supraleitenden Übergangstemperatur legt nahe, dass die Supraleitung in diesen Systemen durch eine zweidimensionale Fermi-Fläche begünstigt wird [68]. In der Tat hat Sarrao *et al.* [72] eine lineare T_c -Abhängigkeit von c/a bei $\text{CeCo}_{1-x}\text{Rh}_x\text{In}_5$ und $\text{CeCo}_{1-x}\text{Ir}_x\text{In}_5$ unter Normaldruck festgestellt. Man erwartet daher, dass die Dehnungsabhängigkeiten von T_c in CeCoIn_5 anisotrop sind.

Mit den elastischen Konstanten c_{ij} wurden aus den in Abbildung 4.9 gezeigten dT_c/dp_a - und dT_c/dp_c -Werten die Dehnungsabhängigkeiten berechnet und in Abbildung 4.13 über B aufgetragen. Überraschenderweise sind $dT_c/d\epsilon_a$ und $dT_c/d\epsilon_c$ im Nullfeld beide negativ und von der gleichen Größenordnung. Erst mit steigendem Feld wechselt $dT_c/d\epsilon_c$ sein Vorzeichen, während $dT_c/d\epsilon_a$ stetig abnimmt. Infolgedessen wird das erwartete anisotrope Verhalten erst bei

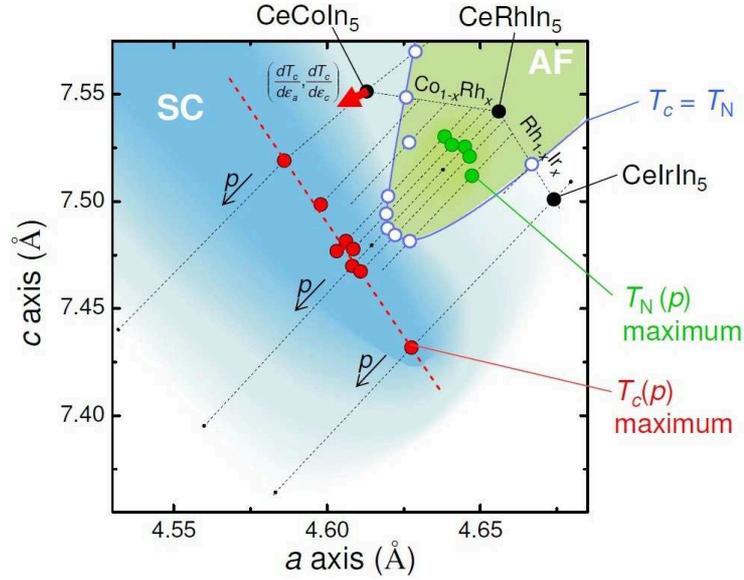


Abbildung 4.14: Aufsicht auf die $T = 0$, $B = 0$ Ebene von CeMIn_5 ($M = \text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$) [73, 74, 75, 76]. Rote Pfeile sind aus den thermischen Ausdehnungsmessungen. Sie sind aus den Ehrenfest-Relationen berechnet und geben die Richtung des nächsten Maximums von $(dT_c/da, dT_c/dc)$ an.

$B \rightarrow B_{c2}^0$ erreicht.

Um die Dehnungsabhängigkeiten im Nullfeld besser zu verstehen, vergleichen wir die Daten mit Messungen unter hydrostatischem und chemischem Druck in einem (a, c) -Phasendiagramm. Dazu wurden aus Literaturdaten T_c - und T_N -Werte von CeMIn_5 ($M = \text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$) extrahiert und in der Abbildung 4.14 dargestellt. Für die Grenze zwischen Antiferromagnetismus und Supraleitung wurden die Bedingung $T_N = T_c$ verwendet. Die T_c - und T_N -Maxima bilden eine Gerade, entlang der sich im wesentlichen nur das c/a -Verhältnis ändert. Die Dehnungsabhängigkeiten von T_c wurden als Gradientenvektor $(dT_c/d\epsilon_a, dT_c/d\epsilon_c)$ in das Diagramm als roter Pfeil eingezeichnet. Der Vektor zeigt in Richtung des nächstgelegenen T_c -Maximums und passt damit, entgegen der ursprünglichen Erwartung, gut zu dem Verhalten dieser Verbindungsklasse. Da offenbar die Supraleitung eine spezifische Linie im Phasenraum bevorzugt, muss neben dem c/a -Verhältnis eine weitere Größe wichtig sein.

4.3 Messungen $B \parallel a$

4.3.1 Einleitung

In diesem Abschnitt wird die thermische Ausdehnung von CeCoIn_5 gezeigt, bei der das Magnetfeld in den CeIn_3 -Ebenen parallel zur a -Achse angelegt wurde. Aufgrund der zusätzlichen Symmetriebrechung durch das Feld unterscheiden sich die Messungen der a - und b -Achse. Daher wurde die thermische Ausdehnung parallel α_a und senkrecht α_b zum Feld gemessen.

4.3.2 Thermische Ausdehnung

In den Abbildungen 4.15 sind die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_a/T , α_b und α_c , entlang der drei kristallographischen Hauptachsen als Funktion von T für $B \parallel a$ dargestellt. Abbildung 4.16 zeigt das daraus gewonnene Phasendiagramm. Ebenso wie für $B \parallel c$ wird der supraleitende Phasenübergang mit zunehmendem Feld kontinuierlich zu kleineren Temperaturen verschoben. Vermutlich aufgrund der schichtartigen Kristallstruktur sind aber für diese Feldrichtung die kritischen Felder mehr als doppelt so groß (vgl. Phasendiagramm in Abbildung 4.3). Ab $B_0 \approx 10.5$ T ändert sich die Form des Übergangs von zweiter zu erster Ordnung und eine Hysterese kann zwischen Messungen mit steigender und sinkender Temperatur beobachtet werden. Wenn das Feld weiter zunimmt, sind innerhalb des supraleitenden Bereichs zusätzliche Phasenübergänge erkennbar, die vermutlich der Q-Phase zuzuordnen sind. Sie stimmen ungefähr mit den Messungen der spezifischen Wärme überein [47]. Bei $B = 11.5$ T ist das trikritische Feld, bei dem die Q-Phase, die supraleitende Phase und der normalleitende Bereich zusammentreffen. Bei einem Feld $B_{c2}^0 \approx 12$ T ist die Supraleitung komplett unterdrückt. Die Divergenz von α_a/T und α_c/T für $T \rightarrow 0$ weist auf ein Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten am kritischen Feld hin. In α_b/T ist die stärkste Divergenz bei $B = 14$ T. Bei $B = 12$ T und 12.5 T ist noch der Ansatz des supraleitenden Übergangs zu sehen. In der Literatur wird ebenfalls von supraleitenden Fluktuationen oberhalb von B_{c2}^0 berichtet [56]. Wenn das Feld weiter erhöht wird, schwächen sich die Divergenzen in α_a/T und α_c/T deutlich ab. In dem zur Verfügung stehenden Temperatur- und Feldbereich konnte der Eintritt in die Fermi-Flüssigkeit nicht beobachtet werden.

In Abbildung 4.17 ist die Volumenausdehnung $\alpha_V/T = \alpha_a/T + \alpha_b/T + \alpha_c/T$ als Funktion von T abgebildet. Wie für Felder parallel zur c -Richtung ist auch hier kein Vorzeichenwechsel zwischen $B < B_{c2}^0$ und $B > B_{c2}^0$ erkennbar. Der Vorzeichenwechsel als Funktion des Feldes von α_i ($i = a, b, c$) ist somit durch den Poisson-Effekt gegeben, analog zu den Messungen mit $B \parallel c$ (vgl. Abschnitt 4.2.6). Ebenfalls in Analogie zu den Messungen mit $B \parallel c$ hat die Entropie kein Maximum als Funktion von p bei B_{c2}^0 . Das Maximum am kritischen Feld liegt voraussichtlich auch hier bei einem negativen Druck.

Eine Anpassung an dieses kritische Verhalten mit einem Potenzgesetz ergibt $\alpha_V/T(T) \propto T^{-0.72}$. Ein Abbrechen der Divergenz wie bei $B \parallel c$ ist bis zur tiefsten gemessenen Temperatur von 120 mK nicht zu sehen. Demzufolge befindet sich CeCoIn₅ bei B_{c2}^0 für $B \parallel a$ deutlich näher an einem quantenkritischen Punkt.

4.3.3 Magnetostriktion

In den Abbildungen 4.18 sind die Magnetostruktionsmessungen in Richtung der drei Kristallachsen λ_a , λ_b und λ_c , gegen das angelegte Feld aufgetragen. In den Messungen sind im wesentlichen die gleichen charakteristischen Merkmale wie in den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zu sehen. Daher beschränken wir uns auf den Hochfeldbereich mit den Übergänge erster Ordnung und der Q-Phase. In den λ_a -Messungen können Quantenoszillationen beobachtet werden, die aber möglicherweise von Indium-Flussresten stammen. Die Übergänge erster Ordnung sind deutlich anhand ihrer Hysterese erkennbar. In

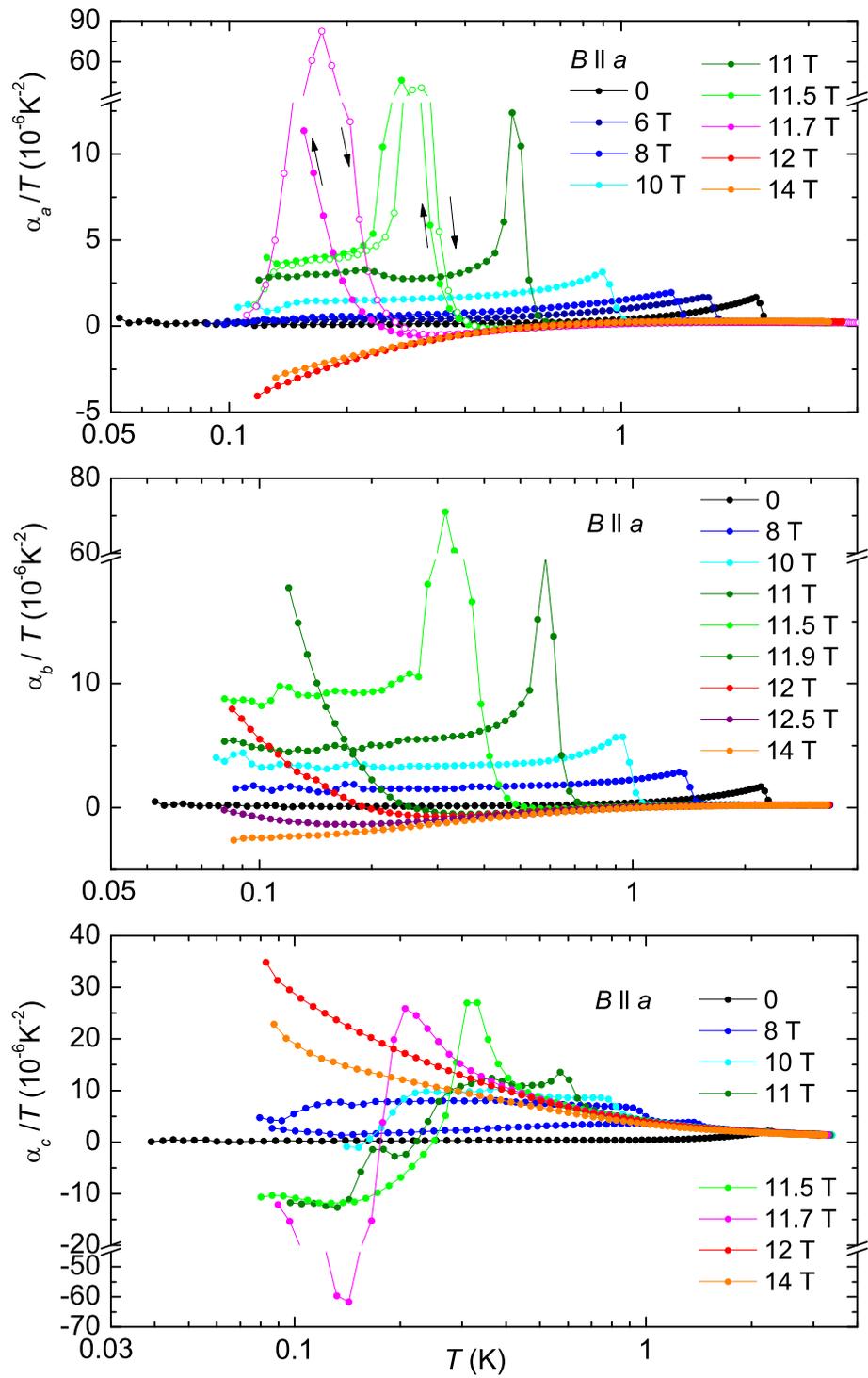


Abbildung 4.15: Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient α_a , α_b und α_c . Die Pfeile zeigen Messungen mit steigender und sinkender Temperatur im Bereich der Übergänge erste Ordnung an.

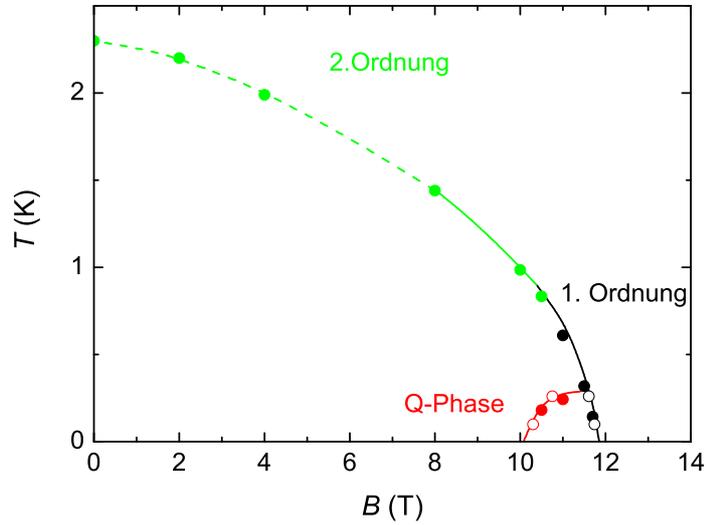


Abbildung 4.16: Phasendiagramm von CeCoIn_5 für $B \parallel a$ aus Magnetostruktionsmessungen (\circ) und thermischen Ausdehnungsmessungen (\bullet) entlang der c -Achse. Die gestrichelte Linie ist eine Hilfslinie, die durchgezogene Linien sind Literaturdaten aus [51].

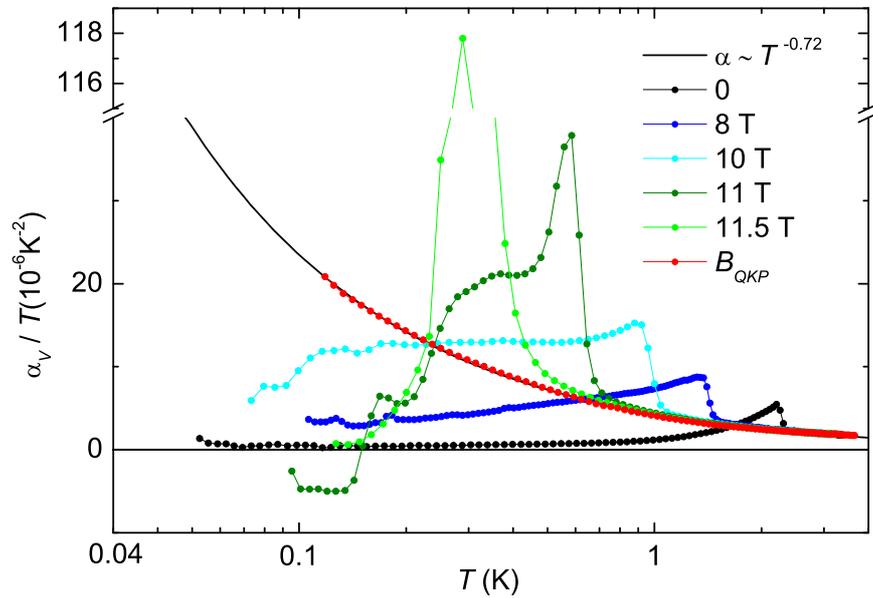


Abbildung 4.17: Thermischer Volumenausdehnungskoeffizient α_V/T . Am quantenkritischen Feld B_{QKP} wurde α_V aus den $B = 12$ T-Kurven für α_a und α_c und der $B = 14$ T-Kurve für α_b berechnet, da für α_a bei $B = 12$ T noch supraleitende Fluktuationen sichtbar sind.

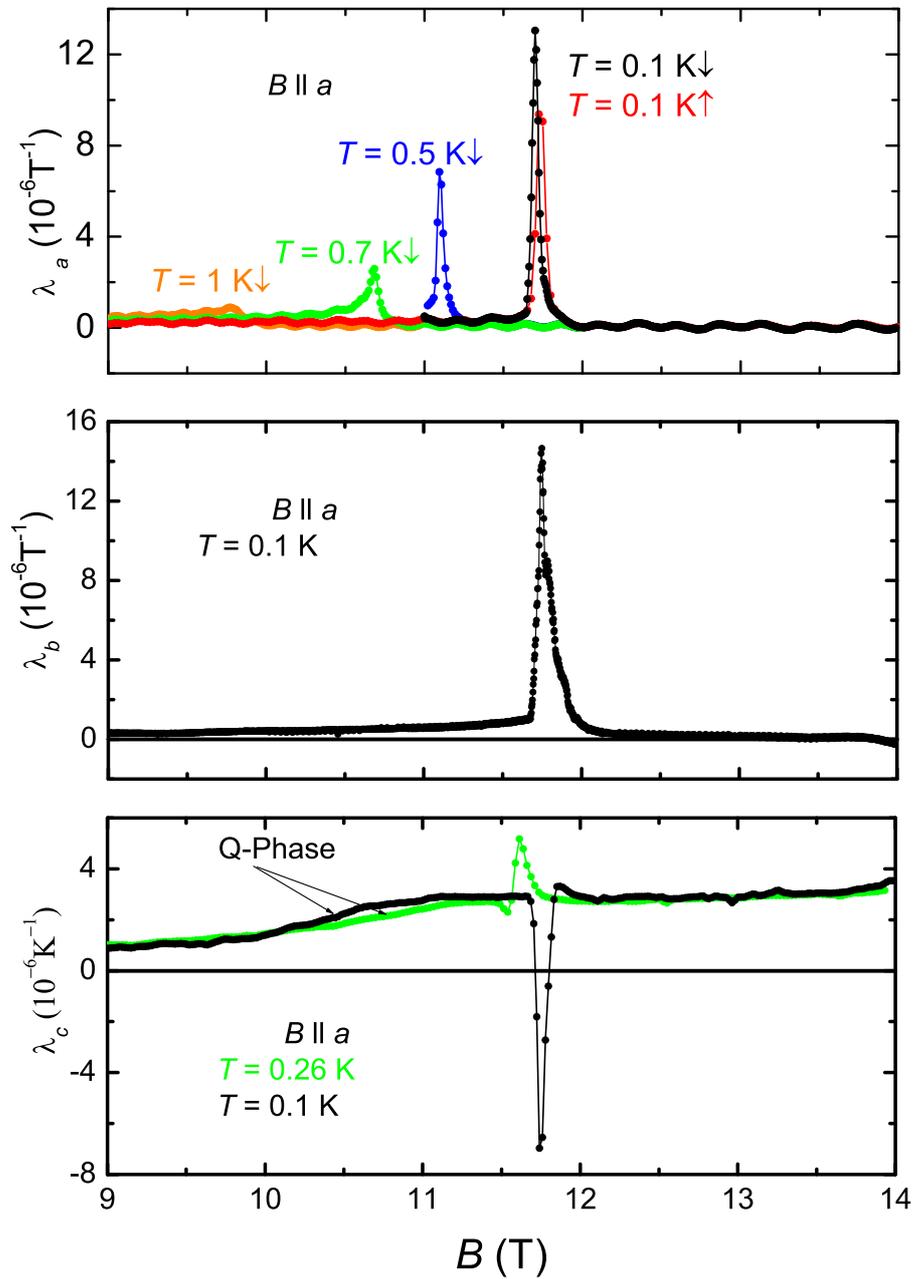


Abbildung 4.18: Linearer Magnetostrirkionkoeffizienten λ_a , λ_b und λ_c im Feldbereich $9 < B < 14 \text{ T}$.

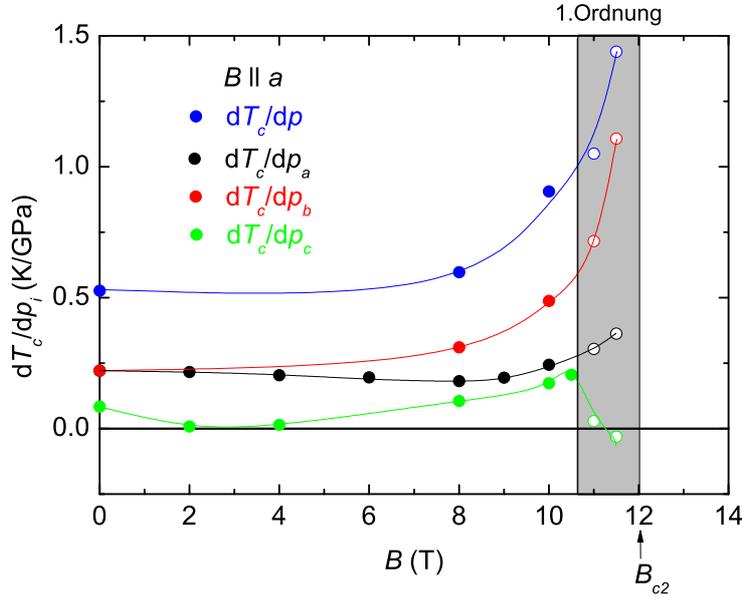


Abbildung 4.19: Uniaxiale und hydrostatische Druckabhängigkeiten als Funktion des Feldes. Die uniaxialen Druckabhängigkeiten wurden mit der Ehrenfestrelation für $B > 10.5$ T bzw. mit der Clausius-Clapeyron-Gleichung für $B > 10.5$ T berechnet. Dabei wurden spezifische Wärmedaten von [43, 77, 59] verwendet. Die durchgezogenen Linien sind zur optischen Führung.

den λ_a - und λ_b -Kurven sind sie durch eine positive Anomalie gekennzeichnet. Die in λ_b stärker sichtbaren supraleitenden Fluktuationen führen hier zu einem etwas verbreiterten Übergang. Der Phasenübergang zur Q-Phase ist am deutlichsten in den Messungen entlang der c -Achse erkennbar. Im Unterschied zur a -Achse wechselt der Peak am supraleitenden Übergang erster Ordnung bei sehr tiefen Temperaturen innerhalb der Q-Phase sein Vorzeichen. Dieser Vorzeichenwechsel spiegelt eine drastische Änderung in der uniaxialen Druckabhängigkeit wider.

4.3.4 Die Druckabhängigkeiten von T_c

Mit Hilfe der Ehrenfest-Relation und der Clausius-Clapeyron-Gleichung wurden die uniaxialen und hydrostatischen Druckabhängigkeiten von T_c als Funktion des Feldes berechnet und in Abbildung 4.19 dargestellt. Die Druckabhängigkeiten von T_c der a -Achse unterscheiden sich für die Messrichtungen parallel und senkrecht zum Feld. Dies liegt vermutlich an den Flussschläuchen und ihren supraleitenden Abschirmströmen [78]. Die supraleitenden Ströme um einen Flusschlauch bewirken eine abstoßende Kraft zwischen letzteren, die senkrecht zum Feld wirkt. Dementsprechend ist dT_c/dp_a kleiner als dT_c/dp_b und der Unterschied zwischen beiden Effekten nimmt mit dem Feld zu. Davon abgesehen weisen beide Messrichtungen ein qualitativ ähnliches Verhalten auf: Ihre Druckabhängigkeiten sind positiv und steigen mit wachsendem Feld an. Im Gegensatz

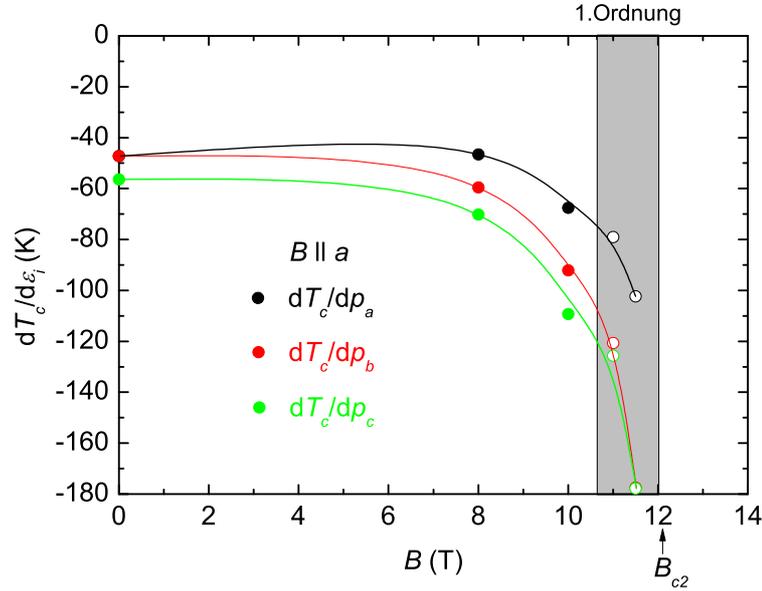


Abbildung 4.20: Verzerrungsabhängigkeit von T_c als Funktion des Feldes. Die zur Berechnung notwendigen elastischen Konstanten sind [70] entnommen.

dazu zeigt dT_c/dp_c ein komplexes Verhalten. Mit zunehmendem Feld fallen die positiven dT_c/dp_c -Werte zuerst und scheinen zwischen $B = 2$ und 4 T fast zu verschwinden. An dieser Stelle findet für $B \parallel c$ der Vorzeichenwechsel statt (vgl. Abbildung 4.9). Bei größeren Feldern nimmt dT_c/dp_c ähnlich wie die anderen Druckabhängigkeiten zu, bis im Bereich des Übergangs erster Ordnung die Werte plötzlich kleiner werden und dann sogar ihr Vorzeichen wechseln. Dieses Verhalten kann sehr deutlich in den Magnetostruktionsmessungen beobachtet werden (vgl. Abbildung 4.18). Da der hydrostatische Druckeffekt bei den gemessenen Feldern positiv bleibt, sollte im Gegensatz zu $B \parallel c$ das T_c -Maximum sehr viel näher an B_{c2}^0 liegen.

In Abbildung 4.20 sind die mit den elastischen Konstanten berechneten Dehnungsabhängigkeiten von T_c als Funktion des Feldes abgebildet. Man sieht, dass sich die Dehnungsabhängigkeiten der Richtungen senkrecht zum Feld für hohe Felder angleichen. Die Anisotropie ist also maßgeblich durch die anisotrope Elastizität des Kristallgitters und die supraleitenden Abschirmströme gegeben.

4.4 $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$

4.4.1 Einleitung

Wie in Abschnitt 4.1.2 erwähnt, ordnet CeRhIn_5 im Gegensatz zu CeCoIn_5 antiferromagnetisch. Der Antiferromagnetismus kann außer durch hydrostatischen Druck auch durch Substitution von Co durch isoelektronisches Rh unterdrückt werden. Das Phasendiagramm von $\text{CeRh}_{1-x}\text{Co}_x\text{In}_5$ ist in Abbildung 4.21 (a)

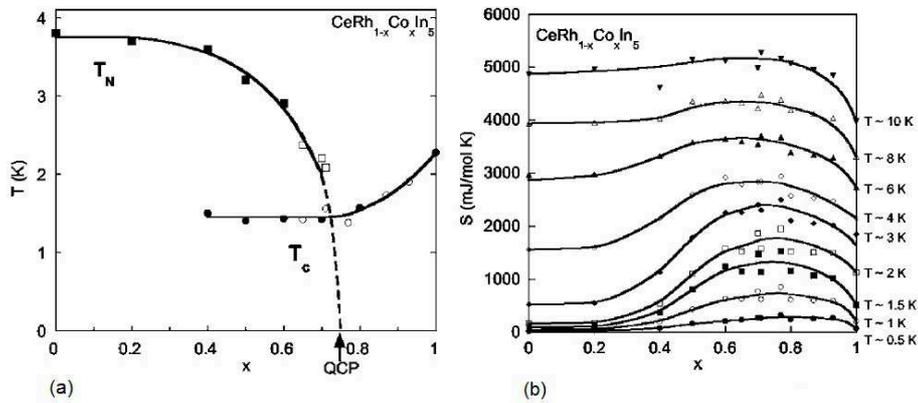


Abbildung 4.21: (a) Phasendiagramm $\text{CeRh}_{1-x}\text{Co}_x\text{In}_5$ als Funktion der Dotierung x und (b) Entropie als Funktion von x [73].

abgebildet (vgl. Abbildung 4.2 (b)). Der Endpunkt der antiferromagnetischen Ordnung liegt bei einem Rhodiumgehalt von $x_c \approx 0.75$. In Abbildung 4.21 (b) ist die aus der spezifischen Wärme berechnete Entropie als Funktion von x bei konstanten Temperaturen dargestellt. Ein Maximum der Entropie bei der kritischen Rhodiumkonzentration x_c deutet auf einen quantenkritischen Punkt hin.

Die Supraleitung setzt bereits unterhalb von x_c mit einer Übergangstemperatur von $T_c \approx 1.5$ K ein. Im Bereich von $0.4 < x \leq x_c$ koexistieren Antiferromagnetismus und Supraleitung. Oberhalb von x_c , außerhalb der antiferromagnetischen Ordnung, nimmt T_c rasch zu und erreicht bei $x = 1$ den Wert von CeCoIn_5 . Die Gitterparameter von $\text{CeRh}_{1-x}\text{Co}_x\text{In}_5$ gehorchen dem Vergard-Gesetz: Die a -Achse nimmt mit x linear ab, während die c -Achse linear größer wird, so dass mit zunehmendem x das System evektiv „dreidimensionaler“ wird [79]. Der chemische Druck durch die Substitution mit Rhodium ist daher dem hydrostatischen Druck nicht gleichzusetzen, da hier die Elementarzelle auf eine andere Weise verzerrt wird (siehe das (a, c) -Phasendiagramm in Abbildung 4.14).

In dieser Arbeit wurde das kritische Verhalten von $\text{CeRh}_{1-x}\text{Co}_x\text{In}_5$ bei x_c untersucht. Dazu wurde bei einer $x_c \approx x = 0.75$ -Probe Supraleitung und Antiferromagnetismus mit einem Magnetfeld $B \parallel c$ unterdrückt. Die thermische Ausdehnung und Magnetostriktion wurde entlang der c -Achse auf quantenkritisches Verhalten untersucht, da für diese Richtung das größte Signal auftritt.

4.4.2 Thermische Ausdehnung

In Abbildung 4.22 ist der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient als α_c/T bei verschiedenen konstanten Feldern $B \leq 7$ T gegen T aufgetragen. Im Nullfeld ist die typische Signatur eines Übergangs zweiter Ordnung bei $T \approx 1.9$ K zu erkennen. Mit zunehmendem Feld wird der Phasenübergang unterdrückt. Dabei wird der Übergang zuerst schärfer und dann oberhalb von $B \approx 4$ T breiter. Ab etwa $B = 5$ T können zwei unterschiedliche Phasenübergänge identifiziert werden, die schließlich beide bei einem kritischen Feld von $B_c \approx 7$ T verschwunden sind. Offenbar weist $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ zwei Übergänge auf, die sich aufgrund

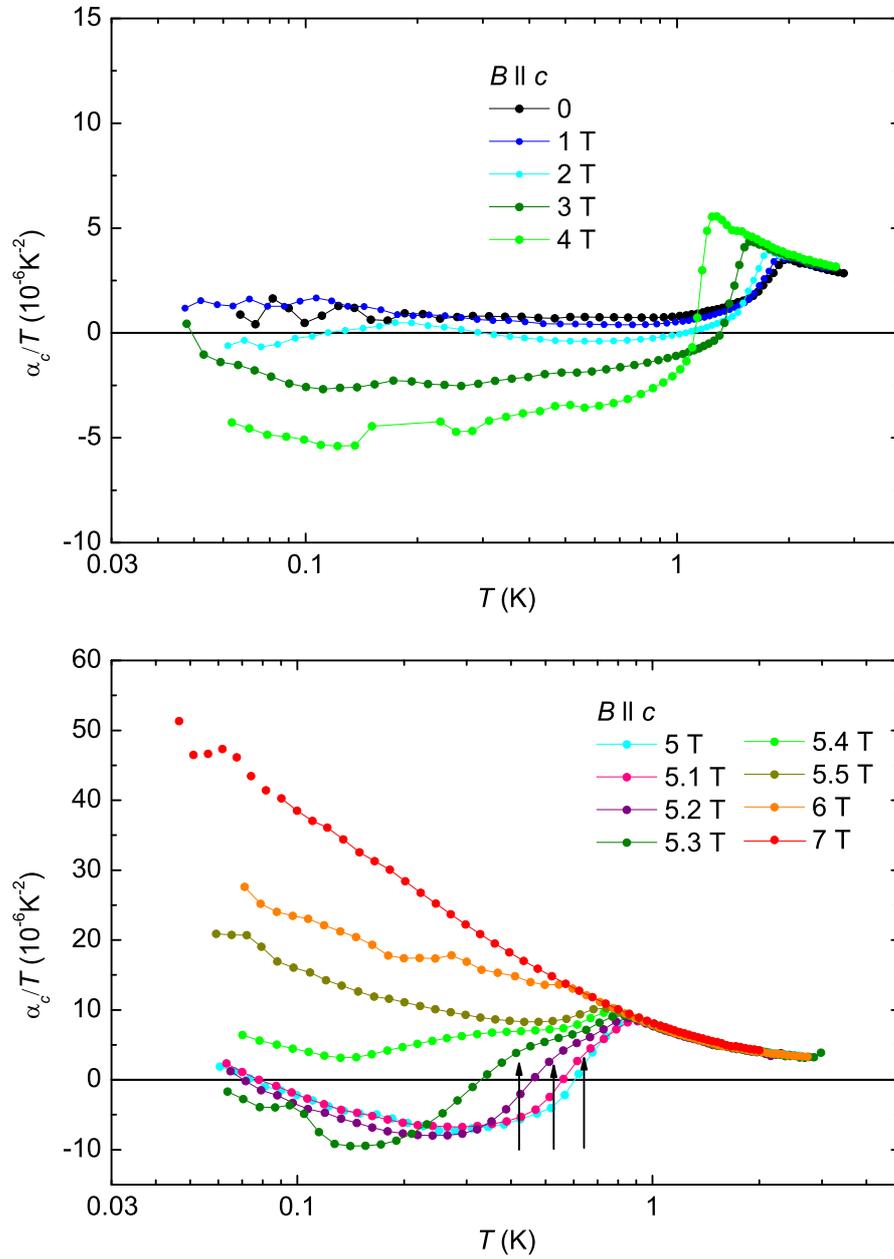


Abbildung 4.22: Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient α_c/T von $\text{CeRh}_{1-x}\text{Co}_x\text{In}_5$ für $B \leq 7 \text{ T}$. Die Pfeile deuten auf den zweiten Übergang.

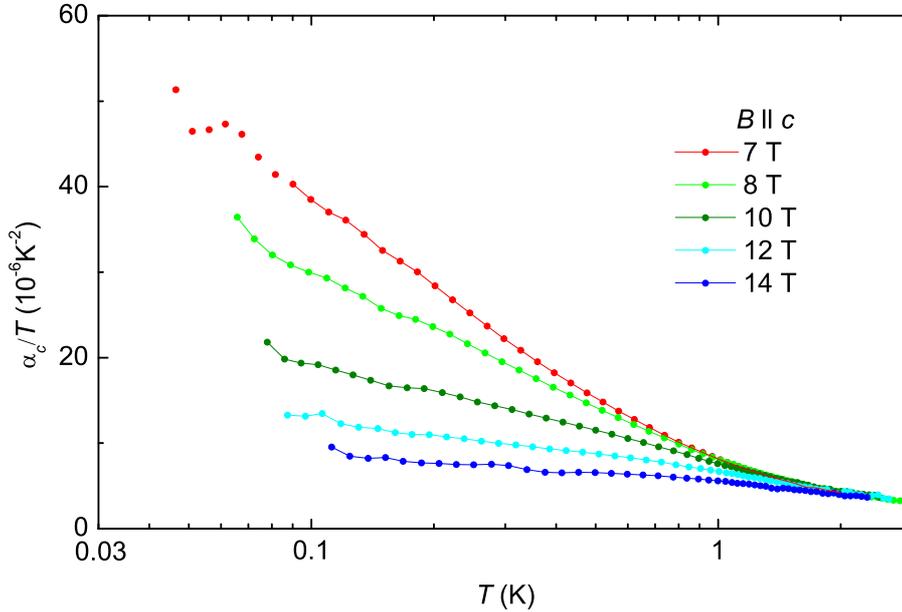


Abbildung 4.23: Thermische Ausdehnung für $B \geq 7$ T.

ihrer unterschiedlichen Feldabhängigkeiten im Bereich von $4 \text{ T} < B < 5 \text{ T}$ schneiden. Ein Wechsel von einem Phasenübergang zweiter zu erster Ordnung wie in CeCoIn_5 kann hier nicht beobachtet werden.

Da an der gleichen Probe weder Widerstands- noch Magnetisierungsmessungen durchgeführt wurden, ist nicht klar, ob die Übergänge durch Antiferromagnetismus oder Supraleitung hervorgerufen werden. Prinzipiell kann entweder ein antiferromagnetischer und ein supraleitender Übergang, zwei supraleitende Übergänge oder zwei antiferromagnetische Übergänge vorliegen. In den letzten beiden Fällen müsste die Probe aus Bereichen mit unterschiedlichen Rh-Konzentrationen bestehen. In Anbetracht der vergleichsweise scharfen Übergänge scheint eine solche Phasenseparation unwahrscheinlich zu sein. Die unterschiedliche Feldabhängigkeit und das Phasendiagramm 4.21 (a) weisen eher auf einen antiferromagnetischen Übergang bei $T_N(B=0) \approx 1.9 \text{ K}$ und einen darunterliegenden supraleitenden Übergang bei $T_c(B=0) \approx 1.5 \text{ K}$ hin.

Die Supraleitung in $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ hätte demnach $T_c \approx 1.5 \text{ K}$ und $B_{c2} = 7 \text{ T}$. Im Vergleich zu CeCoIn_5 ($T_c = 2.3 \text{ K}$, $B_{c2}^0 = 5 \text{ T}$) wäre das ein höheres B_{c2}^0 bei einem niedrigeren T_c . Dies könnte auf den Wechsel in der Anisotropie zwischen $B_{c2} \parallel c$ und $B_{c2} \parallel ab$ hinweisen, der zwischen CeCoIn_5 und CeRhIn_5 besteht [80].

Bei mittleren Feldern von $3 \text{ T} < B < 5 \text{ T}$ wird α_c/T unterhalb der Übergänge negativ. Wenn die Phasenübergänge bei höheren Feldern unterdrückt werden, erhält man deshalb einen Vorzeichenwechsel als Funktion von B , analog zu CeCoIn_5 mit $B \parallel c$. Allerdings müsste zusätzlich α_a gemessen werden, um zu entscheiden, ob dieser Wechsel ebenfalls durch den Poisson-Effekt oder durch einen quantenkritischen Punkt verursacht wird.

Abbildung 4.23 zeigt α_c/T für $B \geq B_{QKP}$. Für zunehmende Felder wird die

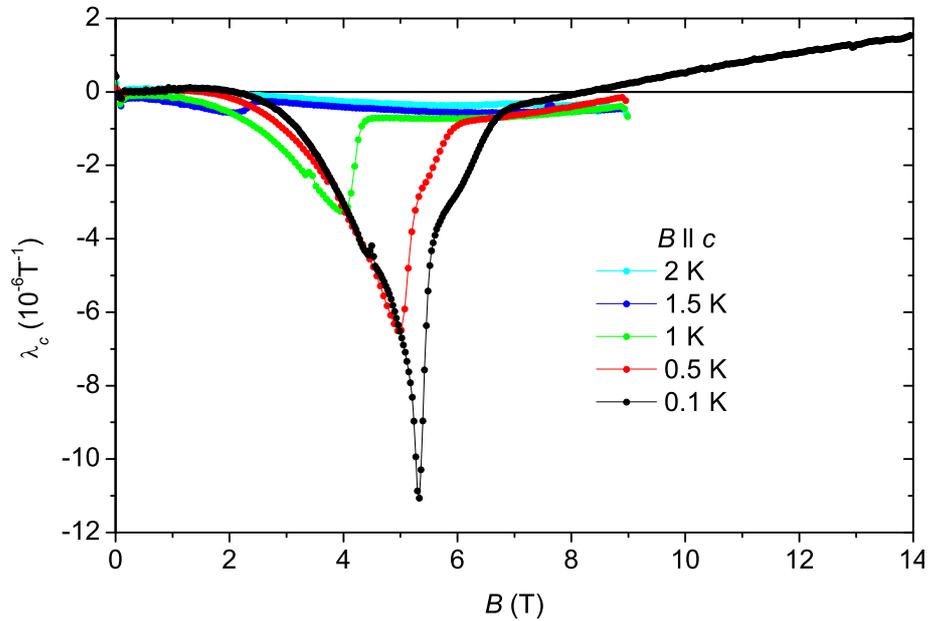


Abbildung 4.24: Linearer Magnetostruktionskoeffizient λ_c .

Divergenz wieder schwächer. Ein Fermi-Flüssigkeitsverhalten ist allerdings auch bei 14 T noch nicht zu erkennen.

4.4.3 Magnetostriktion

Zur Vervollständigung des (B, T) -Phasendiagramms wurden Magnetostruktionsmessungen entlang der c -Achse durchgeführt. Die Messwerte sind in Abbildung 4.24 zu sehen. Die Phasenübergänge sind deutlich als Schulter bzw. scharfes Maximum zu erkennen. Bei tiefen Temperaturen bildet der zweite Übergang eine Schulter am Rande des größeren Übergangs aus.

4.4.4 Phasendiagramm

Aus den Messungen der thermischen Ausdehnung und Magnetostriktion kann das (B, T) -Phasendiagramm konstruiert werden, das in Abbildung 4.25 dargestellt ist. Die Phasengrenzlinien der beiden Übergänge schneiden sich bei etwa $B \approx 4.8$ T.

Im folgenden soll das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten bei $B_c \approx 7$ T untersucht werden.

4.4.5 Vergleich des quantenkritischen Verhaltens

Am kritischen Feld B_c zeigt auch $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ eine ausgeprägte Divergenz in α_c/T für $T \rightarrow 0$. Mit weiter anwachsendem B nimmt die Steigung in α_c/T ab, bis bei $B = 14$ T die Divergenz nahezu verschwunden ist (siehe Abbildung 4.23). Im Unterschied zu CeCoIn_5 mit $B \parallel c$ kann hier jedoch kein

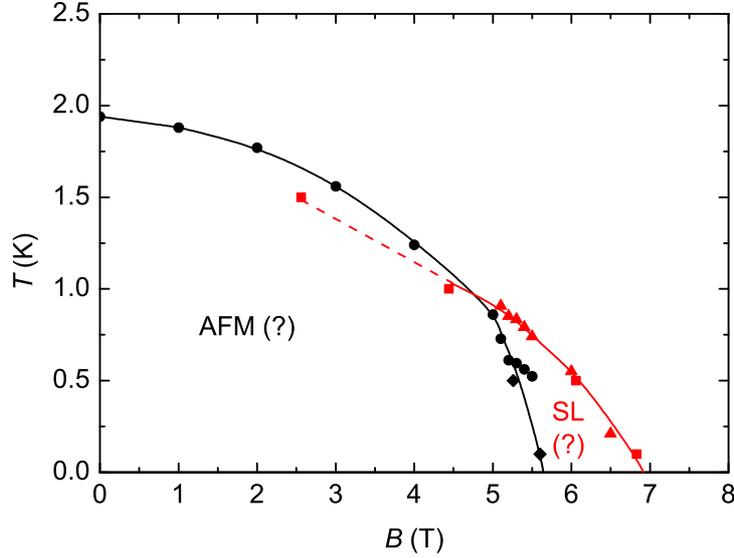


Abbildung 4.25: Phasendiagramm von $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ aus den Messungen der thermischen Ausdehnung (\bullet und \blacktriangle) und Magnetostriktion (\blacklozenge und \blacksquare).

Fermi-Flüssigkeitsbereich beobachtet werden.

Um das kritische Verhalten bei B_c mit CeCoIn_5 zu vergleichen, sind in Abbildung 4.26 die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_c/T für CeCoIn_5 bei B_{c2}^0 parallel und senkrecht zur c -Achse zusammen mit $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ bei $B_{c2} \parallel c$ aufgetragen. In allen drei Fällen ist die Abweichung vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten bei diesen kritischen Feldern am größten. Demnach liegt in all diesen Fällen der quantenkritische Punkt vermutlich am Rande oder innerhalb des Bereichs der Supraleitung. Interessanterweise divergiert die Kurve von CeCoIn_5 mit $B = 12 \text{ T}$ am stärksten. Sie scheint somit einem quantenkritischen Punkt am nächsten zu sein.

Da durch den unterschiedlichen Rhodiumgehalt bzw. die unterschiedliche Feldrichtung die Absolutwerte von α_c/T beeinflusst werden, können diese nicht als Maß für die Entfernung zum quantenkritischen Punkt verwendet werden. Die Temperaturabhängigkeit von α_c/T in CeCoIn_5 mit $B \parallel c$ zeigt am deutlichsten das Abbrechen der Divergenz zum Fermi-Flüssigkeitsverhalten, d.h. der quantenkritische Punkt ist hier am weitesten von B_{c2}^0 entfernt. In $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ ist eine kleine Abschwächung der Divergenz zu sehen. In Analogie zu CeCoIn_5 mit $B \parallel c$ würde das darauf hinweisen, dass $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ bei $B_{c2}^0 = 7 \text{ T}$ nicht direkt am quantenkritischen Punkt liegt. Falls der zweite Phasenübergang den Beginn der antiferromagnetischen Ordnung wiedergibt, läge der quantenkritische Punkt beim entsprechenden Feld von $B_c \approx 5.6 \text{ T}$ unterhalb von B_{c2}^0 (siehe Abbildung 4.25).

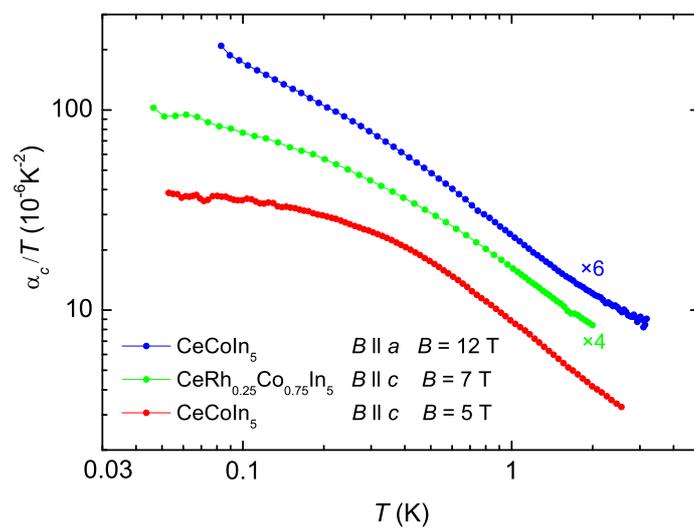


Abbildung 4.26: Das kritische Verhalten von CeCoIn₅ parallel und senkrecht zur c -Achse und CeRh_{0.25}Co_{0.75}In₅ mit Feld parallel zur c -Achse in doppellogarithmischer Auftragung. Die Kurven für CeCoIn₅ mit $B \parallel a$ und CeRh_{0.25}Co_{0.75}In₅ sind zur übersichtlicheren Darstellung mit einem Faktor 4 bzw. 6 multipliziert.

Kapitel 5

CeCu_{6-x}Au_x

5.1 Einleitung

5.1.1 Struktur

CeCu₆ kristallisiert bei Raumtemperatur in der orthorhombischen *Pnma*-Struktur mit den Gitterkonstanten $a = 8.112 \text{ \AA}$, $b = 5.102 \text{ \AA}$ und $c = 10.162 \text{ \AA}$. Bei $T_{\text{strukt}} \approx 230 \text{ K}$ findet ein struktureller Phasenübergang zu einer monoklinen Kristallstruktur statt [81]. Die monokline Verzerrung ist kleiner als 1.5° [82]. Der orthorhombisch-monokline Phasenübergang wird durch Zulegierung von Au in CeCu_{6-x}Au_x bei $x = 0.14$ unterdrückt (vgl. Abbildung 5.3 (b)). Um eine Verwechslung der Achsen zu vermeiden, wird im folgenden nur die orthorhombische Darstellung verwendet. Die Einheitszelle ist in Abbildung 5.1 (a) abgebildet.

In CeCu₆ können die Cu-Atome isoelektronisch durch größere Au-Atome ersetzt werden. Dabei ersetzt das Goldatom zuerst den Cu(2)-Platz, der den größten Raum zur Verfügung stellt. Für einen Goldgehalt von $x > 1$ wird der nächst kleinere Cu(4)-Platz besetzt [83, 84].

Wie in Abbildung 5.1 (b) dargestellt, führt die Au-Substruktur zu einer Zunahme der Gitterparameter der *a*- und *c*-Achse über den gesamten Dotierungsbereich. Die *b*-Achse wird im Bereich $0 < x < 1$ kleiner und für $x > 1$ größer. Als Konsequenz ändert sich bei $x = 1$ die Steigung, mit der das Volumen der Elementarzelle V als Funktion von x anwächst. Die Abhängigkeit von der Dotierung x ist in erster Näherung linear und folgt somit dem Vegard-Gesetz.

In Abbildung 5.2 (a) und (c) ist das Kompressionsmodul $B_T = -V \partial p / \partial V|_T$ und die elastische Konstante c_{22} als Funktion der Dotierung bzw. der Temperatur aufgetragen. Die Änderung der elastischen Konstante ist klein und somit vernachlässigbar. Die Änderung des Kompressionsmoduls mit x beträgt insgesamt 20% und wird in der Berechnung des Grüneisenparameters berücksichtigt. In Abbildung 5.2 (b) sind die linearen Kompressibilitäten $\kappa_i = -L_i^{-1} \partial L / \partial p_i|_T$ ($i = a, b, c$) als Funktion der Dotierung aufgetragen. Die einzelnen Achsen unterscheiden sich dabei deutlich, d.h. unter Druck verzerrt sich das Gitter anisotrop.

5.1.2 Phasendiagramm

Für CeCu₆ wurde aus der Magnetfeldabhängigkeit der spezifischen Wärme eine Kondo-Temperatur von $T_K \approx 6 \text{ K}$ ermittelt [88], in Übereinstimmung mit

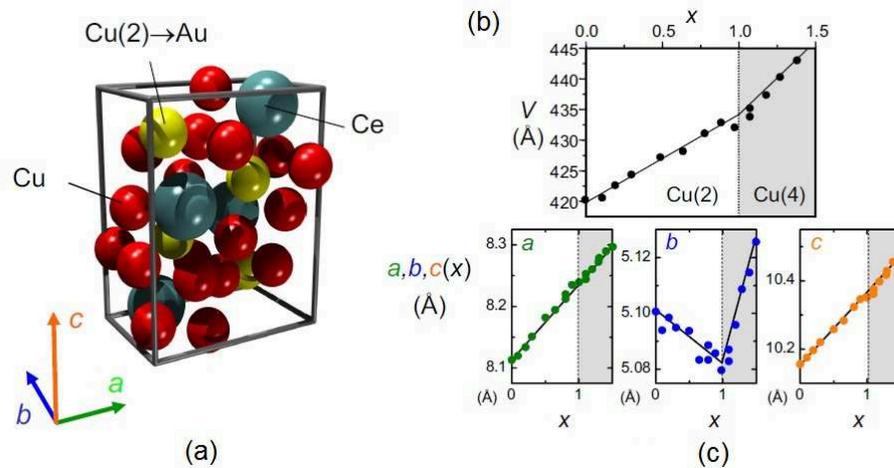


Abbildung 5.1: (a) Kristallstruktur von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$. (b) Änderung des Volumens der Einheitszelle in Abhängigkeit der Goldkonzentration x . Bis $x = 1$ wird der Cu(2)-Platz besetzt. Für höhere Dotierungen wird zusätzlich der Cu(4)-Platz besetzt, was zu einer Steigungsänderung in $V(x)$ führt. (c) Abhängigkeit der Gitterparameter a , b und c von der Konzentration x .

früheren Daten. Bei $T = 100 \text{ mK}$ beträgt der Sommerfeld-Koeffizient $\gamma = 1.6 \text{ J/mol K}^2$. Gegenüber einem normalen Metall ist γ um drei Größenordnungen erhöht. In CeCu_6 setzt erst bei $T \leq 2 \text{ mK}$ eine magnetische Ordnung ein [89]. Kurzreichweitige magnetische Fluktuationen sind bereits bei deutlich höheren Temperaturen zu sehen [90].

Durch die Vergrößerung der Elementarzelle mit zunehmendem Goldgehalt (vgl. Abbildung 5.1 (b)) wird die Hybridisierung der $4f$ -Elektronen mit dem Leitungsband und somit auch die Austauschkopplung J kleiner. Bei der Goldkonzentration $x = 0.1$, am quantenkritischen Punkt, setzt die antiferromagnetische Ordnung ein, welche linear bis $x = 1$ steigt. Für $x > 1$ sinkt T_N wieder. Der strukturelle Phasenübergang wird wie erwähnt mit zunehmender Konzentration zu tieferen Temperaturen verschoben und ist bei $x \approx 0.14$ vollständig unterdrückt. Die jeweiligen Phasendiagramme sind in Abbildung 5.3 zu sehen.

Mit hydrostatischem Druck kann die Hybridisierungsstärke der $4f$ -Momente mit dem Leitungsband verringert werden. Dadurch lässt sich der negative chemische Druck durch die Au-Dotierung umkehren.

5.1.3 Thermische Ausdehnung

Abbildung 5.4 zeigt die thermische Ausdehnung von $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$. Als Funktion von T kann man drei charakteristische Energieskalen unterscheiden. Das $4f$ -Grundzustands-Multiplett $^2F_{5/2}$ spaltet im orthorhombischen Kristallfeld in drei Doublets auf. Bei hohen Temperaturen $T \approx 30 \text{ K}$ sieht man die Anomalie der Kristallfeldanregungen vom ersten ins zweite Doublet. Der Kondo-Effekt und somit der Schwer-Fermion-Zustand bildet sich bei $T \approx 2 \text{ K}$ bildet aus. Bei $T \approx 90 \text{ mK}$ ist der Phasenübergang zur antiferromagnetischen Ordnung zu se-

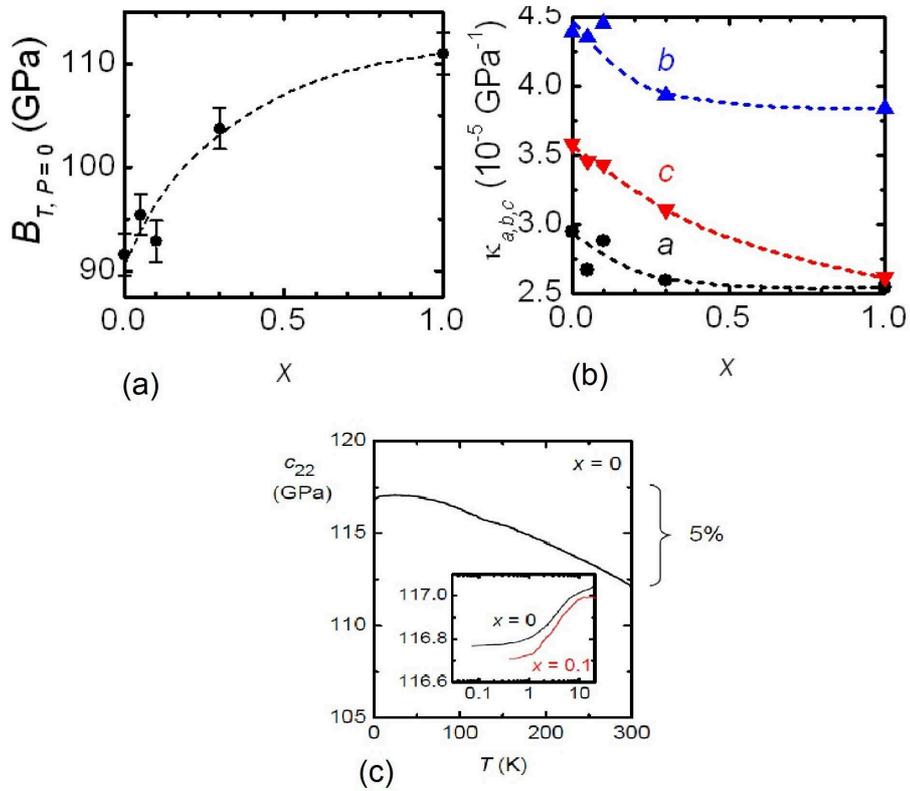


Abbildung 5.2: Kompressionsmodul B_T (a) und lineare Kompressibilitäten κ_i ($i = a, b, c$) (b) von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ als Funktion der Dotierung x . Die Daten wurden bei $T = 10 \text{ K}$ aufgenommen [85]. (c) Elastische Konstanten von $x = 0$ und $x = 0.1$ als Funktion der Temperatur T [86, 87].

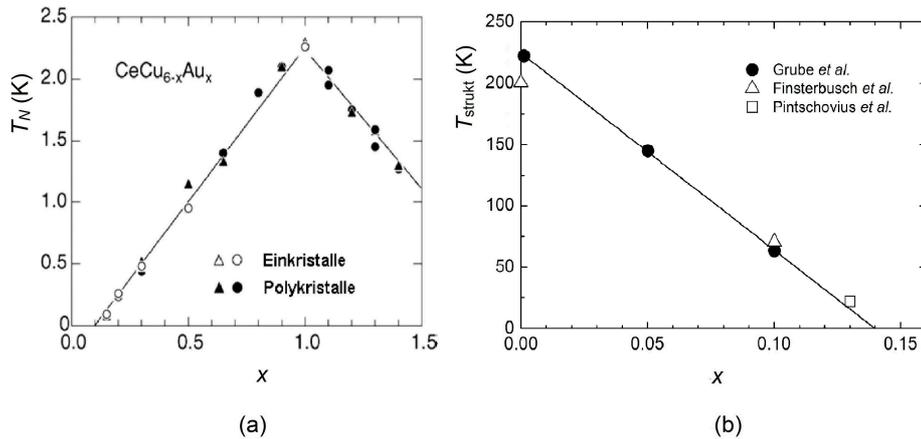


Abbildung 5.3: (a) Das Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ für den magnetischen Phasenübergang [91]. (b) Das Phasendiagramm für den strukturellen Übergang [81, 92].

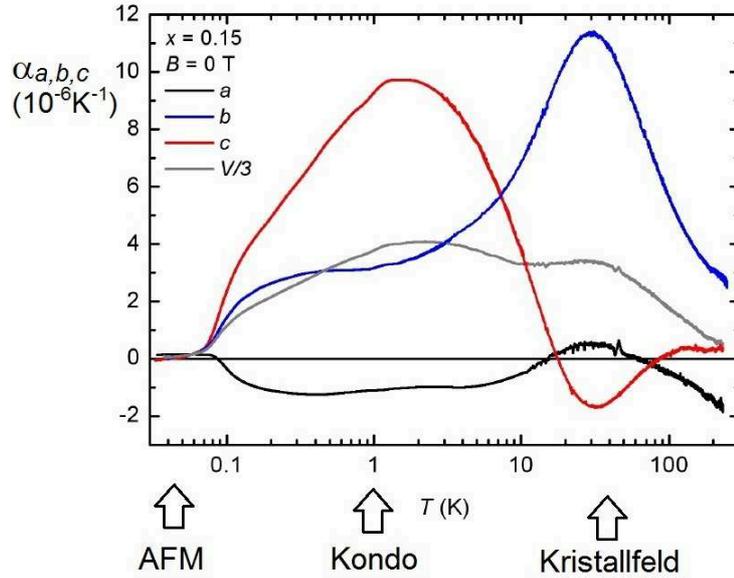


Abbildung 5.4: Lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten α_i ($i = a, b$ und c) für $0.04 < T < 250$ K. In grau die Volumenausdehnung $\alpha_V/3$. Der Beitrag der Phononen wurde aus Messungen an LaCu_6 bestimmt und von den Daten abgezogen. Das Bild ist aus [1] entnommen.

hen. Beachtenswert ist die anisotrope Kopplung der Energieskalen an das Gitter. Der Wechsel in der Anisotropie zeigt, in welchen Temperaturbereichen die einzelnen Energieskalen dominieren.

5.1.4 Quantenkritischer Punkt

Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten wird in Transportgrößen wie zum Beispiel der linearen Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands [96] oder dem divergenten Verhalten der Thermokraft \tilde{S}/T [4] beobachtet. In thermodynamischen Messmethoden wurde Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten unter anderem in der logarithmischen Divergenz des spezifischen Wärmekoeffizienten C/T (Abbildung 5.5) und im divergenten thermischen Volumenausdehnungskoeffizienten α_V/T [1] gefunden.

In Abbildung 5.1.4 ist der Restwiderstand von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ als Funktion von x aufgetragen. Da der Restwiderstand in Übereinstimmung mit der Nordheimschen-Regel bei $x = 0.5$ am größten ist, ist er durch die statistische Substitution des Cu(2)-Ions durch Au gegeben. Dies macht es unwahrscheinlich, dass das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten, das bei $x = 0.1$ am stärksten ist, durch Unordnung verursacht wird. Abbildung 5.5 zeigt, dass sowohl mit chemischem als auch mit hydrostatischem Druck das quantitativ gleiche quantenkritische Verhalten erzeugt werden kann. Die Äquivalenz von chemischem und hydrostatischem Druck ist ein weiteres Indiz dafür, dass die statistische Unordnung auf dem Cu(2)-Platz kein Einfluss auf das quantenkritische Verhalten hat.

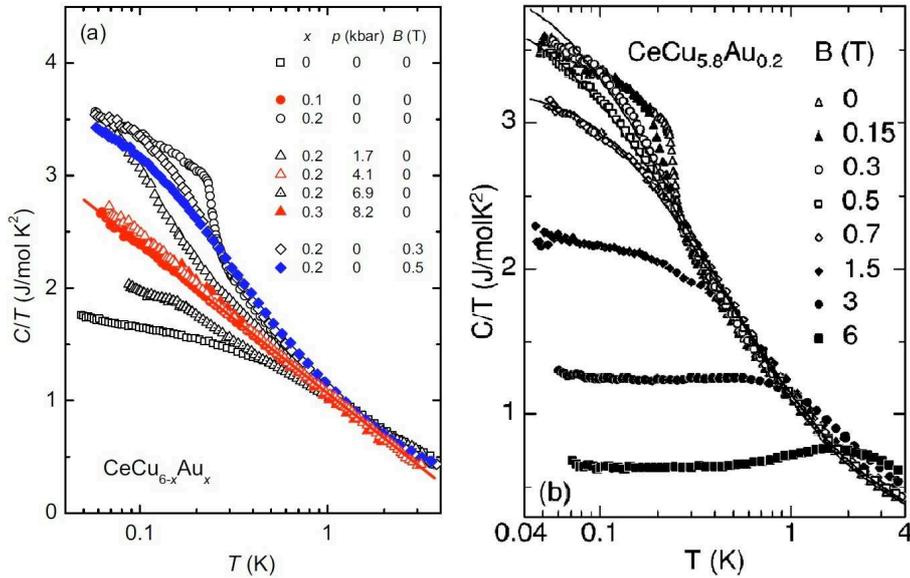


Abbildung 5.5: (a) Spezifische Wärme C/T von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ in halblogarithmischer Auftragung. Die Daten sind aus [93, 94, 95]. Die roten Messkurven zeigen die spezifische Wärme am druckinduzierten quantenkritischen Punkt von $x = 0.1$ bei $p = 0$, $x = 0.2$ bei 4.1 bar und $x = 0.3$ bei 8.2 bar. Zum Vergleich ist auch der magnetische quantenkritische Punkt (blaue Datenpunkte) von $x = 0.2$ am kritischen Feld von $B_c = 0.5$ T gezeigt. (b) Spezifische Wärme C/T von $x = 0.2$ in halblogarithmischer Auftragung für verschiedene Magnetfelder. Durchgezogene Linien sind Anpassungen an die HMM-Theorie [11].

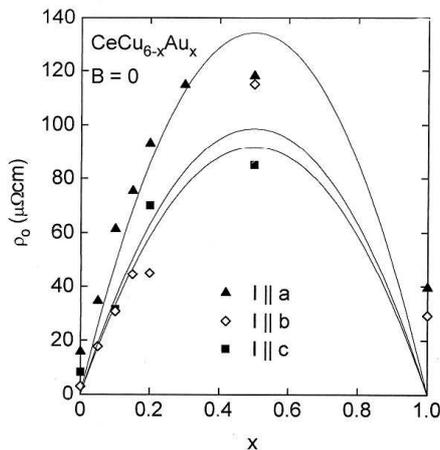


Abbildung 5.6: Restwiderstand von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ im Nullfeld für Strom parallel a -, b - und c -Richtung in Abhängigkeit von der Goldkonzentration x . Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen nach dem Nordheimschen-Gesetz [97].

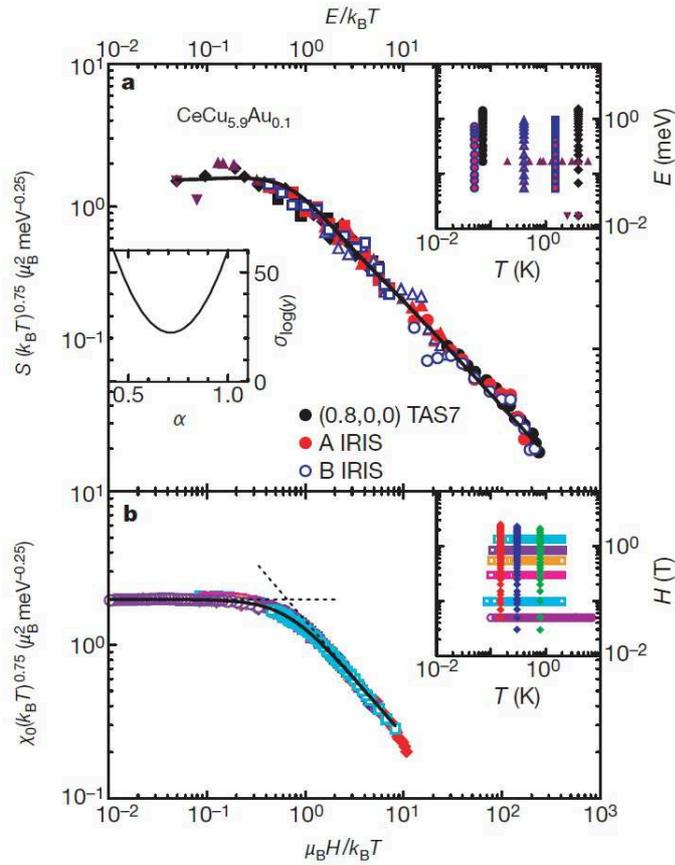


Abbildung 5.7: (a) E/T -Skalierung des inelastischen Neutronenstreuquerschnitts S in $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$. (b) H/T -Skalierung der Magnetisierung. Die Insets zeigen den Bereich, in dem die Daten aufgenommen wurden [98].

Neben dem Druck kann auch das Magnetfeld als Kontrollparameter verwendet werden. In Abbildung 5.5 ist $x = 0.2$ beim kritischen Feld von 0.5 T gezeigt. Die spezifische Wärme ist proportional zu $T^{-0.5}$, in Übereinstimmung mit der dreidimensionalen HMM-Theorie.

5.1.5 Lokales Szenario

Abbildung 5.7 zeigt Neutronenstremessungen an $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$. Die Daten zeigen, dass das kritische Verhalten der Energie- und Feldabhängigkeit mit einer Skalenfunktion $S \cdot T^{0.75} = g(E/T)$ bzw. $\chi_0 \cdot T^{0.75} = g'(H/T)$ beschrieben werden kann. Dies ist inkonsistent mit der klassischen HMM-Theorie und lieferte die Motivationen zur Entwicklung der Theorie des lokalen quantenkritischen Punkts [99].

Im Unterschied zum HMM-Szenario geht diese Theorie davon aus, dass am quantenkritischen Punkt eine zusätzliche Energieskala E^* gegen Null geht (siehe Abbildung 5.8). Diese Energieskala wird mit dem Zusammenbruch des Kondo-

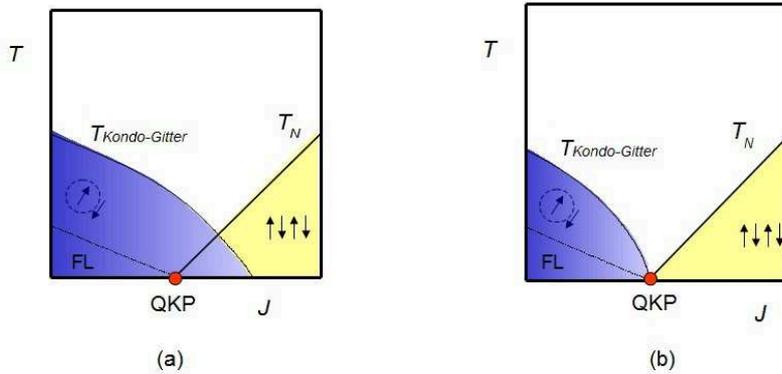


Abbildung 5.8: Schematisches Phasendiagramm eines quantenkritischen Punkts nach der HMM-Theorie (a) im Vergleich zu einem lokalen quantenkritischen Punkt (b).

Gitters identifiziert. Es wird angenommen, dass die $4f$ -Elektronen im Bereich der antiferromagnetischen Phase lokalisieren. Das entspricht einem Aufbrechen der Quasiteilchen am quantenkritischen Punkt. Eine Konsequenz der Lokalisierung der magnetischen Momente ist der Übergang von einem großen zu einem kleinen Fermi-Volumen. Dieser Übergang findet am quantenkritischen Punkt statt. Er kann besonders gut in Transportgrößen beobachtet werden [100]. Im Bereich der antiferromagnetischen Ordnung ist jedoch die Kondo-Temperatur T_K , bei der die Abschirmung der magnetischen Momente einsetzt, noch endlich und führt deshalb auch hier zu einer leicht erhöhten Quasiteilchenmasse [101].

Beispiele sind der Hall-Koeffizient und die Thermokraft von YbRh_2Si_2 . YbRh_2Si_2 ist, neben $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, die einzige Substanz, bei der ein lokales Szenario als sehr wahrscheinlich angesehen wird. YbRh_2Si_2 ordnet bei $T_N = 80$ mK antiferromagnetisch. Die Ordnung kann mit einem Magnetfeld $B_{QKP} = 0.06$ T ($B \perp c$) bei $T = 0$ unterdrückt werden. Im Phasendiagramm wird zusätzlich eine T^* -Linie beobachtet, die als Funktion der Temperatur und des Feldes am quantenkritischen Punkt einmündet. Diese Linie stammt unter anderem von Messungen des Hall-Effekts [102], der Magnetostriktion [103] und der Thermokraft [104]. Die T^* -Linie ist die Signatur einer weiteren Energieskala, die am quantenkritischen Punkt gegen Null geht (siehe Abbildung 5.8 (b)). Im Hall-Koeffizient wird in Abhängigkeit des Magnetfeldes ein Sprung beobachtet, der mit abnehmender Temperatur schärfer wird. Dieser Sprung wird direkt der Rekonstruktion der Fermi-Oberfläche zugeordnet [102]. In Übereinstimmung mit der T^* -Linie findet sich in Magnetostruktionsmessungen ebenfalls eine Anomalie [103]. In Thermokraftmessungen wurden in Abhängigkeit der Temperatur Hinweise auf einen Vorzeichenwechsel des Seebeck-Koeffizienten bei tiefen Temperaturen beobachtet. Der Vorzeichenwechsel in der Thermokraft wurde als Wechsel von Loch- zu Elektron-Leitung interpretiert, also als Hinweis auf eine Änderung der Bandstruktur durch eine Lokalisierung der $4f$ -Elektronen [104, 105].

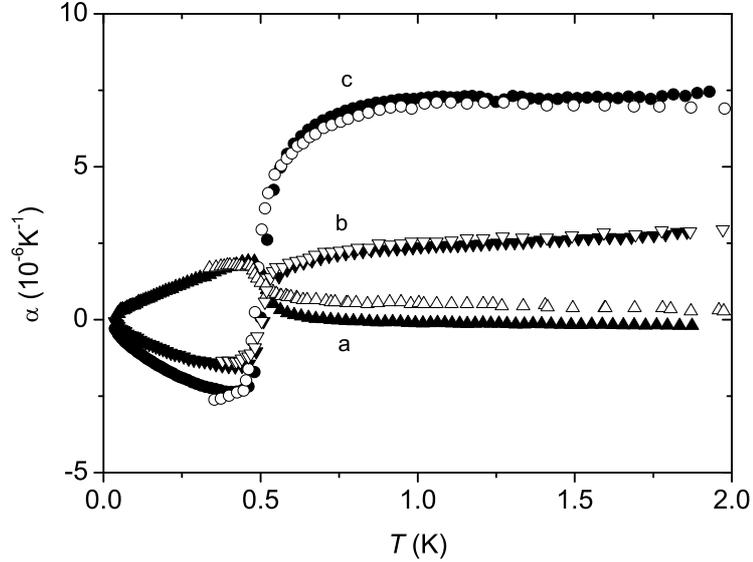


Abbildung 5.9: Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α_i/T ($i = a, b, c$) für $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$. Vergleich von Messungen aus dieser Arbeit (geschlossene Symbole) mit Messungen von Estrela *et al.* (offene Symbole) [106].

5.1.6 Motivation

In $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ gibt es für $x \geq 0.1$ einen druckinduzierten quantenkritischen Punkt. Durch Ersetzen von Cu mit isoelektronischem Au kann statt hydrostatischem Druck auch Au-Dotierung, also chemischer Druck, als Kontrollparameter verwendet werden. Dadurch ist es möglich, die thermische Ausdehnung $\alpha \propto -\partial S/\partial p$, d.h. die Druckabhängigkeit der Entropie, direkt als Funktion des Drucks p zu messen. Um die einzelnen Beiträge zur Entropie zu unterscheiden, werden mit der Thermokraft Transportmessungen durchgeführt, die es erlauben die elektronische Entropie abzuschätzen.

Das Verhalten des Systems am quantenkritischen Punkt wird durch die zwei charakteristischen Energieskalen des Kondo-Effekts und des Antiferromagnetismus bestimmt. Mit dem Magnetfeld kann sowohl der Kondo-Effekt als auch der Antiferromagnetismus unterdrückt werden. Magnetostruktionsmessungen können daher verwendet werden, um charakteristische magnetische Energieskalen aufzufinden. In Analogie zu YbRh_2Si_2 sollen solche Messungen durchgeführt werden, um eine mögliche Signatur des Zusammenbruchs des Kondogitters an einer T^* -Linie zu finden.

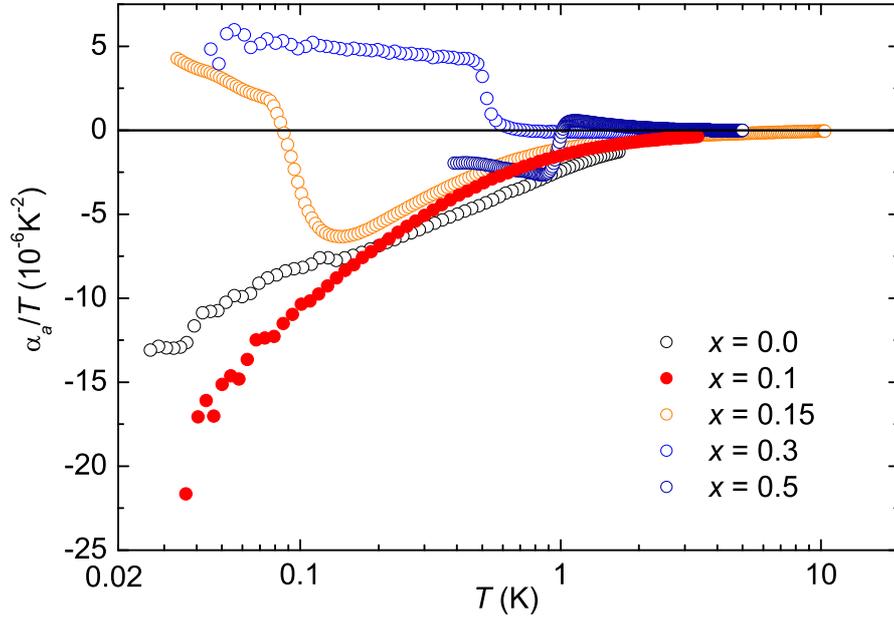


Abbildung 5.10: Der lineare Ausdehnungskoeffizient dividiert durch T entlang der a -Achse α_a/T halblogarithmisch gegen T aufgetragen für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ mit $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$.

5.2 Thermische Ausdehnung

5.2.1 Bisherige Messungen

Erste Messungen der thermischen Ausdehnung wurden von Grube *et al.* [81], de Visser *et al.* [107] und Estrela *et al.* [106] durchgeführt. Diese wurden mit verbesserter Auflösung und zu tieferen Temperaturen durch Messungen von S. Drobnik [1] ergänzt. Der Vollständigkeit halber werden in dieser Arbeit die thermischen Ausdehnungsmessungen an $\text{CeCu}_{5.5}\text{Au}_{0.5}$ aus [106] übernommen. Zusätzlich werden die Messungen an $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ und $\text{CeCu}_{5.85}\text{Au}_{0.15}$ aus [1] mit der neuen Temperaturkalibration gezeigt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Messungen an CeCu_6 , $\text{CeCu}_{5.95}\text{Au}_{0.05}$, $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$ und $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$ durchgeführt. In Bereichen, in denen sich die Messungen der verschiedenen Arbeiten überschneiden, wurde immer eine Übereinstimmung festgestellt (vgl. Abbildung 5.9).

5.2.2 Überblick

Die Abbildungen 5.10, 5.11 und 5.12 zeigen die thermischen Ausdehnungsmessungen dividiert durch T für die unterschiedlichen Achsen als Funktion der Dotierung x . Die Daten zeigen, dass ähnlich wie in CeCoIn_5 die thermische Ausdehnung sehr anisotrop ist. Die Anisotropie manifestiert sich in den uniaxialen Druckabhängigkeiten von T_N . Diese wurden bereits von S. Drobnik eingehend untersucht [1]. In α_b ist, im Gegensatz zu α_a und α_c , bei $T \approx 50$ mK für

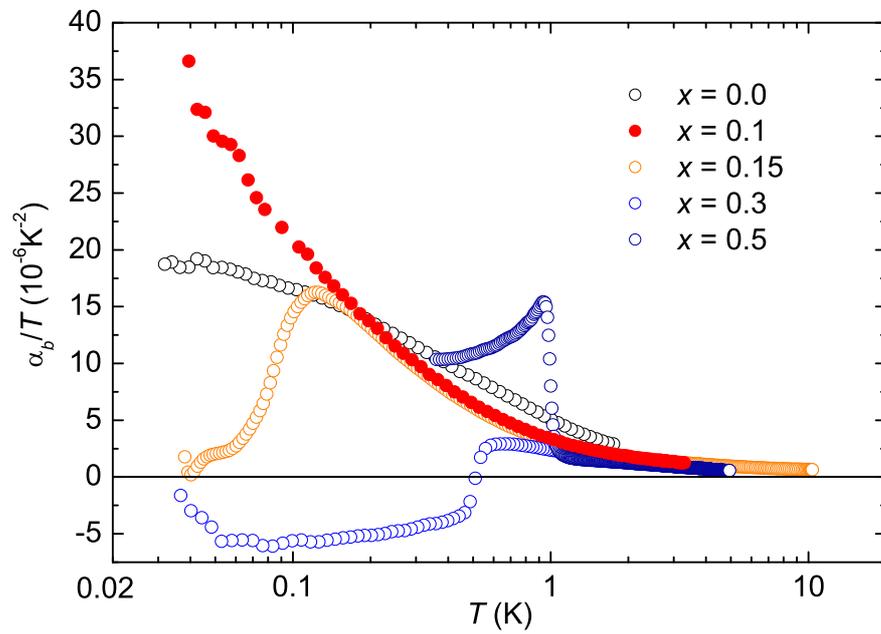


Abbildung 5.11: Der lineare Ausdehnungskoeffizient dividiert durch T entlang der b -Achse α_b/T halblogarithmisch gegen T aufgetragen für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ mit $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$.

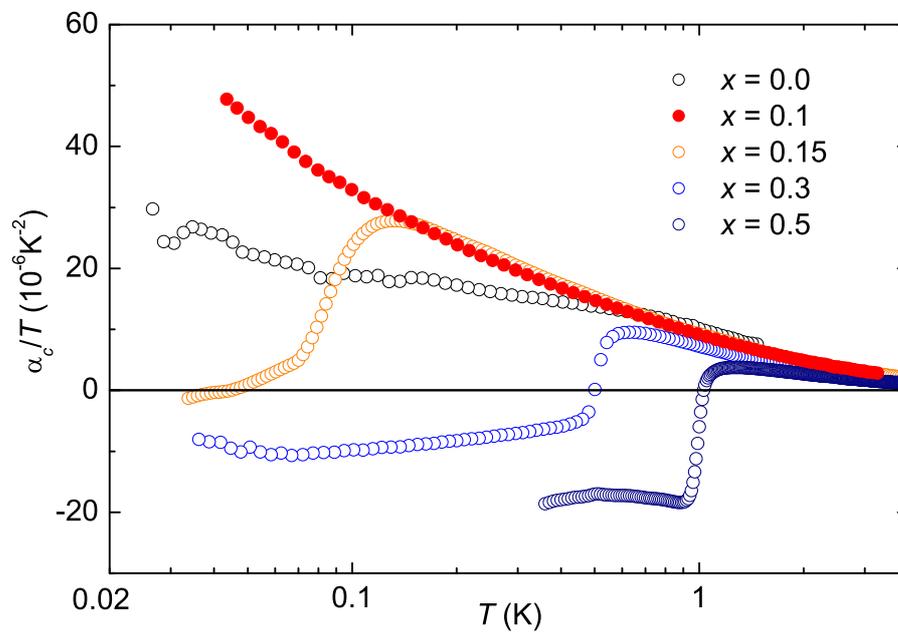


Abbildung 5.12: Der lineare Ausdehnungskoeffizient dividiert durch T entlang der c -Achse α_c/T halblogarithmisch gegen T aufgetragen für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ mit $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$.

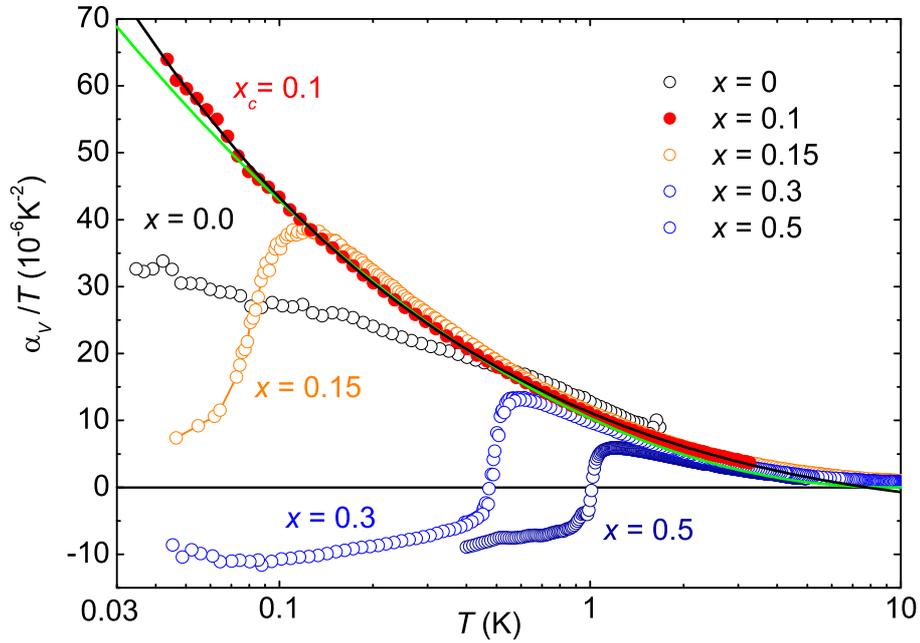


Abbildung 5.13: Der Koeffizient der thermischen Volumenexpansion α_V/T halblogarithmisch gegen T aufgetragen für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ mit $x = 0, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$. Die schwarze durchgezogene Linie zeigt die beste Anpassung mit der Funktion $\alpha(T)/T = 41 \cdot T^{-0.3}/\text{K}^{-0.3} + 3.8 \cdot \ln(T/2533 \text{ K}) \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$. Die grüne durchgezogene Linie zeigt die Anpassung mit $\alpha/T(T) = -2.1 \cdot \ln(T/9.2 \text{ K})^2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$.

$x = 0.1, 0.15$ und 0.3 eine Anomalie zu sehen. Der Grund für die Anomalie ist bisher noch nicht bekannt. Im folgenden wird in erster Linie die Ausdehnung des Volumens $\alpha_V = \alpha_a + \alpha_b + \alpha_c$ diskutiert (siehe Abbildung 5.13). Ausnahmen bilden das anisotrope Verhalten am quantenkritischen Punkt und die Magnetostruktionsmessungen.

Abbildung 5.13 zeigt alle verfügbaren Daten des Volumenausdehnungskoeffizienten dividiert durch T für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$. Mit abnehmenden Temperaturen steigt α_V/T für $x = 0.5$ an. Bei $T_N = 1 \text{ K}$ ist der Übergang zum Antiferromagnetismus zu sehen. Hier findet der Vorzeichenwechsel im thermischen Volumenausdehnungskoeffizienten statt, der auf das Durchlaufen des Maximums der Entropie zurückzuführen ist (siehe Abschnitt 3.1.1). Innerhalb des Bereiches der magnetischen Ordnung setzt sich die Divergenz von α_V/T mit umgekehrtem Vorzeichen fort. Bei $x = 0.3$ und $x = 0.15$ erhält man qualitativ den gleichen Verlauf. Der Phasenübergang findet bei $T_N = 490 \text{ mK}$ bzw. 85 mK statt.

Der Vorzeichenwechsel ist für $x = 0.3$ nicht mehr symmetrisch zur Temperaturachse. Für $x = 0.15$ ändert sich nur das Vorzeichen der Steigung und nicht mehr das Vorzeichen der Absolutwerte von α_V/T . Dies steht im Widerspruch zum theoretischen Verlauf in Abbildung 3.2 und deutet darauf hin, dass die Entropie bei $x = 0.1$ nicht maximal wird. Eine mögliche Erklärung ist ein dotierungsabhängiger Untergrund, der zu einer Verschiebung des Entropiemaximums führt. Auch in der spezifischen Wärme (Abbildung 5.5) liegen die maximalen

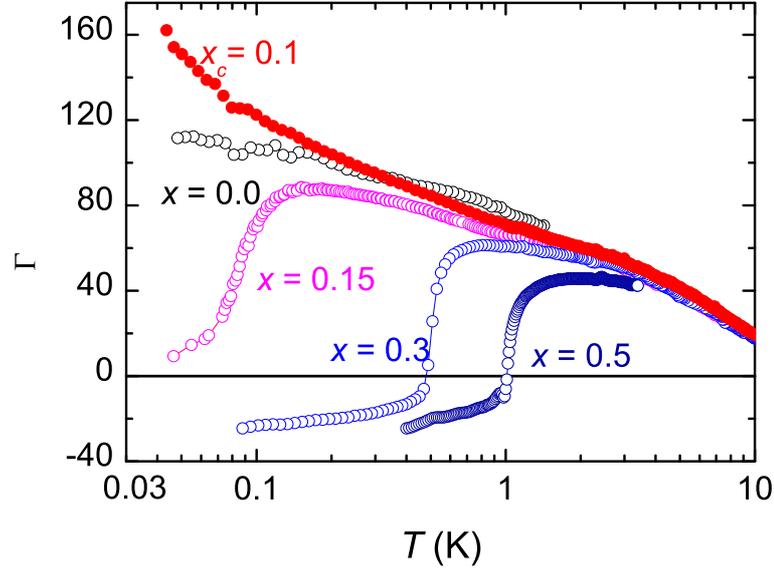


Abbildung 5.14: Der Grüneisenparameter Γ halblogarithmisch gegen T aufgetragen für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ mit $x = 0, 0,1, 0,15, 0,3, 0,5$. Die Daten für die spezifische Wärme sind aus [108] entnommen.

C/T -Werte nicht beim Einsetzen der antiferromagnetischen Ordnung, sondern bei höheren Dotierungen $x > 0,1$, was ebenfalls auf einen nichtkritischen Untergrund schließen lässt [1].

Von den gemessenen Konzentrationen des Volumenausdehnungskoeffizienten divergiert $x = 0,1$ am stärksten und weist auch die größten Absolutwerte auf. Dies gilt auch für den in Abbildung 5.14 gezeigten Grüneisenparameter Γ . Das bedeutet, dass sich $x = 0,1$ sehr nahe an einem druckinduzierten quantenkritischen Punkt befindet.

In CeCu_6 findet man im gemessenen Temperaturbereich keinen Phasenübergang. Das kritische Verhalten weicht unterhalb von $T = 0,7\text{ K}$ von der kritischen Kurve $x = 0,1$ ab. Im folgenden werden die einzelnen Messungen der hier vorgelegten Arbeit diskutiert.

5.2.3 CeCu_6

Da CeCu_6 noch nicht antiferromagnetisch ordnet, erwartet man hier eine deutlich schwächere Divergenz als in $x = 0,1$ und den Eintritt ins Fermi-Flüssigkeitsverhalten bei sehr tiefen Temperaturen. Die ursprünglichen Messungen von de Visser *et al.* [107] deuten allerdings eine vergleichsweise starke Divergenz bis zu Temperaturen von $T \approx 40\text{ mK}$ an. Um diese Messungen mit einer höheren Auflösung zu tieferen Temperaturen zu überprüfen, wurden thermische Ausdehnungs- und Magnetostruktionsmessungen durchgeführt.

Die Messungen sind in den Abbildungen 5.10, 5.11, 5.12 und 5.13 abgebildet. α_V/T divergiert bis zu der tiefsten gemessenen Temperatur von $\approx 30\text{ mK}$.

Ähnlich wie der spezifische Wärmekoeffizient nimmt für $T \rightarrow 0$ die Steigung von α_V/T ab, ohne dass der Fermi-Flüssigkeitszustand erreicht wird. Möglicherweise liegt CeCu_6 nahe am quantenkritischen Punkt oder es sind bereits Fluktuationen der magnetischen Ordnung bei $T = 2$ mK zu sehen.

5.2.4 $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$

Von allen hier gezeigten Proben liegt $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ dem quantenkritischen Punkt am nächsten: Deshalb soll hier das kritische Skalierungsverhalten untersucht werden. Dazu betrachten wir zuerst die Beiträge der einzelnen Achsen.

Anisotropie

Abbildung 5.15 (a) zeigt die drei linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ als Funktion von x bei $B = 0$. Für einen besseren Vergleich wurden in Abbildung 5.15 (b) die Werte bei $T = 100$ mK auf $\alpha_i/T = 10^{-6} \text{K}^{-2}$ skaliert. Während die Beiträge der a - und b -Achse aufeinanderfallen, weicht der Temperaturverlauf von α_c/T deutlich von diesem Verhalten ab. Da die Achsen über das elastische Gitter miteinander verbunden sind, kann diese Beobachtung nur mit mehreren Energieskalen erklärt werden, die unterschiedlich an das Kristallgitter koppeln. Über die Natur dieser zusätzlichen Energieskalen kann nur spekuliert werden. Die spezifische Wärme zeigt in diesem Temperaturbereich keine Abweichung vom logarithmischen Skalierungsverhalten. Dies liegt vermutlich daran, dass in C alle thermischen Anregungen positiv eingehen und deshalb anisotrope Beiträge nicht aufgelöst werden können.

Skalierungsverhalten

Das Skalierungsverhalten von α_i/T passt zu keinem der für HMM-Theorie berechneten [12] funktionalen Temperaturabhängigkeiten (siehe Tabelle 3.1). Für das lokale Szenario sind bisher noch keine quantitativen Voraussagen veröffentlicht worden. Um die Temperaturabhängigkeit quantitativ zu erfassen, wird im folgenden der Temperaturverlauf mit empirischen Formeln angepasst. Da oberhalb von $T \approx 600$ mK mindestens eine weitere Energieskala gefunden wurde, dürfte eigentlich nur für den Bereich $T < 600$ mK eine Anpassung durchgeführt werden. Da sich jedoch die Ergebnisse nur minimal unterscheiden, wurde der Temperaturbereich von $30 \text{ mK} < T \leq 2 \text{ K}$ gewählt, in dem die spezifische Wärme logarithmisch divergiert.

Es wurden zwei Funktionen gefunden, die die Daten beschreiben (siehe Abbildung 5.13). Die erste Funktion ist von der Form $f_1(T) = m_\alpha \cdot \ln(T/T_{0,V})^2$. Für die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten erhält man für die a - bzw. b -Achse $T_{0,a} = 3.3 \text{ K}$ bzw. $T_{0,b} = 3.9 \text{ K}$ und für die c -Achse $T_{0,b} = 11.6 \text{ K}$. Für die Volumenausdehnung α_V/T erhält man eine charakteristische Temperatur $T_{0,V} = 9.2 \text{ K}$, die in etwa dem Wert für die spezifische Wärme $C/T = -m_C \cdot \ln(T/T_0)$ mit $T_0 = 6.2 \text{ K}$ entspricht [88]. Für den Grüneisenparameter $\Gamma \propto \alpha_V/C = \ln^2(T/T_{0,V})/\ln(T/T_0) \approx \ln(T/T_0)$ hätte dies, da $T_0 \approx T_{0,V}$ ist, eine logarithmische Divergenz zur Folge. Auch dieses Verhalten steht im Widerspruch zur HMM-Theorie. Im Augenblick wird unter Theoretikern darüber diskutiert, ob eine solche Temperaturabhängigkeit durch Unordnung hervorgerufen wird [109] oder typisch für einen lokalen quantenkritischen Punkt ist [110].

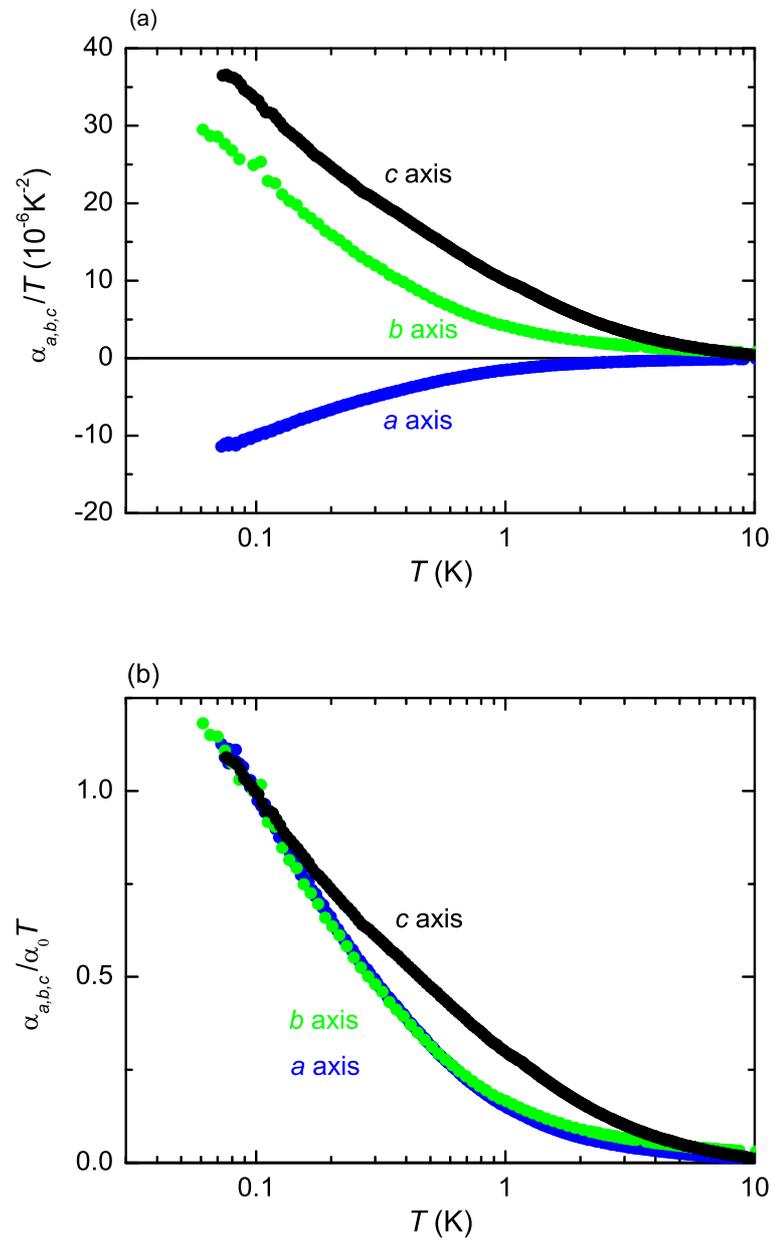


Abbildung 5.15: (a) Lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten α_i ($i = a, b$ und c) von $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$. (b) Die einzelnen Achsen sind bei $T = 100 \text{ mK}$ auf eins skaliert.

Ein möglicher, nichtkritischer, konstanter Fermi-Flüssigkeitsbeitrag wird in C/T mit $m_C \cdot \ln(T_0/1\text{ K})$ und in α_i/T für $f_1(T)$ mit $m_\alpha \cdot \ln^2(T_0/1\text{ K})$ berücksichtigt. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass es einen nichtkritischen Beitrag gibt, der temperaturabhängig ist. Im oben berechneten Grüneisenparameter gehen alle Beiträge ein. Da aber $T_0 \approx T_{0,V}$ ist, divergiert auch der kritische Beitrag zum Grüneisenparameter logarithmisch.

Der zweite funktionale Zusammenhang, mit dem die Daten beschrieben werden können, ist von der Form $f_2(T) = a \cdot T^b + m_\alpha \ln(T/T_0)$ (siehe Abbildung 5.13). Diese Funktion liefert mit dem kleineren Chi-Quadrat die bessere Anpassung. Das ist jedoch vermutlich auf die zusätzlichen Parameter zurückzuführen. Für den Grüneisenparameter ergibt sich somit eine Divergenz die etwas stärker als logarithmisch ist. Der experimentelle Fehler in den Daten erlaubt keine definitive Aussage, ob Γ logarithmisch oder stärker divergiert.

Bei der Funktion $f_2(T)$ setzt sich das Verhalten aus zwei divergierenden Beiträgen zusammen. An dieser Stelle kann spekuliert werden, ob dies Ähnlichkeit zur spezifischen Wärme von YbRh_2Si_2 besitzt, wo unterhalb von $T = 0.3\text{ K}$ neben der logarithmischen Divergenz ein zusätzlicher Beitrag $\propto T^{-0.3}$ gefunden wurde [111].

5.2.5 $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$

Aus Neutronenstreuexperimenten an $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$ -Einkristallen ist bekannt, dass hier der strukturelle Phasenübergang bei $T_{\text{strukt}} \approx 20\text{ K}$ stattfindet [92] (vgl. Abbildung 5.3). Die Messungen an $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$ wurden durchgeführt, um zu klären, ob der strukturelle und der antiferromagnetische Übergang bei der gleichen Goldkonzentration verschwinden.

Das Einsetzen der magnetischen Ordnung kann am besten in α_c beobachtet werden. Abbildung 5.16 zeigt α_c/T von $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$ bei verschiedenen konstanten Magnetfeldern. Zum Vergleich ist ebenfalls α_c/T von $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ bei $B = 0$ aufgetragen. Im Nullfeld divergiert α_c/T bis $T_M \approx 40\text{ mK}$ und geht dann gegen Null. Bei $B = 0.2\text{ T}$ verschiebt sich T_M um etwa 5 mK zu tieferen Temperaturen, ohne dass sich das Maximum in α_c ändert. Für höhere Felder bleibt das Maximum ungefähr bei der gleichen Temperatur liegen, nimmt aber stetig ab, bis es bei $B = 2.5\text{ T}$ verschwindet. Das scharfe Abfallen bei T_M kann nicht dem Antiferromagnetismus zugeschrieben werden, da bereits ein Feld von 0.2 T ausreicht, um den Magnetismus in $x = 0.15$ zu unterdrücken. Es wäre allerdings denkbar, dass der Übergang durch die Anomalie bei T_M überdeckt wird. Die kleine Verschiebung von T_M bei $B = 0.2\text{ T}$ könnte damit erklärt werden, dass hier die antiferromagnetische Ordnung unterdrückt wird.

Dass bis zu einer tiefsten Temperatur von $T = 40\text{ mK}$ weder der Übergang noch der Beginn des Übergangs beobachtet wird, ist überraschend und hat Auswirkungen auf das Phasendiagramm, welches in Abbildung 5.17 (c) dargestellt ist. Bei $x = 0.15$ liegt der Übergang mit $T_N = 89 \pm 5\text{ mK}$ bereits bei einer niedrigeren Temperatur als man bei einer linearen Extrapolation nach $x = 0.1$ erwartet würde. Der Bereich, der durch die Messungen am $x = 0.13$ -Kristall ausgeschlossen werden kann, macht eine Extrapolation nach $x = 0.1$ noch unwahrscheinlicher. Dabei ist zu beachten, dass Fluktuationen des Übergangs bereits bei höheren Temperaturen (bis zu 120 mK bei $x = 0.15$) sichtbar sein müssten. Vermutlich wird die T_N -Linie bei einer höheren Goldkonzentration zwischen $x = 0.11$ und 0.12 verschwinden. Die Trennung von strukturellem

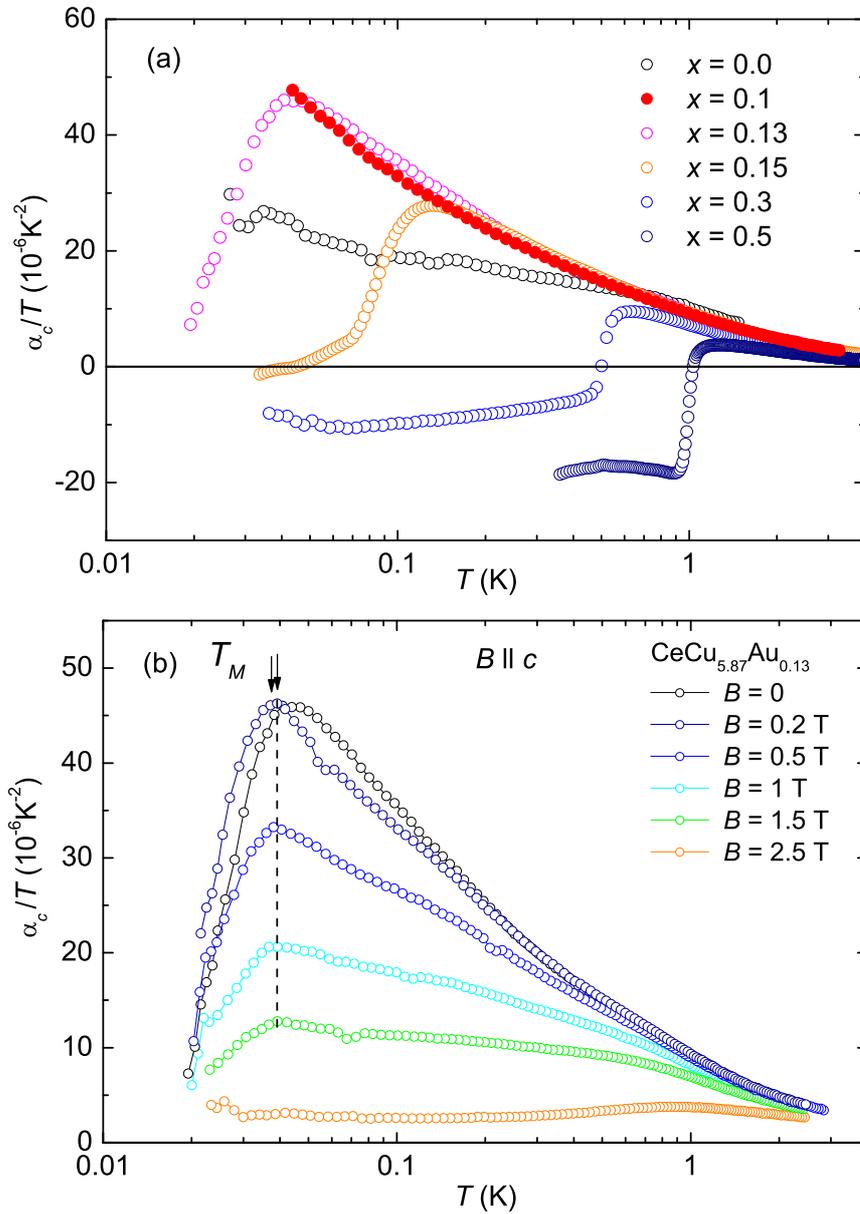


Abbildung 5.16: (a) Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient dividiert durch T entlang der c -Achse α_c/T von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ für $x = 0, 0.1, 0.13, 0.15, 0.3$ und 0.5 . (b) Die Abbildung zeigt den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_c/T von $\text{CeCu}_{5.87}\text{Au}_{0.13}$ für verschiedene Magnetfelder.

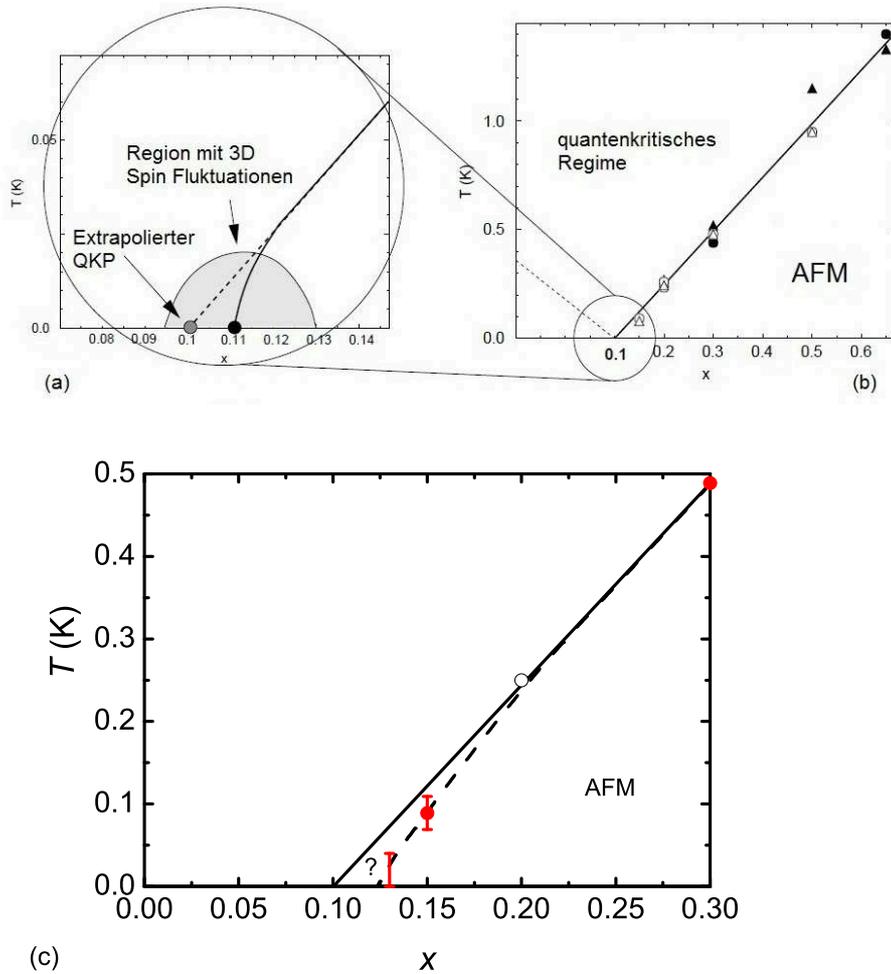


Abbildung 5.17: (a) Postuliertes Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{1-x}\text{Au}_x$ nahe $x = 0.1$ von Garst *et al.* [112]. (b) Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{1-x}\text{Au}_x$ nach Pietrus *et al.* [91]. (c) Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{1-x}\text{Au}_x$ aus Messungen der thermischen Ausdehnung (\bullet) und spezifischen Wärme (\circ) [108]. Der Fehlerbalken für $x = 0.15$ gibt den Anfang und das Ende der Fluktuationen des Übergangs an. Der Fehlerbalken für $x = 0.13$ gibt den Bereich an, in dem der Phasenübergang nicht ausgeschlossen werden kann.

und magnetischem Phasenübergang konnte somit nicht mit absoluter Sicherheit nachgewiesen werden. Weitere Messungen an Zwischendotierungen sind nötig, um diese Fragestellung zu klären.

Das Verschwinden der magnetischen Ordnung für $x > 0.1$ wurde bereits von M. Garst [112] vermutet. Ausgangspunkt der Überlegungen sind die Beobachtungen von zweidimensionalen Fluktuationen in Neutronenstreuexperimenten und thermodynamischen Messungen in $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ [113, 114]. Die lineare Abhängigkeit von $T_N(x)$ kann im Rahmen der HMM-Theorie nur mit zweidimensionalen Fluktuationen erklärt werden [113]. Bis zu den tiefsten gemessenen Temperaturen von $T = 50$ mK gibt es in $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ keine Anzeichen für dreidimensionale Fluktuationen aus der inelastischen Neutronenstreuung. Da die Korrelationslänge der Fluktuationen bei der Annäherung an den quantenkritischen Punkt divergiert, müssten die Kopplungen zwischen den zweidimensionalen Fluktuationen bei ausreichend tiefen Temperaturen zwangsläufig stark genug sein, um dreidimensionale Fluktuationen, analog zur dreidimensionalen antiferromagnetischen Ordnung, zu erzeugen. Die von Garst [112] vorgeschlagene Lösung für das Problem ist, dass der quantenkritische Punkt nicht exakt bei $x = 0.1$ sondern bei einer etwas höheren Dotierung liegt, so dass sich $x = 0.1$ außerhalb des dreidimensionalen quantenkritischen Bereichs befindet (siehe Abbildung 5.17 (a) und (b)). Der Verlauf von $T_N(x)$ würde demnach vom linearen Verlauf abweichen. Das Abfallen von α_c/T bei T_M kann nicht auf dreidimensionalen Fluktuationen zurückgeführt werden, da für dreidimensionale Fluktuationen ein divergentes Verhalten mit $\alpha_c/T \propto T^{-1/2}$ vorhergesagt wurde.

Eine mögliche Erklärung für das Abfallen von α_c/T bei T_M wäre, dass Verunreinigungen im Kristall für ein Abschneiden der kritischen Fluktuationen bei tiefen Temperaturen verantwortlich sind. Eine andere Möglichkeit wäre, dass es sich um Fluktuationen aufgrund der bekannten magnetischen Ordnung in CeCu_6 bei $T = 2$ mK handelt [89].

5.2.6 $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$

In $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$ bildet sich die antiferromagnetische Ordnung bei $T_N \approx 490$ mK aus. Die magnetische Ordnung zeigt sich am deutlichsten in dem linearen Magnetostruktionskoeffizient λ_c entlang der c -Achse.

In Abbildung 5.18 ist λ_c als Funktion von B dargestellt. Neben dem kritischen Feld $B_c \approx 1.2$ T des Antiferromagnetismus ist ein weiterer Übergang innerhalb des Bereichs der antiferromagnetischen Ordnung zu sehen. Dabei handelt es sich vermutlich um eine Spin-Flop-Phase. Mit zunehmender Temperatur ist ab $T = 400$ mK nur noch eine antiferromagnetische Phase zu sehen. Bei $T = 500$ mK wird kein Magnetismus mehr beobachtet.

Die Messdaten der thermischen Ausdehnung von $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$ sind in Abbildung 5.19 (a) zu sehen. Im Nullfeld setzt die magnetische Ordnung wie erwartet bei $T_N = 490$ mK ein. Mit zunehmendem Feld sinkt T_N . Der in Messungen der Magnetisierung [116] und des magnetokalorischen Effekts [115] beobachtete Übergang (AFM I - AFM II) ist in der thermischen Ausdehnung nicht direkt zu erkennen, da er nahezu temperaturunabhängig ist (vgl. Phasendiagramm 5.19 (b)).

Der Antiferromagnetismus ist bei $B_c \approx 1.2$ T komplett unterdrückt. Aus diesem Grund erwartet man hier einen quantenkritischen Punkt mit entsprechendem Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten zu sehen. Tatsächlich ist die stärkste

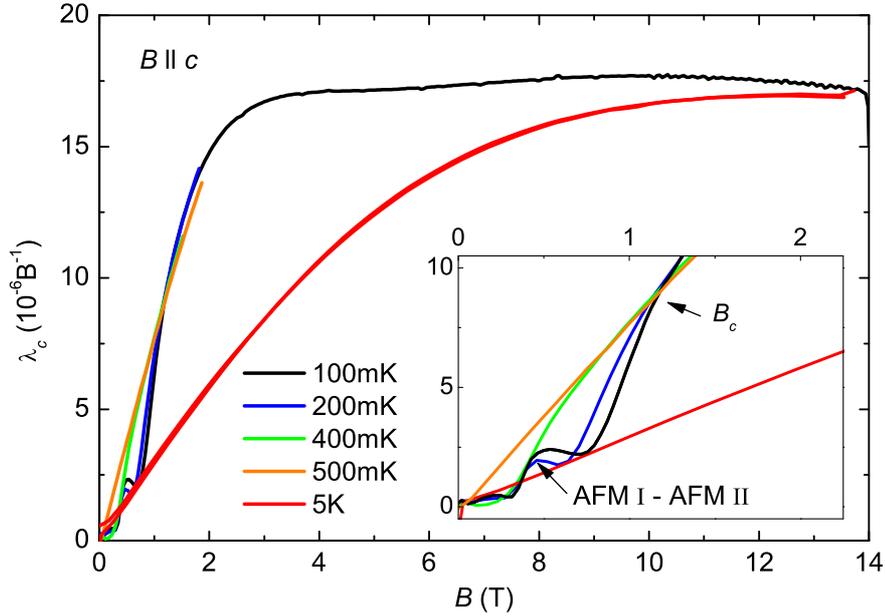


Abbildung 5.18: Linearer Magnetostruktionskoeffizient λ_c von $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$.

Divergenz in α_V/T bei B_c zu beobachten. Mit weiter zunehmendem Feld stellt sich wieder Fermi-Flüssigkeitsverhalten ein. Für $B = 14 \text{ T}$ können die Daten mit der Funktion $\alpha_V(T)/T = 0.0024 \cdot T^{-3} - 0.36$ beschrieben werden. D.h. neben einem Term $\alpha_V/T = \text{constant}$, der das Fermi-Flüssigkeitsverhalten beschreibt, gibt es noch einen Term $\alpha_V/T \propto T^{-3}$ bzw. $\alpha_V \propto T^{-2}$. Unter der Annahme eines konstanten Grüneisenparameters, d.h. $C \propto \alpha$, könnte es sich somit um den Hyperfeinbeitrag handeln.

Messungen der spezifischen Wärme [117] und Neutronenstreuexperimente [118] am kritischen Feld von $\text{CeCu}_{5.8}\text{Au}_{0.2}$ -Kristallen zeigen ein Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten, das mit der HMM-Theorie für dreidimensionale Fluktuationen beschrieben werden kann. Daraus wurde geschlossen, dass sich das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten entlang einer quantenkritischen Linie in der (x, B) -Ebene verändert: von lokal-quantenkritisch für $x = 0.1$, $B = 0$ zu HMM-quantenkritisch bei $x = 0.2$, $B = B_c$. Um das kritische Verhalten bei B_c von $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$ zu untersuchen, wurde der Grüneisenparameter mit Hilfe der in Abbildung 5.19 (a) gezeigten Messungen berechnet. In Abbildung 5.20 ist der Grüneisenparameter für den feldabhängigen und den druckabhängigen quantenkritischen Punkt bei $B = 0$ gezeigt. Als Vergleich sind in Abbildung 5.20 zusätzlich die Γ -Werte von $x = 0.1$ und $x = 0$ im Nullfeld dargestellt. Am quantenkritischen Punkt von $x = 0.3$ bei B_c divergiert Γ bis zu den tiefsten gemessenen Temperaturen. Die Divergenz ist allerdings schwächer als bei $x = 0.1$ im Nullfeld.

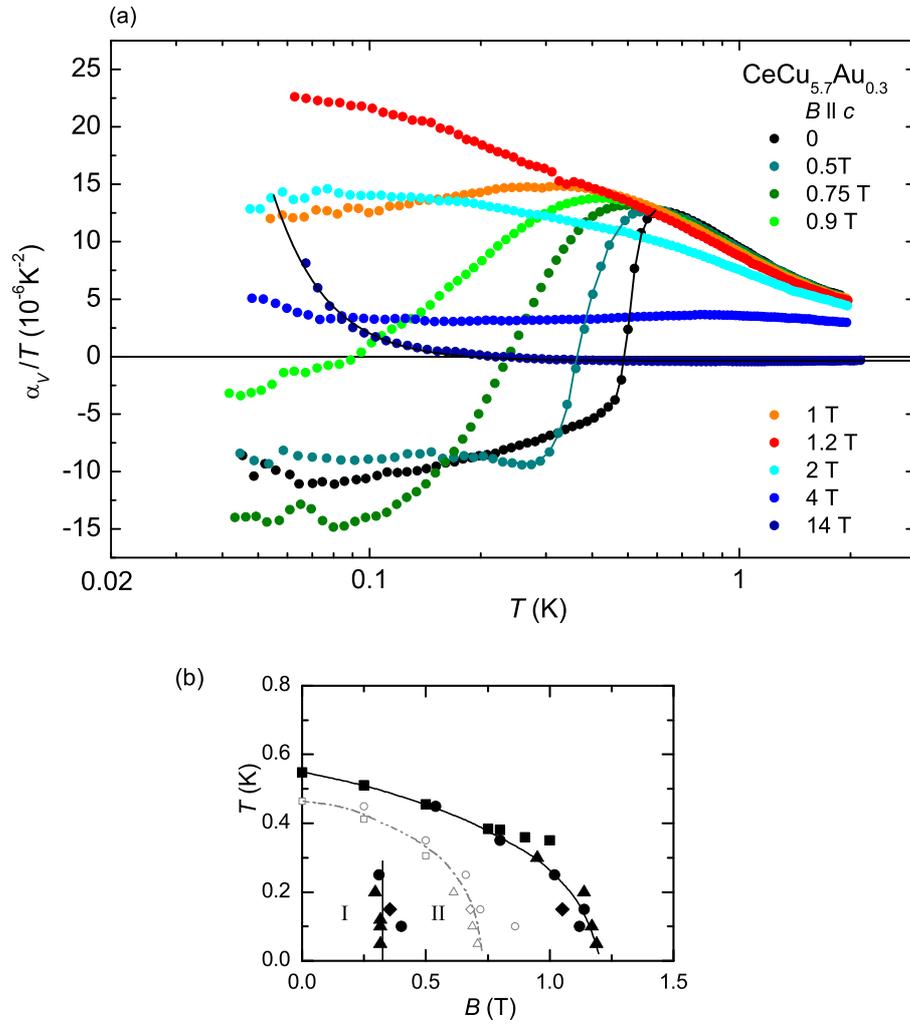


Abbildung 5.19: (a) Thermischer Volumenausdehnungskoeffizient α_V/T in verschiedenen Magnetfeldern. Die schwarze durchgezogene Linie zeigt die Anpassung mit der Funktion $\alpha_V(T)/T = 0.0024 \cdot T^{-3} - 0.36$ an die Daten bei $B = 14$ T. (b) (T, B) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{5.7}\text{Au}_{0.3}$. ■ sind aus thermischen Ausdehnungsmessungen, ▲ aus Magnetostruktionsmessungen, ● aus Messungen des magnetokalorischen Effekts [115] und ◆ aus Suszeptibilitätsmessungen [116]. Die offenen Symbole geben den Bereich der Fluktuationen des Phasenübergangs an.

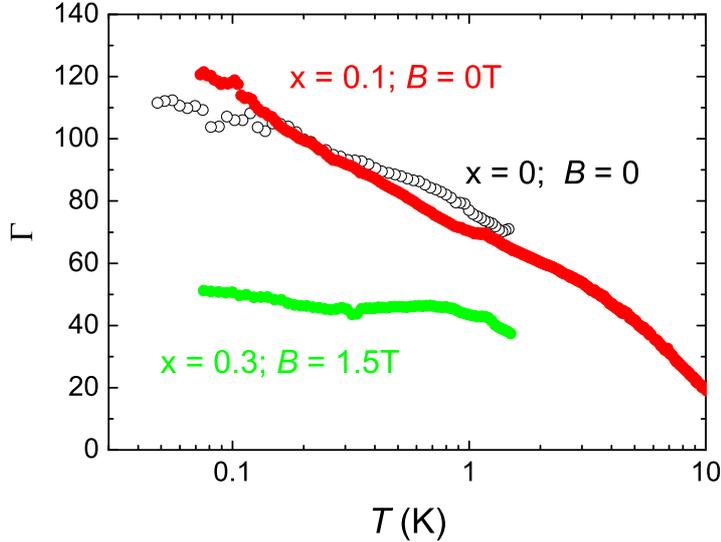


Abbildung 5.20: Der Grüneisenparameter Γ in halblogarithmischer Auftragung für den druck- (•) und feldinduzierten (◦) quantenkritischen Punkt. Zum Vergleich ist auch $x = 0$ im Nullfeld aufgetragen (◦). Die Messungen der spezifischen Wärme sind aus [115] und [108] entnommen.

5.3 Magnetostriktion

Mit Hilfe von Magnetostruktionsmessungen können die feld- und druckabhängigen charakteristischen Energieskalen E_j^* eines Systems bestimmt werden. An den entsprechenden charakteristischen Feldern $B_j^* \propto E_j^*$ ändert sich die Magnetisierung, da für höhere Felder die Ausrichtung der effektiven Momente maßgeblich durch das äußere Feld bestimmt wird. Je nach Vorzeichen der Druckabhängigkeit von E_j^* ergibt sich daher ein positives oder negatives Extremum in $\lambda_i \propto \partial M / \partial p_i |_{B=B_j^*}$. Bei Vorliegen mehrerer druckabhängiger Energien ist die Magnetostriktion eine Superposition von solchen Anomalien.

In YbRh_2Si_2 wurde unter anderem mit Magnetostruktionsmessungen eine weitere Energieskala, die am quantenkritischen Punkt verschwindet, identifiziert [103]. Daher wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit Magnetostruktionsmessungen an Kristallen mit einem Goldgehalt von $x = 0, 0,05$ und $0,3$ durchgeführt. Da der Beitrag der Kristallfeldaufspaltung zur thermischen Ausdehnung und Magnetostriktion entlang a -Achse am geringsten ist, werden im folgenden nur Messungen dieser Achse diskutiert.

5.3.1 Messungen bei $T = 100$ mK

Die Abbildung 5.21 zeigen den Magnetostruktionskoeffizient λ_a von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ für $x = 0, 0,05, 0,1, 0,15$ und $0,3$. Alle Messungen zeigen ein breites Maximum, das mit abnehmendem Goldgehalt von $B \approx 1,8$ T auf $3,5$ T verschoben wird. Für $x = 0,3$ sind bei Feldern unterhalb dieses Maximums

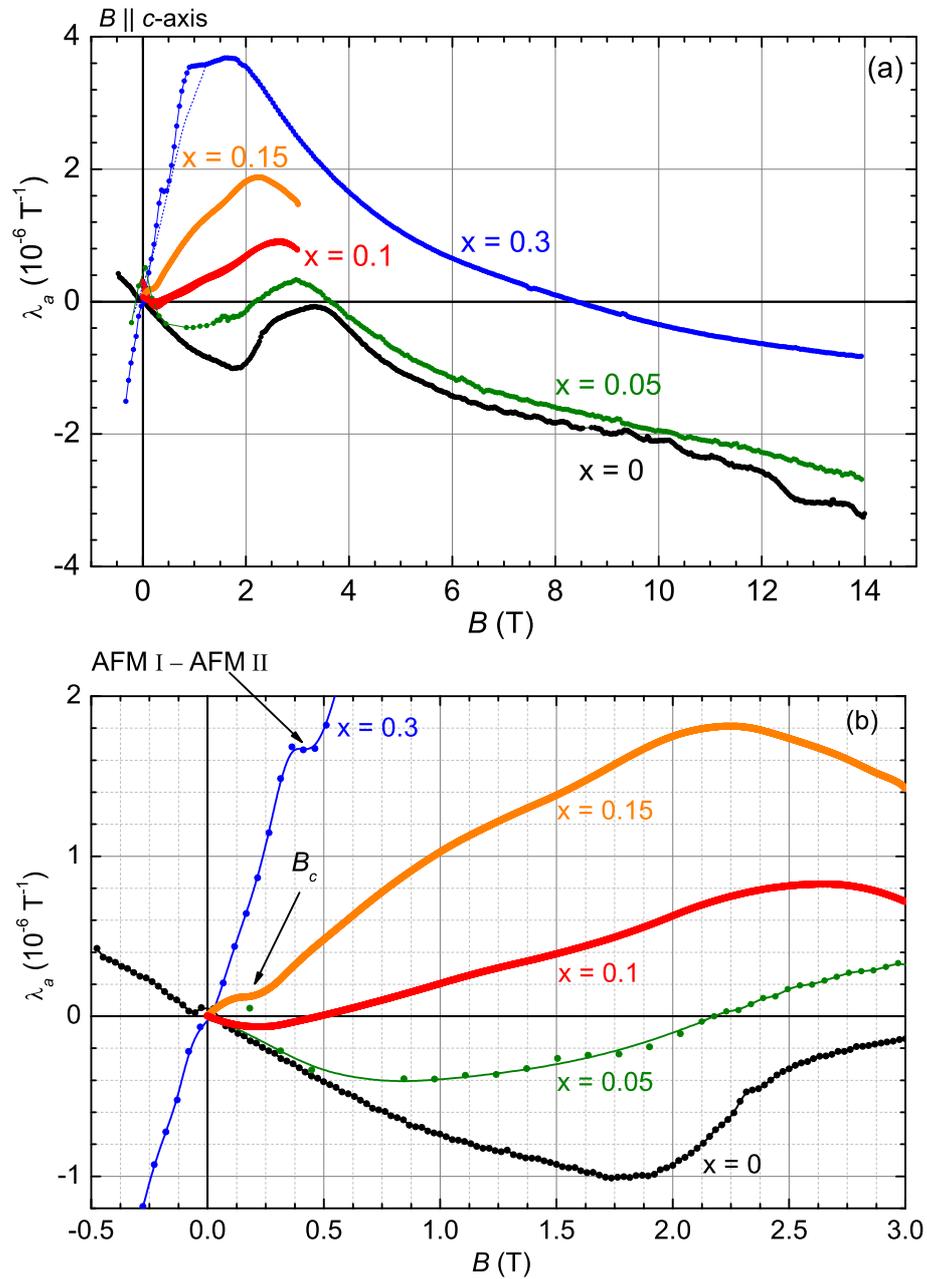


Abbildung 5.21: (a) Der Magnetostruktionskoeffizient λ_a von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$. Die Kurve für $x = 0.1$ wurden bei $T = 150$ mK gemessen, $x = 0.15$ bei 50 mK, die restlichen bei 100 mK. (b) Vergrößerter Ausschnitt für $0 \leq B \leq 3$ T.

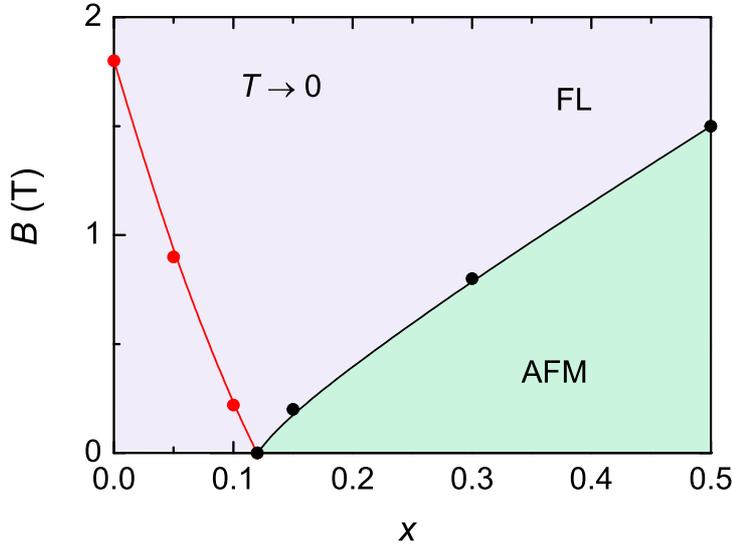


Abbildung 5.22: Phasendiagramm von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ als Funktion von x und B . Die Daten wurden auf die $T = 0$ Ebene projiziert. Die durchgezogene Linien sind Hilfslinien zur optischen Fuhung.

zwei kleine Peaks erkennbar, die den beiden antiferromagnetischen Phasen zugeordnet werden konnen. In der Probe mit dem nachstkleineren Goldgehalt von $x = 0.15$ erscheint die antiferromagnetische Ordnung als kleine positive Anomalie. Fur $x = 0.1$ ist anstatt des positiven Peaks ein Minimum in λ_a in der Nahe von $B = 0$ zu erkennen. Dieses Minimum wird mit weiter abnehmendem x zu hoheren Feldern verschoben. Der Wechsel von einem Maximum zu einem Minimum sowie die unterschiedliche x -Abhangigkeit der Position dieser Extrema demonstrieren, dass die Anomalien fur $x \leq 0.1$ und $x > 0.1$ zwei unterschiedlichen Energieskalen mit entgegengesetzten Druckabhangigkeiten zuzuordnen sind.

5.3.2 Diskussion der Messergebnisse

Die antiferromagnetische Phasengrenze und die Minima wurden auf die $T = 0$ Ebene projiziert und zu dem (x, B) -Phasendiagramm in der Abbildung 5.22 zusammengefasst. Wie bereits erwahnt, ist der exakte Verlauf der Phasengrenzlinie fur x nahe $x = 0.1$ unbekannt. Die kritische Dotierung, bei der sich der quantenkritische Punkt im Nullfeld befindet, liegt in dem Bereich $0.1 < x_c < 0.13$. Wie man anhand des Phasendiagramms erkennen kann, verschwinden die Minima in unmittelbarer Nahe von x_c . Das bedeutet, dass am quantenkritischen Punkt neben dem Antiferromagnetismus mindestens eine weitere charakteristische Energieskala $E^* = g\mu_B B^*$ verschwindet und ungefahr mit der Lage der Minima identifiziert werden kann. Das entspricht dem Verhalten, das man fur das lokale Szenario eines quantenkritischen Punkts vorausgesagt [100] und in YbRh_2Si_2 gefunden [102] hat.

Die Natur der zusätzlichen Energieskala in $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ist noch unklar. Kristallfeld-Anregungen können als mögliche Ursache ausgeschlossen werden, da sich die Anregungsenergien zu den höher gelegenen Doublets als Funktion von x nicht wesentlich ändern [119]. Ebenso sind Spin-Spin-Korrelationen durch die RKKY-Wechselwirkung unwahrscheinlich, da diese bei der Entstehung des Antiferromagnetismus am stärksten sein sollten. Falls sich bei x_c nicht die magnetischen Korrelationen drastisch ändern und eine spezielle magnetische Wechselwirkung verschwindet, bleiben als mögliche Ursachen der Kondo-Effekt und der strukturelle Phasenübergang übrig. Für das lokale quantenkritische Szenario von Si *et al.* [99] und Coleman *et al.* [100] wird der Zusammenbruch des kohärenten Kondo-Zustands vorhergesagt. Möglicherweise stellt die zusätzliche Energieskala in den Magnetostruktionsmessungen die T^* -Linie dar.

Im Unterschied zu $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ zeigen neuere Messungen an dotierten YbRh_2Si_2 Kristallen, dass hier T^* nahezu druckunabhängig ist [120], obwohl man eine starke Druckabhängigkeit von T^* für ein Kondo-System erwarten würde. Dies gab Anlass zu Spekulationen, ob die T^* -Linie in YbRh_2Si_2 durch einen Zeemann-Effekt verursacht werden kann [121].

5.3.3 Temperaturabhängigkeit der zusätzlichen Energieskala

In Abbildung 5.23 (a) sind Magnetostruktionsmessungen an CeCu_6 bei $T = 100$ mK und 500 mK als Funktion von B aufgetragen. In der Messung bei $T = 100$ mK sind bei hohen Feldern Quantenoszillationen zu sehen (vgl. Abbildung 5.23 (b)). Da die Oszillationen bereits bei $T = 500$ mK kaum noch zu erkennen sind, werden sie vermutlich von den schweren Quasiteilchen verursacht. Quantenoszillationen lassen sich nur beobachten, wenn die Ladungsträger geschlossene Kreisbahnen auf den Landau-Niveaus ausführen können. Das setzt insbesondere für Schwer-Fermion-Systeme große freie Weglängen voraus. Die Beobachtung der Oszillationen lässt daher auf einen CeCu_6 -Einkristall mit wenigen Verunreinigungen schließen.

Der Vergleich der beiden Messkurven in Abbildung 5.23 deutet an, dass das Minimum in λ_a und damit die zusätzliche Energieskala nahezu keine Temperaturabhängigkeit aufweist.

Eine andere Möglichkeit die Temperaturabhängigkeit zu untersuchen, ist die Messung der thermischen Ausdehnung bei konstanten Magnetfeldern. In Abbildung 5.24 ist α_a/T für CeCu_6 gegen T aufgetragen. Hier zeigt sich die Anomalie in der Magnetostruktion in einem ungewöhnlichen Verhalten: Wie erwartet divergiert die Nullfeldmessung. Mit zunehmendem Feld werden die α_a/T -Werte kleiner. Bei $B = 2.5$ T durchläuft $\alpha_a(T)$ im Gegensatz zu allen anderen Felder ein schwaches Minimum bei 500 mK. Bei diesem Feld wurde das Extremum bei $\lambda_a(B)$ bei 100 mK beobachtet. Bei dem nächst höheren Feld von 4 T zeigt sich wieder ein ähnlicher Temperaturverlauf wie bei $B < 2$ T aber mit einer kleineren Steigung. Da ausschließlich bei $B = 2$ T ein ungewöhnliches Verhalten gefunden wurde, bestätigen die thermischen Ausdehnungsmessungen grob die geringe Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Energieskala.

Zum Schluss sei noch darauf hingewiesen, dass im Hall-Widerstand $\rho_{xy}(B)$ mit $B \parallel c$ für Proben mit $x \leq 0.1$ ein Minimum gefunden wurde, das mit zunehmendem Goldgehalt in der Nähe von x_c verschwindet [122]. Eine der Magnetostruktion ähnliche Anomalie wurde in CeCu_6 in Messungen des magneto-

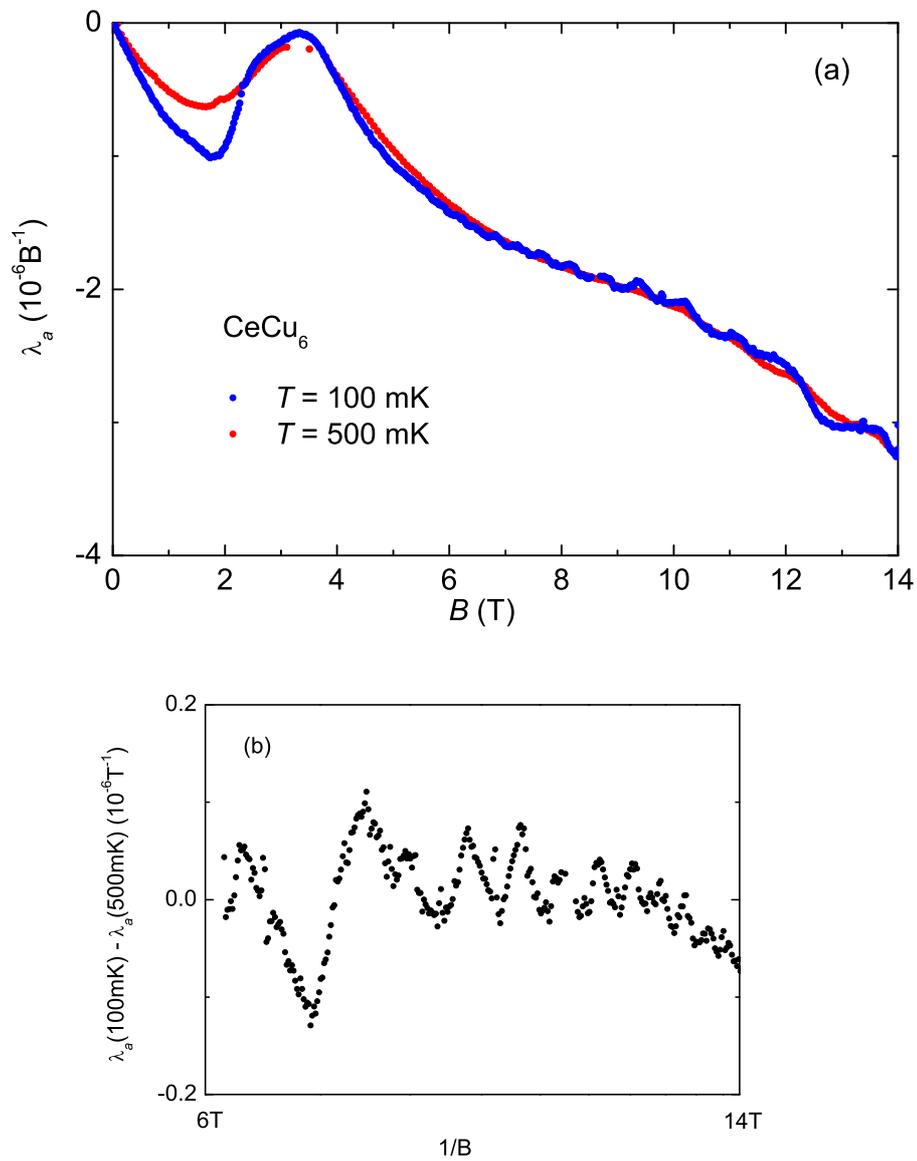


Abbildung 5.23: (a) Linearer Magnetostruktionskoeffizient λ_a für $T = 100 \text{ mK}$ und 500 mK . (b) $\lambda_a(100 \text{ mK}) - \lambda_a(500 \text{ mK})$ als Funktion von $1/B$ aufgetragen.

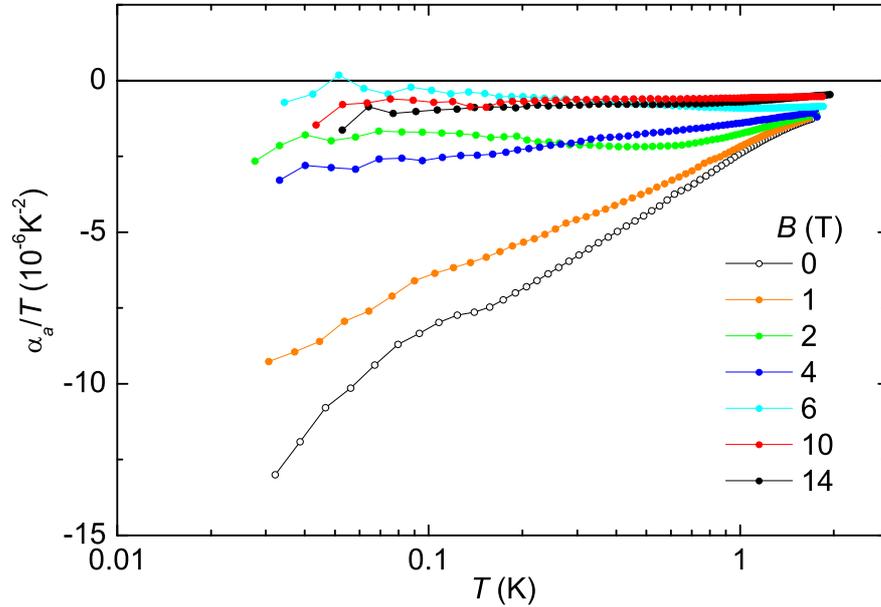


Abbildung 5.24: Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient dividiert durch T entlang der a -Achse α_a/T von CeCu_6 für verschiedene Magnetfelder.

kalorischen Effekts [123] und der Suszeptibilität dM/dB als Funktion von B beobachtet. Letztere wurde allerdings mit einem „metamagnetischen Übergang“, d.h. dem Aufbrechen magnetischer Korrelationen in Zusammenhang gebracht.

5.4 Thermokraft

Durch das im lokalen Szenario vorgeschlagene Zusammenbrechen des Kondo-Gitters ändert sich die elektronische Struktur am quantenkritischen Punkt. Im Gegensatz zu den bisher gezeigten thermodynamischen Messgrößen, bietet die Thermokraft als Transportgröße die Möglichkeit, die Entropie der freien Ladungsträger zu betrachten. Diese kann mit der gesamten Entropie verglichen werden, die mit Messungen der spezifischen Wärme und thermischen Ausdehnung bestimmt wurde.

5.4.1 Grundlagen

Nach [124] gilt für die Thermokraft¹ \tilde{S} eines freien Elektronengases die Gleichung:

$$\tilde{S} = -\frac{\pi^2}{3} \frac{k_B^2}{e} \frac{T}{E_F} \left(\frac{3}{2} + \zeta \right). \quad (5.1)$$

Hierbei ist e die Elementarladung, k_B die Boltzmann-Konstante, E_F die Fermi-Energie und ζ die Energieabhängigkeit der Streuzeit $\tau = \tau_0 E^\zeta$. Im Fermi-

¹Zur Unterscheidung von der Entropie S wird die Thermokraft mit \tilde{S} bezeichnet.

Flüssigkeitsbereich erwartet man also einen konstanten Wert für \tilde{S}/T . Gleichung 5.1 kann durch die spezifische Wärme eines freien Elektronengases

$$C_{el} = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 T N(E_F)$$

und unter der Annahme von $\zeta = 0$ ausgedrückt werden:

$$\tilde{S} = C_{el}/ne.$$

Im Fermi-Flüssigkeitsbereich misst die Thermokraft \tilde{S} die elektronische spezifische Wärme pro Ladungsträger [124] und \tilde{S}/T die Entropie pro Ladungsträger. In diesem Fall ist der Quotient der Thermokraft und des Sommerfeld-Koeffizienten $\gamma = C_{el}/T$ eine dimensionslose konstante Größe und typischerweise +1 für Elektronenleitung bzw. -1 für Löcherleitung:

$$q = \frac{\tilde{S}}{T} \frac{N_A e}{\gamma}. \quad (5.2)$$

Dabei ist N_A die Avogadro-Konstante und e die Elementarladung. Diese Proportionalität zwischen \tilde{S}/T und C_{el}/T sollte, abgesehen von der antiferromagnetischen Ordnung, auch im HMM-Szenario am quantenkritischen Punkt gelten [105]. An Gleichung 5.1 ist zu erkennen, dass Änderungen in \tilde{S}/T entweder durch ein Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten oder durch eine Änderung der Fermi-Energie E_F verursacht werden können [124]. Im Unterschied zur spezifischen Wärme des gesamten Systems gehen neutrale Spinanregungen der lokalisierten $4f$ -Momente nicht in die Thermokraft ein.

5.4.2 Bisherige Messungen

Messungen der Thermokraft \tilde{S} an $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ -Einkristallen wurden bereits in der Diplomarbeit von J. Benz begonnen [4]. Ziel dieses Teils der vorliegenden Arbeit war die Messungen in der Nähe des kritischen Goldgehalts $x = 0.1$ zu überprüfen und den Messbereich zu tieferen Temperaturen zu erweitern. Neben der $x = 0.1$ Probe wurde ebenfalls die Thermokraft an Kristallen mit $x = 0$ und $x = 0.2$ gemessen.

Abbildung 5.25 zeigt die Thermokraft von $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ aus dieser Arbeit und von J. Benz. Wie zu erkennen ist, stimmen die Daten für die Nullfeldmessungen nicht überein. Wenn man allerdings ein Feld von einem Tesla in c -Richtung anlegt, so erhält man eine gute Übereinstimmung mit den Nullfeldmessungen von Benz. Es ist daher anzunehmen, dass die Messungen von Benz versehentlich bei diesem Feld durchgeführt wurden. Dies ist plausibel, da ein Magnetfeld benutzt wurde, um Flussschläuche in die supraleitenden Lötkontakte einzufrieren und somit die thermische Ankopplung der Probe zu verbessern.

5.4.3 Messungen

Die Abbildung 5.27 zeigt \tilde{S} und \tilde{S}/T von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ für $x = 0, 0.1$ und 0.2 . Der Temperaturgradient ΔT wurde dabei immer in a -Richtung angelegt. Das Vorzeichen der Thermokraft ist für alle drei Dotierungen im gesamten Temperaturbereich positiv, wie es für Cer basierte Schwer-Fermion-Systeme im Gegensatz zu Yb-Systemen erwartet wird [124]. Die Thermokraft \tilde{S}/T divergiert für

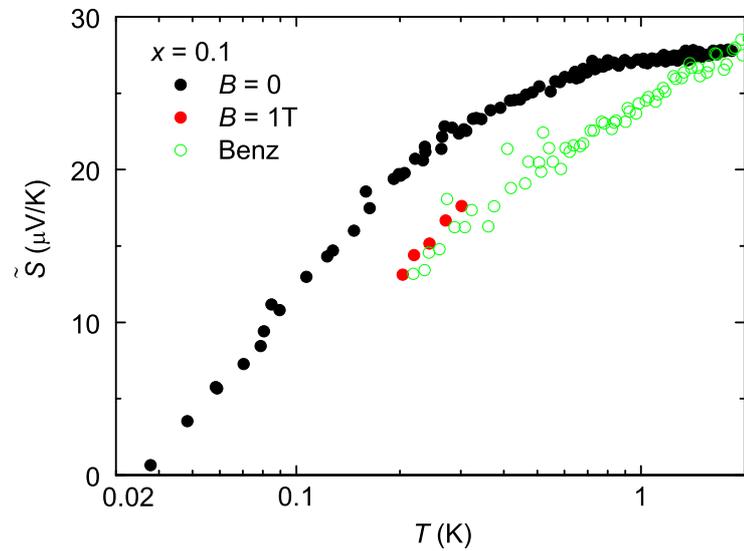


Abbildung 5.25: Vergleich der Thermokraft \tilde{S} für $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ mit Messungen von J. Benz [4]. Der Temperaturgradient ΔT wurde in a -Richtung angelegt, das Magnetfeld in c -Richtung.

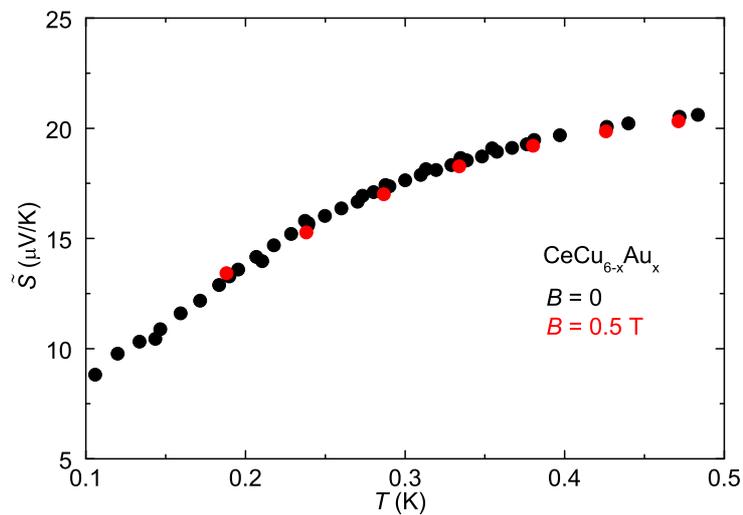


Abbildung 5.26: Thermokraft \tilde{S}/T in halblogarithmischer Auftragung von $x = 0.2$ für $B = 0$ und 0.5 T . Das Magnetfeld wurde in c -Richtung angelegt.

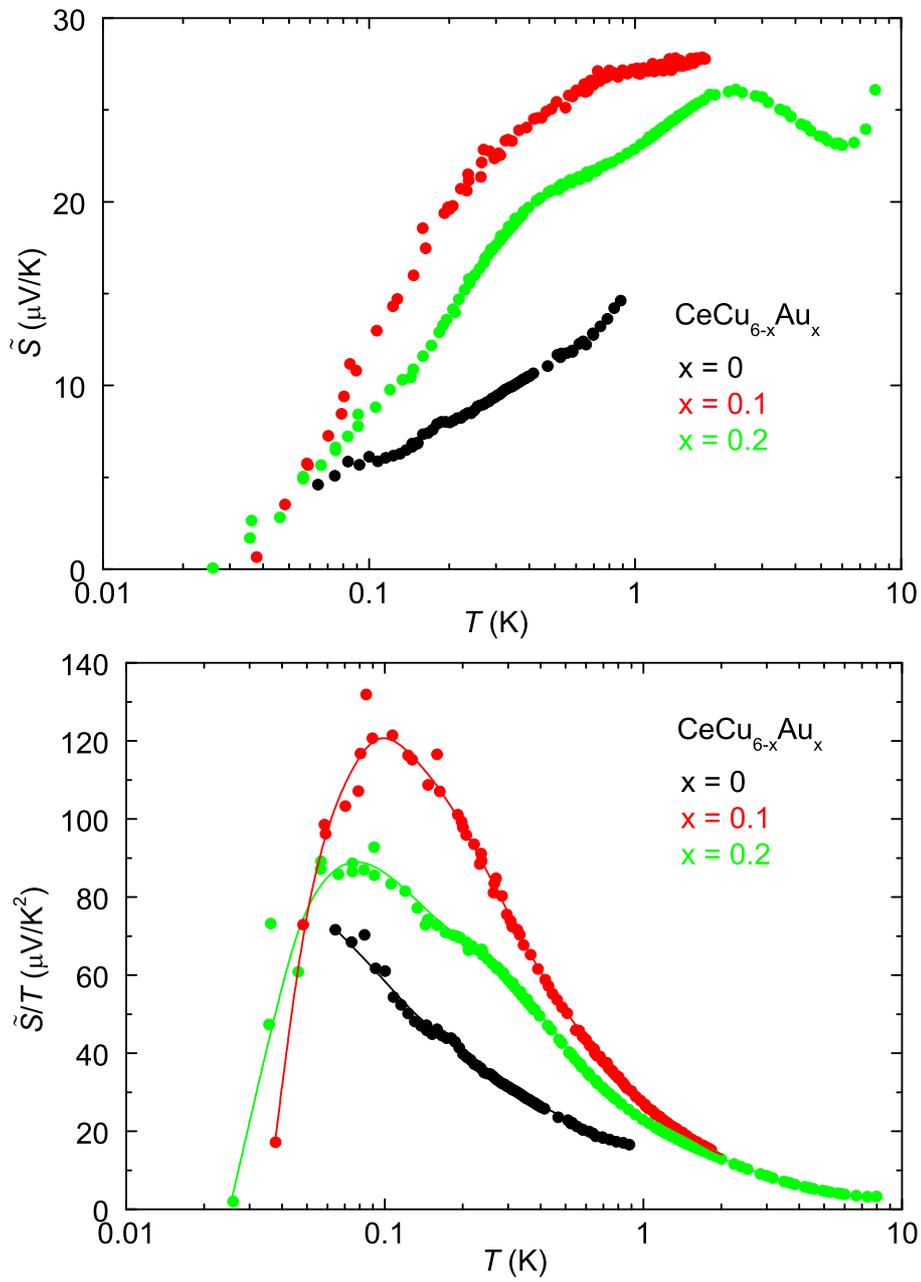


Abbildung 5.27: (a) Thermokraft \tilde{S} in halblogarithmischer Auftragung. (b) Thermokraft \tilde{S} dividiert durch T in halblogarithmischer Auftragung. Die Linien sind zur optischen Führung.

kleiner werdende Temperaturen. Am stärksten ist diese Divergenz bei $x = 0.1$ ausgeprägt. $\text{CeCu}_{5.8}\text{Au}_{0.2}$ ordnet bei $T_N = 250$ mK antiferromagnetisch. Der Phasenübergang konnte allerdings nicht aufgelöst werden. Das wurde durch eine Messung oberhalb des kritischen Feldes bei $B = 0.5$ T bestätigt (vgl. Abbildung 5.26).

Bei den Konzentrationen $x = 0.1$ und 0.2 ist für $T_M \approx 100$ mK ein Maximum in \tilde{S}/T zu erkennen. Unterhalb des Maximums gehen die Werte in \tilde{S}/T gegen Null. Extrapoliert man den Kurvenverlauf, so würde bei $T \approx 30$ mK ein Vorzeichenwechsel der Thermokraft stattfinden. Für CeCu_6 ist kein Abbruch der Divergenz bis zur kleinsten gemessenen Temperatur von 60 mK erkennbar.

5.4.4 Diskussion der Messergebnisse

Das überraschende an den \tilde{S}/T -Messungen ist das Einbrechen der Thermokraft unterhalb von $T_M \approx 100$ mK für $x = 0.1$ und 0.2 und der angedeutete Vorzeichenwechsel. Da Ce basierte Schwer-Fermion-Systemen ein positives Vorzeichen haben [124], impliziert der Vorzeichenwechsel möglicherweise die Lokalisierung der $4f$ -Elektronen. Da somit bei tiefen Temperaturen die Fermi-Fläche nur von den leichten Ladungsträgern gebildet wird, nimmt die Thermokraft sehr kleine positive oder negative Werte an [105].

Wegen des oben gezeigten Zusammenhangs zwischen dem elektrischen Beitrag zu C und \tilde{S} erwartet man für beide Größen einen ähnlichen Verlauf, wenn die Entropie des gesamten Systems hauptsächlich durch die freien Ladungsträger bestimmt wird. Zum Vergleich der beiden Größen betrachten wir den oben eingeführten Quotient q aus Gleichung 5.2. In Abbildung 5.28 ist q für $x = 0, 0.1$ und 0.2 halblogarithmisch gegen T aufgetragen. Im Bereich höherer Temperaturen steigt q mit abnehmendem T für alle drei Konzentrationen an. Dies steht im Widerspruch zu den Vorhersagen $q = \text{constant}$ der HMM-Theorie konventioneller quantenkritischer Punkte [105]. Bei tieferen Temperaturen wird q für $x = 0.2$ unterhalb von $T_N \approx 250$ mK, wo q eine abgerundete Stufe zeigt, nahezu konstant. Der Abfall der Thermokraft unterhalb von T_M wird durch den Anstieg von C/T sogar etwas überkompensiert. Im Gegensatz dazu ist für $x = 0.1$ der Abfall von \tilde{S}/T direkt in q zu sehen. Unklar ist warum die Thermokraft bei $x = 0.1$ bei $T_M = 100$ mK einbricht. Erwarten würde man, dass die $4f$ -Momente am kritischen Punkt, d.h. bei $T = 0$ lokalisieren. Überraschend ist auch, dass q für CeCu_6 zu tiefen Temperaturen ansteigt, statt in einen konstanten Wert zu münden. Zur Klärung dieser Fragen sind weitere Messungen, z.B. an Proben mit $x = 0.05$, erforderlich.

Die in Abbildung 5.27 dargestellten \tilde{S}/T -Kurven erreichen je nach Dotierung unterschiedlich hohe Werte. Da entsprechend der Gleichung 5.1 die Entropie der Ladungsträger eingeht, soll jetzt die x -Abhängigkeit von \tilde{S}/T mit der von C/T bei einer festen Temperatur verglichen werden. Hierzu wurde die Temperatur $T = 100$ mK $\gtrsim T_M$, d.h. oberhalb des Abfalls im quantenkritischen Bereich gewählt. Abbildung 5.29 zeigt \tilde{S}/T als Funktion von x . Das Maximum der Entropie der freien Ladungsträger scheint sich in der Nähe der kritischen Dotierung bei $x = 0.1$ zu befinden. In Abbildung 5.29 ist zusätzlich C/T gegen x aufgetragen. Die Steigung $d(C/T)/dx \propto dS/dp \cdot (dV/dp)^{-1} \cdot dV/dx$ wurde aus der thermischen Ausdehnung bei $T = 100$ mK abgeschätzt und ebenfalls in die Abbildung eingetragen. Die Messungen der thermischen Ausdehnung sind konsistent zu den spezifischen Wärmemessungen. Am quantenkritischen Punkt sollte sich das

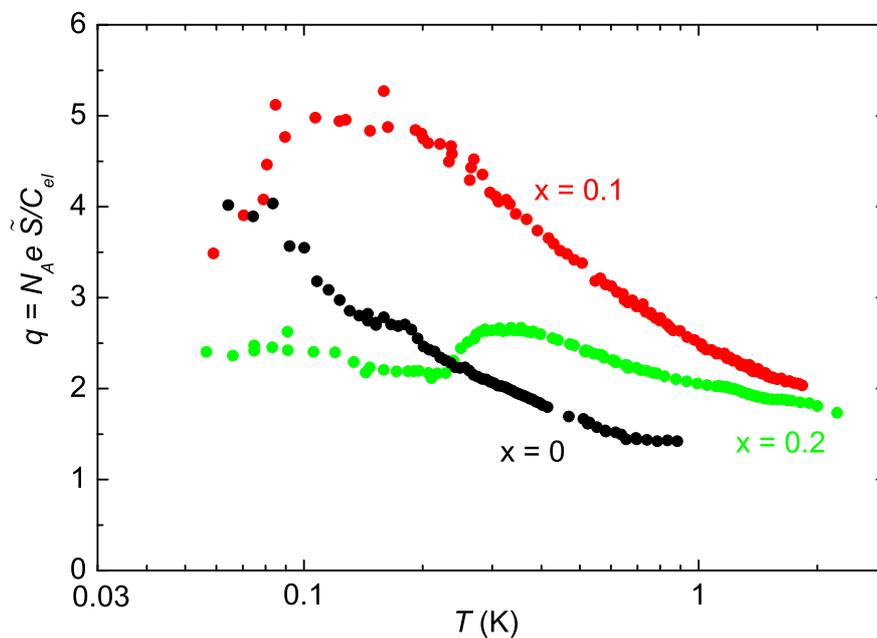


Abbildung 5.28: Dimensionsloses Verhältnis $q = \frac{S}{T} \frac{N_A v e}{\gamma}$ von Thermokraft und Sommerfeldkoeffizient.

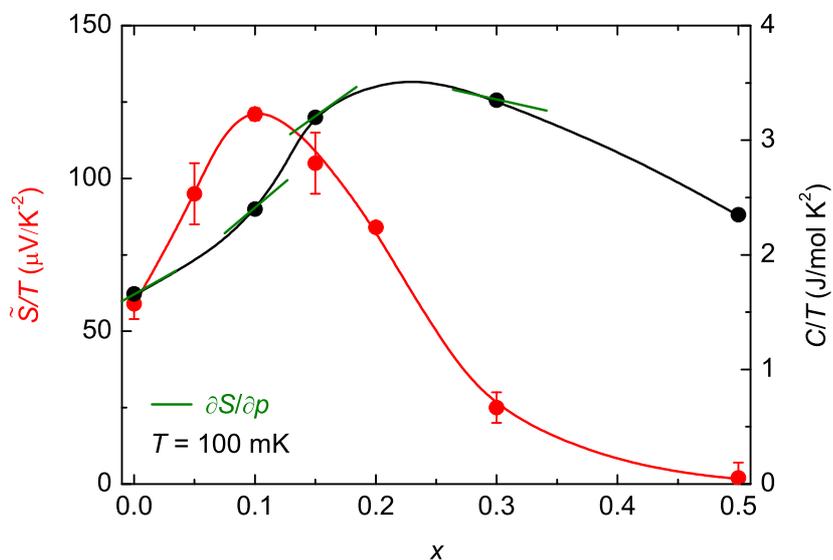


Abbildung 5.29: Vergleich der Thermokraft \tilde{S}/T und des Sommerfeldkoeffizienten C/T als Funktion des Goldgehalts. Die Daten sind bei einer Temperatur von 100 mK aufgetragen. Die thermische Ausdehnung ist als Steigung $\partial S / \partial p$ grün eingezeichnet. Die Daten der spezifischen Wärme stammen aus [108]. Die Thermokraft wurde durch Daten aus [4] erweitert.

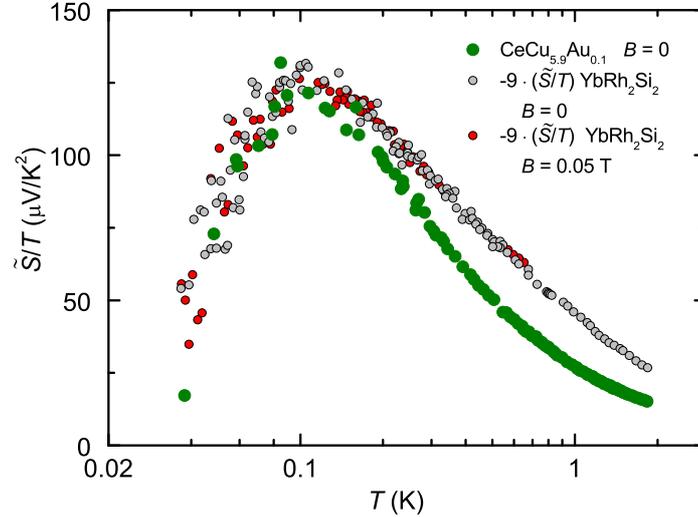


Abbildung 5.30: Vergleich der Thermokraft von $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ (\bullet) bei Nullfeld mit YbRh_2Si_2 bei einem Feld von $B = 0$ (\circ) bzw. 0.05 T (\bullet). Die Daten von YbRh_2Si_2 sind aus [104] übernommen und mit einem Faktor -9 multipliziert.

Maximum von S , d.h. $dS/dp = 0$ in C/T widerspiegeln. Überraschenderweise ist das Entropiemaximum zu höheren Goldgehalten nach $x \approx 0.25 > x_c$ verschoben. Für die gewählte konstante Temperatur $T = 100 \text{ mK}$ sollte das Maximum bei $x \approx 0.15$ liegen. Die Diskrepanz zwischen den C/T - und \tilde{S}/T -Daten betrifft den antiferromagnetisch geordneten Bereich $x > x_c \approx 0.1$, in dem die $4f$ -Momente lokalisiert sind und somit nicht mehr zur Thermokraft beitragen.

Die Verschiebung des Entropiemaximums zu höheren Dotierungen hat sich bereits in dem fehlenden Vorzeichenwechsel in α_V/T bei $x = 0.15$ gezeigt. Dort wurde über einen zusätzlichen Untergrund spekuliert. Die Messungen der Thermokraft bestätigen diese Vermutung.

5.4.5 Vergleich mit YbRh_2Si_2

$\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ und YbRh_2Si_2 sind bisher die einzigen Systeme, bei denen ein lokales quantenkritisches Verhalten als wahrscheinlich angesehen wird. Die Thermokraft von YbRh_2Si_2 [104] ist um eine Größenordnung kleiner als die von $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ und hat ein negatives Vorzeichen. Dessen ungeachtet zeigen beide Substanzen eine Divergenz in \tilde{S}/T für abnehmende Temperaturen. In beiden Fällen fällt \tilde{S}/T in der antiferromagnetisch geordneten Phase bei $x \geq x_c$ und $B \leq B_c$ unterhalb von T_M ab. Im ungeordneten Gebiet des Phasendiagramms wird in YbRh_2Si_2 unterhalb von T_{FL} Fermi-Flüssigkeitsverhalten beobachtet, d.h. $\tilde{S}/T = \text{constant}$. Dabei entspricht T_{FL} den bekannten Werten aus der spezifischen Wärme [125]. In CeCu_6 reichen die tiefsten gemessenen Temperaturen nicht aus, um den Fermi-Flüssigkeitszustand zu erreichen. Auch dies ist konsistent mit Messungen der spezifischen Wärme. Vergleicht man im Nicht-Fermi-

Flüssigkeitsbereich die absoluten Werte der beiden Verbindungen, fällt auf, dass in YbRh_2Si_2 alle Kurven auf der Messung am kritischen Feld liegen, während in $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ die Divergenz mit zunehmendem Abstand zum quantenkritischen Punkt abgeschwächt ist.

Skaliert man die Daten am quantenkritischen Punkt, so erhält man erstaunlicherweise eine gute Übereinstimmung der Messkurven (siehe Abbildung 5.30). Die Abbruchtemperatur T_M ist in $\text{CeCu}_{5,9}\text{Au}_{0,1}$ und in YbRh_2Si_2 bei $B = 0.05 \text{ T}$ nahezu gleich und in beiden Systemen deutet sich bei $T \approx 30 \text{ mK}$ ein Vorzeichenwechsel an. Die Daten der Thermokraftmessungen von YbRh_2Si_2 [104] wurden mit der Theorie des lokalen quantenkritischen Punkts von [105] verglichen. Das quantenkritische Skalierungsverhalten oberhalb von T_M konnte quantitativ wiedergegeben und das Maximum qualitativ erklärt werden. Für E^* wurde allerdings ein Wert von 40 mK anstatt der experimentell beobachteten 100 mK gefunden.

Abschließend kann gesagt werden, dass die Übereinstimmung der Thermokraftmessungen der beiden Schwer-Fermion-Systeme erstaunlich gut ist. In Anbetracht der unterschiedlichen Kristallstrukturen und der verschiedenen Kontrollparameter weist dies auf eine Universalität des lokalen Quantenphasenübergangs hin.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden die Schwer-Fermion-Systeme CeCoIn_5 und $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ untersucht. Das physikalische Verhalten beider Substanzen wird durch einen druckabhängigen quantenkritischen Punkt bestimmt. Hierzu wurden thermische Ausdehnungs- und Magnetostruktionsmessungen benutzt, um die Lage des quantenkritischen Punkts als Funktion von Druck p und Magnetfeld B auszumessen und das Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten am quantenkritischen Punkt zu analysieren.

Mittels Messungen der thermischen Ausdehnung $\alpha \propto -\partial S/\partial p$ bei verschiedenen Magnetfeldern B konnte gezeigt werden, dass sich der quantenkritische Punkt in CeCoIn_5 innerhalb der supraleitenden Phase (bei $p = 0$) bzw. bei negativem Druck (bei $B = B_{c2}$) befindet. Dies führt zu einem (p, B) -Phasendiagramm, in dem eine quantenkritische Linie von einer supraleitenden Phase abgeschirmt wird.

Für CeCoIn_5 ist die Natur des quantenkritischen Punkts noch ungeklärt. Handelt es sich um einen lokalen oder konventionellen quantenkritischen Punkt? Hierfür kann das Skalierungsverhalten am quantenkritischen Punkt hilfreich sein. Um dies zu messen, kann CeCoIn_5 mit Rh-Dotierung näher an den quantenkritischen Punkt gebracht werden. Erste Messungen an $\text{CeRh}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{In}_5$ wurden bereits in dieser Arbeit gezeigt. Hier stehen noch die Messungen der α -Achse aus, um das Skalierungsverhalten und den Vorzeichenwechsel im thermischen Volumenausdehnungskoeffizient am quantenkritischen Punkt zu untersuchen. Auch Messungen an anderen Rh-Dotierungen bieten sich an, um eventuell den Vorzeichenwechsel als Funktion der Rh-Konzentration zu analysieren.

In $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, das nicht supraleitend wird, kann der druckabhängige quantenkritische Punkt als Funktion des Gold-Gehalts bis zur tiefsten Temperatur untersucht werden. Durch Messungen an einer Probe mit der Dotierung $x = 0.13$ wurde das Phasendiagramm in der Nähe der kritischen Konzentration vervollständigt. Dabei stellte sich heraus, dass die Phasengrenzlinie bei tiefen Temperaturen vom linearen Verlauf abweicht.

$\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ war die erste Substanz, bei der ein lokales quantenkritisches Szenario vermutet wurde. Bei diesem verschwindet am quantenkritischen Punkt eine weitere Energieskala E^* , z.B. der kohärente Kondo-Gitterzustand. Mit den

hier vorgelegten Messungen wurden in thermodynamischen Messungen Indizien für ein lokales Szenario gefunden: Das Skalierungsverhalten der einzelnen Achsen in der thermischen Ausdehnung am quantenkritischen Punkt kann nur durch mehrere relevante Energieskalen erklärt werden. In Magnetostruktionsmessungen konnte zum ersten Mal eine zusätzliche Energieskala $E^* = g\mu_B B^*(x)$ als Funktion des Magnetfeldes und der Dotierung gefunden werden, die am quantenkritischen Punkt $x = x_c$ verschwindet. Für $x > x_c$ wurde keine B^* -Linie gefunden, die bei B_c verschwindet. Dies ist konsistent mit dem quantenkritischen Verhalten, dass für $x > x_c$, wo $B^*(x) = 0$, beim feldinduzierten Übergang, dem HMM-Verhalten folgt.

Für $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Anordnung für Thermokraftmessungen bei sehr tiefen Temperaturen aufgebaut. Mit Hilfe der Thermokraftmessungen kann man auf die Entropie der freien Ladungsträger schließen. Diese zeigt ein unterschiedliches Verhalten zur Gesamtentropie des Systems. Es muss noch geklärt werden, ob die Unterschiede charakteristisch für ein lokales Szenario sind.

Mit den vorliegenden Messungen konnte zudem weder die Natur der zusätzlichen Energieskala noch der nichtkritische Untergrund für $x > x_c$ geklärt werden. Um deren Eigenschaften weiter zu untersuchen sind neben zusätzlichen Messungen an weiteren Dotierungen andere Messmethoden notwendig. Für die Spin-Fluktuationen und die magnetische Ordnung bieten sich Neutronenstreuexperimente an, während Änderungen der elektronischen Struktur vermutlich am besten mit Messungen des Hall-Effekts unter Druck in Zusammenhang mit Messungen der Quantenoszillationen studiert werden können.

Literaturverzeichnis

- [1] S. Drobnik, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (2008).
- [2] S. Zaum, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2008).
- [3] M. Watanabe, M. Morishita, and Y. Ootuka, *Cryogenics* **41**, 143 (2001).
- [4] J. Benz, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (1999).
- [5] C. V. Baarle, G. J. Roest, M. K. Roest-Young, and F. W. Gorter, *Physica* **32**, 1700 (1966).
- [6] J. Kondo, *Progr. of Theor. Phys.* **32**, 37 (1964).
- [7] S. Doniach, *Physica B+C* **91**, 231 (1977).
- [8] M. Garst and A. Rosch, *Phys. Rev. B* **72**, 205129 (2005).
- [9] J. A. Hertz, *Phys. Rev. B* **14**, 1165 (1976).
- [10] A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **48**, 7183 (1993).
- [11] T. Moriya and T. Takimoto, *J. Phys. Soc. of Jpn* **64**, 960 (1995).
- [12] L. Zhu, M. Garst, A. Rosch, and Q. Si, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 066404 (2003).
- [13] C. J. Atkins, *An Introduction to Thermal Physics* (Cambridge University Press, 1987).
- [14] P. Ehrenfest, *Mitteilungen aus dem Kammerlingh Onnes-Institut Leiden* **75b**, 628 (1938).
- [15] G. Knebel, D. Braithwaite, P. C. Canfield, G. Lapertot, and J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **65**, 024425 (2001).
- [16] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, H.-W. Freye, D.M., and G. G. Lonzarich, *Nature* **394**, 39 (1998).
- [17] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz, and H. Schäfer, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1892 (1979).
- [18] O. Stockert, J. Arndt, E. Faulhaber, C. Geibel, H. S. Jeevan, S. Kirchner, M. Loewenhaupt, K. Schmalzl, W. Schmidt, Q. Si, et al., *Natu* **7**, 119 (2011).

- [19] P. Pagliuso, R. Movshovich, A. Bianchi, M. Nicklas, N. Moreno, J. Thompson, M. Hundley, J. Sarrao, and Z. Fisk, *Physica B: Cond. Matt.* **312-313**, 129 (2002).
- [20] E. Moshopoulou, J. Sarrao, P. Pagliuso, N. Moreno, J. Thompson, Z. Fisk, and R. Ibberson, *Appl. Phys. Mater. Sci. Process.* **74**, s895 (2002).
- [21] N. Curro and D. Pines, *J. Phys. Chem. Sol.* **68**, 2028 (2007).
- [22] A. L. Cornelius, A. J. Arko, J. L. Sarrao, M. F. Hundley, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **62**, 14181 (2000).
- [23] D. Hall, E. C. Palm, T. P. Murphy, S. W. Tozer, C. Petrovic, E. Miller-Ricci, L. Peabody, C. Q. H. Li, U. Alver, R. G. Goodrich, et al., *Phys. Rev. B* **64**, 064506 (2001).
- [24] R. Settai, H. Shishido, S. Ikeda, Y. Murakawa, M. Nakashima, D. Aoki, Y. Haga, H. Harima, and Y. Onuki, *J. Phys.: Cond. Matt.* **13**, L627 (2001).
- [25] Y. Kasahara, T. Iwasawa, Y. Shimizu, H. Shishido, T. Shibauchi, I. Vekhter, and Y. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 207003 (2008).
- [26] J. S. Kim, J. Alwood, G. R. Stewart, J. L. Sarrao, and J. D. Thompson, *Phys. Rev. B* **64**, 134524 (2001).
- [27] C. Petrovic, R. Movshovich, M. Jaime, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, J. L. Sarrao, Z. Fisk, and J. D. Thompson, *Europhys. Lett.* **53**, 354 (2001).
- [28] C. Capan, A. Bianchi, F. Ronning, A. Lacerda, J. D. Thompson, M. F. Hundley, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao, and R. Movshovich, *Phys. Rev. B* **70**, 180502 (2004).
- [29] W. Bao, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk, J. W. Lynn, and R. W. Erwin, *Phys. Rev. B* **62**, R14621 (2000).
- [30] G. Knebel, D. Aoki, D. Braithwaite, B. Salce, and J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **74**, 020501 (2006).
- [31] H. Hegger, C. Petrovic, E. G. Moshopoulou, M. F. Hundley, J. L. Sarrao, Z. Fisk, and J. D. Thompson, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4986 (2000).
- [32] Y. Matsuda and H. Shimahara, *J. Phys. Soc. of Jpn* **76**, 051005 (2007).
- [33] K. Izawa, H. Yamaguchi, Y. Matsuda, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 057002 (2001).
- [34] H. Aoki, T. Sakakibara, H. Shishido, R. Settai, Y. Onuki, P. Miranovic, and K. Machida, *J. Phys.: Cond. Matt.* **16**, L13 (2004).
- [35] K. Maki and T. Tsuneto, *Progr. of Theor. Phys.* **31**, 945 (1964).
- [36] P. Fulde and R. A. Ferrell, *Phys. Rev.* **135**, A550 (1964).
- [37] A. I. Larkin and Y. N. Ovchinnikov, *Sov. Phys. JETP* **20**, 762 (1965).

- [38] M. Kenzelmann, T. Th. Strässle, C. Niedermayer, M. Sigrist, B. Padmanabhan, M. Zolliker, A. D. Bianchi, R. Movshovich, E. D. Bauer, J. L. Sarrao, et al., *Science* **321**, 1652 (2008).
- [39] S. Ikeda, H. Shishido, M. Nakashima, R. Settai, D. Aoki, Y. Haga, H. Harima, Y. Aoki, T. Namiki, H. Sato, et al., *J. Phys. Soc. of Jpn* **70**, 2248 (2001).
- [40] A. Bianchi, R. Movshovich, N. Oeschler, P. Gegenwart, F. Steglich, J. D. Thompson, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 137002 (2002).
- [41] R. Movshovich, M. Jaime, J. D. Thompson, C. Petrovic, Z. Fisk, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5152 (2001).
- [42] Y. Kasahara, Y. Nakajima, K. Izawa, Y. Matsuda, K. Behnia, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, *Phys. Rev. B* **72**, 214515 (2005).
- [43] A. Bianchi, R. Movshovich, C. Capan, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 187004 (2003).
- [44] H. A. Radovan, N. A. Fortune, T. Murphy, S. Hannahs, E. C. Palm, S. W. Tozer, and D. Hall, *Nature* **425**, 51 (2003).
- [45] D. F. Agterberg, M. Sigrist, and H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 207004 (2009).
- [46] L. D. Pham, T. Park, S. Maquilon, J. D. Thompson, and Z. Fisk, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 056404 (2006).
- [47] A. Bianchi, R. Movshovich, I. Vekhter, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257001 (2003).
- [48] J. G. Donath, F. Steglich, E. D. Bauer, J. L. Sarrao, and P. Gegenwart, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 136401 (2008).
- [49] J. Paglione, M. A. Tanatar, D. G. Hawthorn, F. Ronning, R. W. Hill, M. Sutherland, L. Taillefer, and C. Petrovic, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 106606 (2006).
- [50] V. A. Sidorov, M. Nicklas, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao, Y. Bang, A. V. Balatsky, and J. D. Thompson, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 157004 (2002).
- [51] K. Kumagai, M. Saitoh, T. Oyaizu, Y. Furukawa, S. Takashima, M. Nohara, H. Takagi, and Y. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 227002 (2006).
- [52] F. Ronning, C. Capan, E. D. Bauer, J. D. Thompson, J. L. Sarrao, and R. Movshovich, *Phys. Rev. B* **73**, 064519 (2006).
- [53] C. Petrovic, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, R. Movshovich, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk, and P. Monthoux, *J. Phys.: Cond. Matt.* **13**, L337 (2001).
- [54] T. Tayama, Y. Namai, T. Sakakibara, M. Hedo, Y. Uwatoko, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. of Jpn* **74**, 1115 (2005).

- [55] H. v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta, and P. Wölfle, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1015 (2007).
- [56] M. A. Tanatar, J. Paglione, C. Petrovic, and L. Taillefer, *Science* **316**, 1320 (2007).
- [57] P. S. Normile, S. Heathman, M. Idiri, P. Boulet, J. Rebizant, F. Wastin, G. H. Lander, T. Le Bihan, and A. Lindbaum, *Phys. Rev. B* **72**, 184508 (2005).
- [58] A. de Visser, J. Flouquet, J. J. M. Franse, P. Haen, K. Hasselbach, A. Lacerda, and L. Taillefer, *Physica B: Cond. Matt.* **171**, 190 (1991).
- [59] C. F. Miclea, M. Nicklas, D. Parker, K. Maki, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, G. Sparn, and F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 117001 (2006).
- [60] J. Paglione, M. A. Tanatar, D. G. Hawthorn, E. Boaknin, R. W. Hill, F. Ronning, M. Sutherland, L. Taillefer, C. Petrovic, and P. C. Canfield, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 246405 (2003).
- [61] S. Singh, C. Capan, M. Nicklas, M. Rams, A. Gladun, H. Lee, J. F. DiTusa, Z. Fisk, F. Steglich, and S. Wirth, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 057001 (2007).
- [62] F. Ronning, C. Capan, A. Bianchi, R. Movshovich, A. Lacerda, M. F. Hundley, J. D. Thompson, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. B* **71**, 104528 (2005).
- [63] G. Knebel, D. Aoki, J. P. Brison, L. Howald, G. Lapertot, J. Panarin, S. Raymond, and J. Flouquet, *phys. stat. sol. (b)* **247**, 557 (2010).
- [64] E. Lengyel, *Antiferromagnetism and Superconductivity in Ce-based Heavy-Fermion Systems* (Cuvillier Verlag, Göttingen, 2008).
- [65] J. Donath, P. Gegenwart, M. Nicklas, F. Steglich, L. Pham, and Z. Fisk, *Physica B: Cond. Matt.* **403**, 839 (2008).
- [66] Y. Tokiwa, R. Movshovich, F. Ronning, E. D. Bauer, P. Papin, A. D. Bianchi, J. F. Rauscher, S. M. Kauzlarich, and Z. Fisk, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 037001 (2008).
- [67] S. Nair, O. Stockert, U. Witte, M. Nicklas, R. Schedler, K. Kiefer, J. D. Thompson, A. Bianchi, Z. Fisk, S. Wirth, et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **107**, 9537 (2010).
- [68] P. Monthoux, D. Pines, and G. G. Lonzarich, *Nature* **450**, 1177 (2007).
- [69] C. Pfeleiderer, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1551 (2009).
- [70] R. S. Kumar, H. Kohlmann, B. E. Light, A. L. Cornelius, V. Raghavan, T. W. Darling, and J. L. Sarrao, *Phys. Rev. B* **69**, 014515 (2004).
- [71] L. M. Ferreira, P. Pagliuso, R. Urbano, X. Gratens, N. O. Jr., R. Movshovich, J. Sarrao, and J. Thompson, *Physica C: Superconductivity* **460-462**, Part 1, 674 (2007).
- [72] J. L. Sarrao and J. D. Thompson, *J. Phys. Soc. of Jpn* **76**, 051013 (2007).

- [73] J. R. Jeffries, N. A. Frederick, E. D. Bauer, H. Kimura, V. S. Zapf, K.-D. Hof, T. A. Sayles, and M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **72**, 024551 (2005).
- [74] P. G. Pagliuso, C. Petrovic, R. Movshovich, D. Hall, M. F. Hundley, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **64**, 100503(R) (2001).
- [75] M. Nicklas, V. A. Sidorov, H. Borges, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao, and J. D. Thompson, *Phys. Rev. B* **70**, 020505(R) (2004).
- [76] T. Muramatsu, T. C. Kobayashi, K. Shimizu, K. Amaya, D. Aoki, Y. Haga, and Y. Onuki, *Physica C: Superconductivity* **388-389**, 539 (2003).
- [77] A. Bianchi, Private Mitteilung (2010).
- [78] R. Lortz, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (2002).
- [79] V. S. Zapf, E. J. Freeman, E. D. Bauer, J. Petricka, C. Sirvent, N. A. Frederick, R. P. Dickey, and M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **65**, 014506 (2001).
- [80] Y. Ida, R. Settai, Y. Ota, F. Honda, and Y. Ōnuki, *J. Phys. Soc. of Jpn* **77**, 084708 (2008).
- [81] K. Grube, W. H. Fietz, U. Tutsch, O. Stockert, and H. v. Löhneysen, *Phys. Rev. B* **60**, 11947 (1999).
- [82] R. Robinson, D. Goossens, M. Torikachvili, K. Kakurai, and H. Okumura, *Physica B: Cond. Matt.* **385-386, Part 1**, 38 (2006).
- [83] M. Ruck, G. Portisch, H. G. Schlager, M. Sieck, and H. v. Löhneysen, *Acta Cryst. B* **49**, 936 (1993).
- [84] P. Schweiss, Private Mitteilung (2008).
- [85] K. Grube, Private Mitteilung (2005).
- [86] D. Weber, M. Yoshizawa, I. Kouroudis, B. Lüthi, and E. Walker, *Europhys. Lett.* **3**, 827 (1987).
- [87] D. Finsterbusch, H. Willig, B. Wolf, G. Bruls, B. Lüthi, M. Waffenschmidt, O. Stockert, A. Schröder, and H. v. Löhneysen, *Ann. Phys. (Leipzig)* **508**, 184 (1996).
- [88] H. G. Schlager, A. Schröder, M. Welsch, and H. v. Löhneysen, *J. Low Temp. Phys.* **90**, 181 (1993).
- [89] H. Tsujii, E. Tanaka, Y. Ode, T. Katoh, T. Mamiya, S. Araki, R. Settai, and Y. Ōnuki, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5407 (2000).
- [90] J. Rossat-Mignod, L. Regnault, J. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, and A. Amato, *J. Magn. Magn. Mat.* **76-77**, 376 (1988).
- [91] T. Pietrus, B. Bogenberger, S. Mock, M. Sieck, and H. v. Löhneysen, *Physica B: Cond. Matt.* **206-207**, 317 (1995).
- [92] L. Pintschovius, Private Mitteilung (2010).

- [93] H. v. Löhneysen, *J. Phys. Cond. Matt.* **8**, 9689 (1996).
- [94] O. Stockert, Private Mitteilung (2010).
- [95] A. Hamann, Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [96] H. v. Löhneysen, S. Mock, A. Neubert, T. Pietrus, A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert, and U. Tutsch, *J. Magn. Magn. Mat.* **177-181**, 12 (1998).
- [97] H. v. Löhneysen, A. Neubert, T. Pietrus, A. Schröder, O. Stockert, U. Tutsch, M. Loewenhaupt, A. Rosch, and P. Wölffe, *Eur. Phys. J. B* **5**, 447 (1998).
- [98] A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, *Nature* **407**, 351 (2000).
- [99] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, and L. Smith, *Nature* **413**, 804 (2001).
- [100] P. Coleman, P. C., Q. Si, and R. Ramazashvili, *J. of Phys.: Cond. Matt.* **13**, R723 (2001).
- [101] Q. Si and F. Steglich, *Science* **329**, 1161 (2010).
- [102] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman, and Q. Si, *Nature* **432**, 881–885 (2004).
- [103] P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Abrahams, and Q. Si, *Science* **315**, 969 (2007).
- [104] S. Hartmann, N. Oeschler, C. Krellner, C. Geibel, S. Paschen, and F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 096401 (2010).
- [105] K.-S. Kim and C. Pépin, *Phys. Rev. B* **83**, 073104 (2011).
- [106] P. Estrela, A. de Visser, O. Stockert, K. Grube, and H. v. Löhneysen, *J. Magn. Magn. Mat.* **272-276**, 23 (2004).
- [107] A. de Visser, J. J. M. Franse, A. Lacerda, P. Haen, and J. Flouquet, *Physica B: Cond. Matt.* **163**, 49 (1990).
- [108] H. v. Löhneysen, M. Sieck, O. Stockert, and M. Waffenschmidt, *Physica B: Cond. Matt.* **223-224**, 471 (1996).
- [109] M. Garst and A. Rosch, Private Mitteilung (2011).
- [110] Q. Si, Private Mitteilung (2010).
- [111] J. Custers, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaier, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. C., and P. Coleman, *Nature* **424**, 524 (2003).
- [112] M. Garst, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (2003).
- [113] A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert, and H. v. Löhneysen, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 159 (1997).

- [114] O. Stockert, H. v. Löhneysen, A. Rosch, N. Pyka, and M. Loewenhaupt, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5627 (1998).
- [115] M. Wolf, Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2009).
- [116] O. Stockert, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (1994).
- [117] H. v. Löhneysen, C. Pfeiderer, T. Pietrus, O. Stockert, and B. Will, *Phys. Rev. B* **63**, 134411 (2001).
- [118] O. Stockert, H. v. Löhneysen, W. Schmidt, M. Enderle, and M. Loewenhaupt, *J. Low Temp. Phys.* **161**, 55 (2010).
- [119] B. Stroka, A. Schröder, T. Trappmann, H. v. Löhneysen, M. Loewenhaupt, and A. Severing, *Z. Phys. B* **90**, 155 (1993).
- [120] S. Friedemann, T. Westerkamp, M. Brando, N. Oeschler, S. Wirth, P. Gegenwart, C. Krellner, C. Geibel, and F. Steglich, *Nature Phys.* **5**, 465 (2009).
- [121] A. Hackl and M. Vojta, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 137002 (2011).
- [122] H. v. Löhneysen, H. Bartolf, C. Pfeiderer, F. Obermair, M. Vojta, and P. Wölfle, *Physica B: Cond. Matt.* **378-380**, 44 (2006).
- [123] H. v. Löhneysen, H. Schlager, and A. Schröder, *Physica B: Cond. Matt.* **186-188**, 590 (1993).
- [124] K. Behnia, D. Jaccard, and J. Flouquet, *J. Phys.: Cond. Matt.* **16**, 5187–5198 (2004).
- [125] N. Oeschler, S. Hartmann, A. Pikul, C. Krellner, C. Geibel, and F. Steglich, *Physica B: Cond. Matt.* **403**, 1254 (2008).