

Spezifischer Widerstand des partiell  
frustrierten Schwerfermionsystems  
 $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktors der Naturwissenschaften  
von der Fakultät für Physik des  
Karlsruher Institut für Technologie  
Karlsruhe

genehmigte  
DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Christian Taubenheim  
aus Münster

Tag der mündlichen Prüfung: 29.04.2016  
Referent: Prof. Dr. H. v. Löhneysen  
Korreferent: Prof. Dr. G. Weiß



# Inhalt

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Allgemeine Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Konkurrierende Wechselwirkungen . . . . .	3
2.1.1	Kondo-Effekt . . . . .	3
2.1.2	RKKY-Wechselwirkung . . . . .	4
2.1.3	Doniach-Diagramm und Quanten-Phasenübergang . . . . .	5
2.2	Geometrische Frustration . . . . .	6
2.3	Spezifischer Widerstand bei tiefen Temperaturen . . . . .	7
2.3.1	Spezifischer Widerstand von Antiferromagneten . . . . .	8
2.3.2	Spezifischer Widerstand von Schwerfermionsystemen . . . . .	9
2.3.3	Kadowaki-Woods-Verhältnis . . . . .	9
<b>3</b>	<b>Grundlagen zu CePdAl</b>	<b>11</b>
3.1	Magnetische Struktur von CePdAl . . . . .	11
3.2	Quantenphasenübergang in $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$ . . . . .	12
3.3	Phasendiagramm von CePdAl . . . . .	14
<b>4</b>	<b>Experimentelle Details</b>	<b>17</b>
<b>5</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>21</b>
5.1	CePdAl . . . . .	21
5.1.1	Spezifischer Widerstand . . . . .	21
5.1.2	Kadowaki-Woods-Verhältnis von CePdAl . . . . .	34
5.2	$\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$ . . . . .	36
5.2.1	Tieftemperaturwiderstand und Magnetowiderstand . . . . .	37
5.3	$\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$ . . . . .	42
5.3.1	Spezifischer Widerstand . . . . .	42
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>49</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>51</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>57</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Seit einigen Jahrzehnten sind Quantenphasenübergänge Gegenstand der aktuellen Forschung. Ein Quantenphasenübergang ist ein Phasenübergang zweiter Ordnung bei  $T = 0$ , daher bestimmen hier im Gegensatz zu thermisch getriebenen Phasenübergängen Quantenfluktuationen die Physik ( $k_B T \ll h\nu$ ). Findet ein kontinuierlicher Phasenübergang am absoluten Temperaturnullpunkt statt, so spricht man von einem quantenkritischen Punkt. Auch bei von Null verschiedenen Temperaturen können in der Nähe eines quantenkritischen Punktes ungewöhnliche physikalische Phänomene, wie zum Beispiel unkonventionelle Supraleitung oder Nichtfermiflüssigkeitsverhalten in Metallen, auftreten [1, 2].

Schwerfermionsysteme stellen gute Kandidaten für metallische Systeme, die sich in der Nähe eines quantenkritischen Punktes befinden, dar. Hier sorgt das Wechselspiel zwischen Kondo-Effekt und RKKY-Wechselwirkung für langreichweitige magnetische Ordnung oder paramagnetisches Verhalten. Wenn diese konkurrierenden Wechselwirkungen durch einen nichtthermischen Kontrollparameter, wie beispielsweise Druck, Magnetfeld oder chemische Zusammensetzung, beeinflusst werden können, lässt sich das System zu einem quantenkritischen Punkt treiben. Ein prominentes Beispiel hierfür ist das Schwerfermionsystem  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ , das für  $x = 0$  paramagnetisch ist und sich durch Substitution von Kupfer durch Gold zu antiferromagnetischer Ordnung treiben lässt. Hier<sup>1</sup> konnte für  $x = 0.1$  Quantenkritikalität durch chemische Zusammensetzung und für  $x > 0.1$  Quantenkritikalität durch hydrostatischen Druck beobachtet werden [3].

Ein alternativer Weg zu quantenkritischem Verhalten ist geometrische Frustration, die magnetische Ordnung unterdrückt und auf diese Weise ein System zu quantenkritischem Verhalten treiben kann [4, 5, 6]. Das partiell frustrierte

---

<sup>1</sup>In der vorliegenden Arbeit wird der Punkt als Dezimaltrennzeichen verwendet.

Kondosystem CePdAl, das in dieser Arbeit behandelt wird, ordnet unterhalb einer Néel-Temperatur  $T_N = 2.7\text{ K}$  antiferromagnetisch [7]. Durch die starke Kristallfeldanisotropie hat der Magnetismus Ising-Charakter [8]. CePdAl kann durch hohe Magnetfelder, hydrostatischen Druck oder teilweise Substitution von Palladium durch Nickel zu paramagnetischem Verhalten getrieben werden. Bei einer Nickelkonzentration von  $x \approx 0.14$  konnte in  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  Quantenkritikalität nachgewiesen werden [9]. Damit ist  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  eines der ersten Kondo-Systeme mit geometrischer Frustration, in dem quantenkritisches Verhalten gefunden wurde. Von Interesse ist hier, wie sich die Frustration auf die quantenkritischen Fluktuationen auswirkt. In [9] wurden Anzeichen dafür gefunden, dass sich die Fluktuationen in antiferromagnetischen Ebenen abspielen, die von Ebenen aus frustrierten Momenten getrennt werden. Dadurch bekommt der Quantenphasenübergang zweidimensionalen Charakter.

In der vorliegenden Arbeit wird das Widerstandsverhalten von  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  bei tiefen Temperaturen  $T$  und in verschiedenen Magnetfeldern  $B$  untersucht und diskutiert. Der Fokus liegt dabei auf reinem CePdAl, das bei tiefen Temperaturen ein komplexes ( $B$ - $T$ )-Phasendiagramm aufweist. Die quadratische Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes in Schwerfermionsystemen gilt als starkes Indiz für Fermiflüssigkeitsverhalten [10]. Anhand von eventuellen Abweichungen von diesem Verhalten nahe eines quantenkritischen Punktes lässt sich dieser charakterisieren. Der Koeffizient des zu  $T$  quadratischen Widerstandsterms, der in dieser Arbeit besondere Beachtung findet, ist ein Maß für den Streuquerschnitt der bei tiefen Temperaturen in Schwerfermionsystemen dominierenden Elektron-Elektron-Streuung. Das für Schwerfermionsysteme universelle Kadowaki-Woods-Verhältnis gibt Aufschluss über die Natur der schweren Fermionen [11].

In Kapitel 2 werden neben Grundlagen zu Schwerfermionsystemen die Beiträge zum Widerstand, die in  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  auftreten können, erklärt. Kapitel 3 gibt einen Überblick über bisherige Messungen an  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  und daraus gewonnene Erkenntnisse. Die experimentellen Methoden, die für die in dieser Arbeit diskutierten Messungen angewendet wurden, werden in Kapitel 4 erläutert. Kapitel 5 beinhaltet die Widerstandsmessungen an  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$ , die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommen wurden, und die Diskussion der Ergebnisse, die in Kapitel 6 zusammengefasst werden.

# Kapitel 2

## Allgemeine Grundlagen

Schwerfermionsysteme nennt man eine Gruppe von intermetallischen Verbindungen mit  $4f$ - oder  $5f$ -Elementen, die sich durch eine Reihe außergewöhnlicher Eigenschaften – beispielsweise einen hohen elektronischen Beitrag zur spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen – auszeichnen. Dieses Verhalten kann im Rahmen der Landau-Fermiflüssigkeitstheorie mit einer stark erhöhten effektiven Masse der Elektronen modelliert werden.

Bei tiefen Temperaturen (im Bereich von etwa 10 K) werden die physikalischen Eigenschaften von Schwerfermionsystemen durch die Elektronen in der teilweise gefüllten  $4f$ - oder  $5f$ -Schale bestimmt. Diese wirken als lokalisierte magnetische Momente. Die  $f$ -Elektronen können mit den Leitungselektronen hybridisieren, wodurch die für Schwerfermionsysteme charakteristische hohe effektive Masse der entstehenden Quasiteilchen hervorgerufen wird.

### 2.1 Konkurrierende Wechselwirkungen

In Metallen mit lokalisierten magnetischen Momenten konkurriert der Kondo-Effekt mit der RKKY-Wechselwirkung. Ersterer begünstigt durch Abschirmung einen nicht magnetischen Zustand, während die RKKY-Wechselwirkung magnetische Ordnung bewirkt.

#### 2.1.1 Kondo-Effekt

1964 konnte Kondo ein schon lange experimentell bekanntes Minimum im Temperaturverlauf des elektrischen Widerstandes einfacher Metalle, die geringe Mengen von magnetischen Verunreinigungen enthalten, erklären [12]. Kondo zeigte, dass die Streuung von Leitungselektronen an magnetischen

Störstellen in 2. Ordnung Störungstheorie zu einem logarithmischen Anstieg des elektrischen Widerstandes zu tiefen Temperaturen führt:

$$\rho_K \propto -\ln(T/T_K). \quad (2.1)$$

Unterhalb einer charakteristischen Temperatur  $T_K$  führt die Austauschwechselwirkung zwischen lokalisierten Elektronen und den Elektronen im Leitungsband dazu, dass sich ein Kondo-Singulett aus den beiden Elektronen mit antiparallelem Spin bildet und dadurch die Gesamtenergie abgesenkt wird. Bei der Streuung erfahren beide beteiligten Elektronen, deren Spins zueinander antiparallel stehen, einen doppelten Spin-Flip, wodurch der Spin des lokalisierten Momentes effektiv abgeschirmt wird. Zu tieferen Temperaturen hin bildet sich um die magnetische Verunreinigung eine Wolke aus Leitungselektronen mit Spin antiparallel zum lokalisierten Elektron, die das magnetische Moment des Elektrons abschirmt, was einen unmagnetischen Grundzustand begünstigt. Dabei variiert der Spin der Leitungselektronen periodisch mit dem Abstand zum lokalisierten Moment in Analogie zu Friedel-Oszillationen bei Potentialstreuung.

In stöchiometrischen Schwerfermionsystemen befinden sich die lokalisierten magnetischen Momente auf periodisch angeordneten Gitterplätzen. Man spricht in diesem Zusammenhang von einem Kondo-Gitter. Hierdurch ändert sich einerseits die Kondo-Temperatur gegenüber der des einzelnen Ions, andererseits setzt unterhalb einer Kohärenztemperatur  $T_{\text{coh}}$  kohärente Streuung der Leitungselektronen ein. Die Wellenfunktionen der Leitungselektronen sind dann Eigenfunktionen dieses periodischen Kondo-Gitters, was bewirkt, dass der elektrische Widerstand mit fallender Temperatur wieder sinkt. Hierbei bildet sich ein schmales Band von Elektronen mit erhöhter effektiver Masse. Infolgedessen haben Schwerfermionsysteme einen stark erhöhten Sommerfeldkoeffizienten  $\gamma$  [13]. Dieses Band liegt energetisch an der Fermikante und seine Breite ist etwa gegeben durch  $k_B T_K$  [1, 14].

### 2.1.2 RKKY-Wechselwirkung

Mit dem oben beschriebenen Kondo-Effekt konkurriert die RKKY-Wechselwirkung. Diese wurde nach Ruderman, Kittel, Kasuya und Yosida benannt, und beschreibt die Wechselwirkung von lokalisierten magnetischen Momenten über die Spinpolarisation von Leitungselektronen. Die oben erwähnten periodischen Oszillationen der magnetischen Momente der Leitungselektronen wirken auf eine zweite magnetische Störstelle. Die RKKY-Wechselwirkung

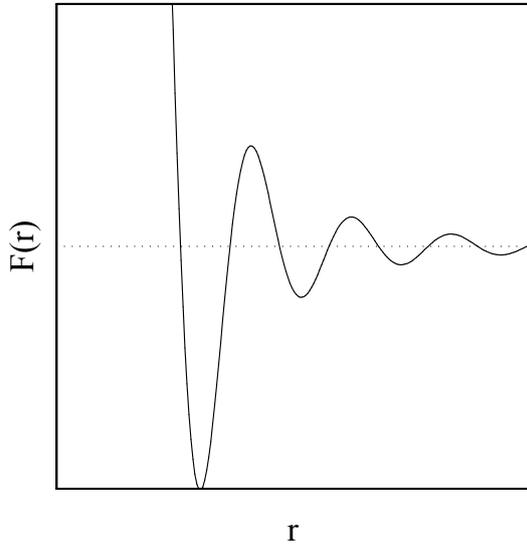


Abbildung 2.1: Stärke der RKKY-Wechselwirkung als Funktion des Abstandes (nach [15]).

variiert daher periodisch mit dem Abstand unter Vorzeichenwechsel. Bei hinreichend großen Abständen ( $r \gg k_F^{-1}$ ) verhält sie sich wie

$$J_{\text{RKKY}} \propto \frac{\cos(2k_F r)}{r^3} \quad (2.2)$$

(siehe Abb. 2.1) mit dem Fermivektor  $k_F$  und dem Abstand zum lokalisierten Moment  $r$  [15]. Wenn periodisch angeordnete lokalisierte magnetische Momente über die RKKY-Wechselwirkung koppeln, kann sich magnetische Ordnung einstellen. Abhängig vom Vorzeichen der Wechselwirkung ist die Kopplung ferromagnetisch oder antiferromagnetisch.

### 2.1.3 Doniach-Diagramm und Quanten-Phasenübergang

Welche der beiden oftmals koexistierenden Wechselwirkungen das Verhalten des Systems dominiert, hängt von der Stärke der effektiven Austauschkopplung  $J$  zwischen lokalisiertem Spin und Leitungselektron ab [16]. Anhand eines eindimensionalen Spin-1/2-Systems wurde 1977 von Doniach die Konkurrenz zwischen Kondo-Effekt und RKKY-Wechselwirkung beschrieben. Dabei kam er zu dem Ergebnis, dass einzig von der aus dieser Konkurrenz resultierenden effektiven Austauschkopplung abhängt, welchen Grundzustand ein System annimmt. Die beiden von Doniach behandelten Energieskalen verhalten sich wie folgt:

$$W_K \propto \exp\left(-\frac{1}{JN(E_F)}\right) \quad (2.3)$$

und

$$W_{\text{RKKY}} \propto J^2 N(E_{\text{F}}) \quad (2.4)$$

mit der Zustandsdichte  $N(E_{\text{F}})$  der Elektronen an der Fermikante. Abbildung

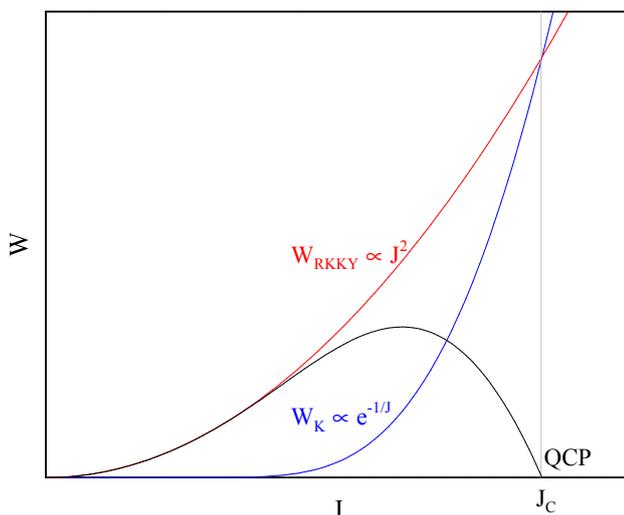


Abbildung 2.2: Doniach-Diagramm (nach [16]). Die beiden relevanten Energieskalen  $W_{\text{K}}$  und  $W_{\text{RKKY}}$  sind durch farbige Linien skizziert. Unterhalb der schwarzen Linie überwiegt die RKKY-Wechselwirkung.

2.2 zeigt das Diagramm, das sich aus Doniachs Berechnungen ergibt. Durch Subtrahieren der beiden Energieskalen voneinander lässt sich der Bereich beschreiben, in dem magnetische Ordnung stattfindet: Ist  $W_{\text{K}} < W_{\text{RKKY}}$ , so befindet sich das System in einer magnetisch geordneten Phase, ist  $W_{\text{K}} > W_{\text{RKKY}}$ , dann verhält es sich paramagnetisch.

Lässt sich  $J$  durch einen nichtthermischen Kontrollparameter, wie beispielsweise Druck, Magnetfeld oder chemische Zusammensetzung so weit verändern, dass  $J \approx J_c$  ist, legt das Doniach-Bild nahe, dass ein Phasenübergang bei  $T_c = 0$  stattfindet. Liegt ein kontinuierlicher Quantenphasenübergang vor, dann spricht man von einem quantenkritischen Punkt (QCP). Da bei  $T = 0$  keine thermischen Fluktuationen existieren, bestimmen Quantenfluktuationen das Verhalten des Systems am Phasenübergang, wodurch neuartige physikalische Effekte wie zum Beispiel Nichtfermiflüssigkeitsverhalten oder unkonventionelle Supraleitung in der Nähe eines QCP auftreten können.

## 2.2 Geometrische Frustration

Theoretische Überlegungen [4, 5, 6] weisen darauf hin, dass außer dem Kondo-Effekt auch geometrische Frustration magnetische Ordnung derartig unterdrücken kann, dass das System in die Nähe eines QCP getrieben wird. Geometrische Frustration existiert, wenn in einem Kristall ein Konflikt zwischen magnetischer Wechselwirkung und Kristallstruktur besteht. Abbildung 2.3

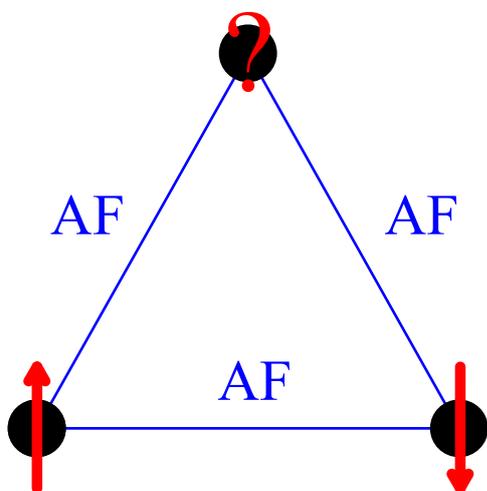


Abbildung 2.3: Einfaches Beispiel für geometrische Frustration: Das magnetische Moment auf dem oberen Gitterplatz kann sich nicht gleichzeitig gemäß der Wechselwirkung mit dem linken und dem rechten Moment ausrichten (nach [17]).

zeigt ein einfaches Beispiel für ein solches frustriertes System: In einem Ising-Antiferromagnet, bei dem die magnetischen Momente auf den Ecken eines gleichseitigen Dreiecks platziert sind, kann nicht gleichzeitig die Wechselwirkung zwischen allen nächsten Nachbarn befriedigt werden. In Abbildung 2.3 sind drei antiferromagnetisch gekoppelte Momente gezeigt. Die Wechselwirkung zwischen den beiden unteren Momenten ist berücksichtigt, sie stehen antiparallel zueinander. Für das dritte magnetische Moment ist es unmöglich, sich gleichzeitig zum linken und zum rechten unteren Moment antiparallel auszurichten und so gemäß der antiferromagnetischen Wechselwirkung seine freie Energie zu minimieren, es ist „frustriert“.

Geometrische Frustration bewirkt einen entarteten Grundzustand und erhöhte Entropie am absoluten Temperaturnullpunkt [18, 19].

## 2.3 Spezifischer Widerstand bei tiefen Temperaturen

In Abschnitt 2.1.1 wurde diskutiert, wie der Kondo-Effekt den spezifischen Widerstand zu tiefen Temperaturen hin erhöht. Außer dem Kondo-Effekt wirken sich bei tiefen Temperaturen noch andere physikalische Phänomene auf den elektrischen Widerstand aus, von denen die hier relevanten im Folgenden kurz beschrieben werden. Diese werden insbesondere unterhalb der Temperatur  $T_{\text{coh}}$  ausschlaggebend.

Für parabolische Bänder führt die Boltzmann-Gleichung auf das gleiche Ver-

halten wie für freie Elektronen (Drude-Modell [20]), bei dem der elektrische Widerstand in Abhängigkeit der Streurrate formuliert werden kann:

$$\rho = \frac{m^*}{ne^2\tau}. \quad (2.5)$$

Hier bezeichnet  $m^*$  die effektive Masse,  $n$  die Ladungsträgerdichte,  $e$  die Elementarladung und  $\tau$  die Relaxationszeit, die die Ladungsträger brauchen, um in einen Gleichgewichtszustand zu relaxieren,  $\tau^{-1}$  wird oft als die effektive Streurrate bezeichnet und kann bei Gültigkeit der Matthiessen'schen Regel als Summe der einzelnen Streuraten ausgedrückt werden [21]:

$$\tau^{-1} = \sum \tau_i^{-1}. \quad (2.6)$$

### 2.3.1 Spezifischer Widerstand von Antiferromagneten

Oberhalb der Néel-Temperatur  $T_N$  befinden sich Antiferromagneten im paramagnetischen Zustand. Die magnetischen Momente sind im Nullfeld also ungeordnet und wirken als Streuzentren. Unterhalb von  $T_N$  setzt magnetische Ordnung ein, daher erwartet man, dass der elektrische Widerstand mit fallender Temperatur sinkt. Jedoch kommt es bei Antiferromagneten oft vor, dass der Widerstand zunächst mit fallender Temperatur ansteigt, etwas unterhalb  $T_N$  ein Maximum erreicht und danach wieder abfällt. Dieser Anstieg kann so erklärt werden, dass durch die antiferromagnetische Ordnung die Einheitszelle des Kristalls vergrößert wird, da zumindest zwei antiferromagnetisch ordnende Spins darin enthalten sein müssen. Hierdurch verkleinert sich die magnetische Brillouinzone. An den Stellen, an denen diese magnetische Brillouinzone die Fermifläche schneidet, bilden sich Energielücken, was den Widerstand erhöht [22]. Ein Widerstandsmaximum bildet sich immer dann aus, wenn der magnetische Ordnungsvektor  $Q$  kleiner ist als der doppelte Fermivektor  $2k_F$ , wie zum Beispiel in [23] anhand des Schwerfermionensystems  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  diskutiert wird. Aus Impulserhaltungsgründen kann nur dann Streuung der Leitungselektronen an magnetischen Anregungen stattfinden. Ist dies nicht der Fall, gleicht der Verlauf des elektrischen Widerstandes für einen Antiferromagneten in etwa dem eines Ferromagneten, wo einsetzende Spinordnung unterhalb von  $T_c$  für einen Abfall im elektrischen Widerstand sorgt.

### Magnetowiderstand

Ausgehend von der Kubo-Formel fanden Yamada und Takada für Antiferromagneten folgende Abhängigkeiten des elektrischen Widerstands vom Magnetfeld (nach [24]):

$$\rho(B) \propto B^2 \quad (2.7)$$

für  $\mu_B B_{c1} \ll k_B T \ll k_B T_N$  und

$$\rho(B) \propto \left( \cosh\left(\frac{\mu_B B}{k_B T}\right) - 1 \right) + \frac{B}{B_{c1}} \sinh\left(\frac{\mu_B B}{k_B T}\right) \quad (2.8)$$

für  $k_B T_N, \mu_B (B_{c1} - B) \gg k_B T$ . Hier steht  $B_{c1}$  für das Feld, an dem ein Spin-Flop-Übergang stattfindet,  $k_B$  für die Boltzmannkonstante und  $\mu_B$  für das Bohr'sche Magneton. Beide Abhängigkeiten gelten nur für den Fall, dass das Magnetfeld in Richtung der magnetisch leichten Achse angelegt wird. Die Herleitung für diese Ausdrücke sowie Abhängigkeiten für ein Feld senkrecht zur magnetisch leichten Achse sind in [24] zu finden.

### 2.3.2 Spezifischer Widerstand von Schwerfermionsystemen

Bei tiefen Temperaturen verhält sich der spezifische Widerstand von Schwerfermionsystemen wie

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2 \quad (2.9)$$

mit dem temperaturunabhängigen Restwiderstand  $\rho_0$  und dem Koeffizienten  $A$ . Die quadratische Abhängigkeit rührt von Elektron-Elektron-Streuung her und ist prinzipiell auch in normalen Metallen vorhanden. Dort ist sie jedoch nur selten zu beobachten, da das Pauliprinzip verhindert, dass der Großteil der Elektronen an den Streuprozessen teilnehmen kann. Die Elektron-Elektron-Streuung ist in gewöhnlichen Metallen um den Faktor  $(T/T_F)^2$  reduziert. Aufgrund der hohen Zustandsdichte an der Fermikante ist sie in Schwerfermionsystemen jedoch von Bedeutung. Hier ist nicht  $T_F$  sondern  $T_K$  die relevante Energieskala. Der Koeffizient  $A$  repräsentiert einen Mittelwert über das Quadrat der Streuamplituden an der Fermikante, welche im Allgemeinen richtungsabhängig sind und von der Bandstruktur abhängen [1].

### 2.3.3 Kadowaki-Woods-Verhältnis

Da der Koeffizient des quadratischen Widerstandsterms sich verhält wie  $A \propto N(E_F)^2$  und der Sommerfeldkoeffizient der spezifischen Wärme wie  $\gamma \propto$

$N(E_F)$ , ist der Quotient  $A/\gamma^2$ , der als das Kadowaki-Woods-Verhältnis bekannt ist, näherungsweise materialunabhängig [1]. Dies ist für viele Schwerfermionsysteme der Fall, wie in [25] erstmals beobachtet wurde. Dort wurde folgender Wert für das Kadowaki-Woods-Verhältnis gefunden:

$$\frac{A}{\gamma^2} \simeq 10 \mu\Omega\text{cm} \cdot \text{mol}^2\text{K}^2/\text{J}^2. \quad (2.10)$$

Abweichungen von diesem universellen Wert können Auskunft über die Natur der Quasiteilchen geben [11]. Das Kadowaki-Woods-Verhältnis ist graphisch in Abbildung 2.4 gezeigt. Hier sind die  $A$ -Koeffizienten verschiedener

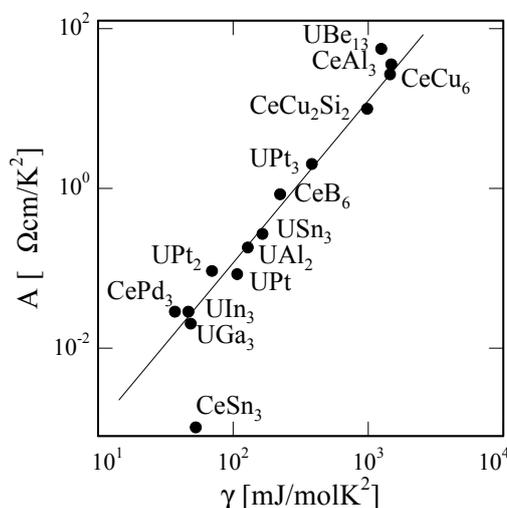


Abbildung 2.4: Widerstandskoeffizient  $A$  über den Sommerfeldkoeffizienten  $\gamma$  doppelt logarithmisch aufgetragen. Die Gerade illustriert das Kadowaki-Woods-Verhältnis (nach [25]).

Schwerfermionsysteme über deren Sommerfeldkoeffizienten doppelt logarithmisch aufgetragen. Die Steigung der Geraden ist 2.

Ein vereinheitlichtes Kadowaki-Woods-Verhältnis wurde in [26] mit dem Ausdruck

$$\frac{A f_{dx}(n)}{\gamma^2} = \frac{81}{4\pi\hbar k_B^2 e^2} \quad (2.11)$$

berechnet. Dabei ist  $f_{dx}(n) \equiv nN(E_F)^2 \langle v_{0x}^2 \rangle \xi^2$  mit der nicht durch Wechselwirkungen renormierten Zustandsdichte an der Fermikante  $N(E_F)$ .  $\langle v_{0x}^2 \rangle$  bezeichnet den über die Fermifläche integrierten Mittelwert der Geschwindigkeit in  $x$ -Richtung und  $\xi \approx 1$ . Das Kadowaki-Woods-Verhältnis ist also nicht universell, vielmehr müssen Anisotropie und Dimensionalität des Systems berücksichtigt werden.

# Kapitel 3

## Grundlagen zu CePdAl

In Abschnitt 2.3 wurde die Möglichkeit beschrieben, dass Frustration ein magnetisch ordnendes System zu einem quantenkritischen Punkt treibt. CePdAl ist ein partiell frustriertes Schwerfermionsystem, das unterhalb einer Néel-Temperatur von 2.7 K teilweise antiferromagnetisch ordnet [7]. Ein Drittel der magnetischen Cer-Momente bleibt jedoch bis zu tiefsten Temperaturen ungeordnet, wie 2008 in  $^{27}\text{Al}$ -NMR-Experimenten von Oyamada *et al.* gezeigt wurde [27]. CePdAl hat eine Kondotemperatur von etwa  $T_K \approx 5$  K [28]. Die starken Kristallfeldeffekte in CePdAl bewirken einen Ising-Charakter der magnetischen Momente [8].

Die Frage ist, wie sich diese partielle Frustration auf den Quantenphasenübergang auswirkt, der in diesem System durch hydrostatischen Druck [28] oder Substitution von Palladium durch Nickel [29, 30] erreicht werden kann.

### 3.1 Magnetische Struktur von CePdAl

CePdAl-Kristalle nehmen die hexagonale ZrNiAl-Struktur an<sup>1</sup> [32]. Die Cer-Ionen in der (*ab*)-Ebene, welche senkrecht zur magnetisch leichten *c*-Achse steht, sind dabei auf einem verzerrten Kagomé-Gitter angeordnet. Die magnetischen Momente der Cer-Ionen in der *ab*-Ebene bilden ferromagnetische Ketten, die miteinander antiferromagnetisch koppeln und durch geometrisch frustrierte Ketten voneinander getrennt sind (s. Abb. 3.1). Die in der Abbildung dargestellte Konfiguration ist das Ergebnis einer Molekularfeldrechnung

---

<sup>1</sup>Durch Tempern lässt sich auch eine orthorhombische Phase züchten [31], die in dieser Arbeit nicht untersucht wird.

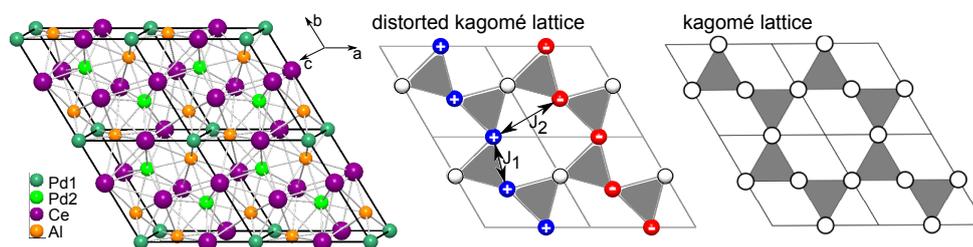


Abbildung 3.1: Kristallstruktur von CePdAl, verzerrtes Kagomé-Gitter der Cer-Ionen und nicht verzerrtes Kagomé-Gitter. (Bilder von V. Fritsch)

von Núñez-Regueiro *et al.* auf der Basis von Neutronenstreuexperimenten von Dönni *et al.* [33] mit

$$\mathcal{H} = \sum_i \Delta_i(T) |\mu_i|^2 - \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} J_{ij} \vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j \quad (3.1)$$

als Hamilton-Operator, der das System der Cer-Momente beschreibt. Dabei ist  $\Delta_i(T)$  die lokale Kondo-Kopplung auf den Gitterplätzen  $i$ ,  $J$  steht für die Austauschwechselwirkung und  $\mu$  für die magnetischen Momente. Für die Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn  $J_1 > 0$  wurde ferromagnetische Kopplung angesetzt, zwischen übernächsten Nachbarn ( $J_2$ ) wirkt antiferromagnetische Kopplung [34].

Das Modell ist kompatibel mit den Beobachtungen von Dönni *et al.* [33], macht jedoch keine Aussage über die dort gefundene Ordnung in  $c$ -Richtung. Die Neutronenstreuexperimente in [33] ergaben bei  $T = 1.5$  K an CePdAl einen inkommensurablen magnetischen Ordnungsvektor  $\mathbf{k} = [1/2, 0, \tau]$  mit  $\tau \approx 0.35$ . Erklärt werden kann diese Beobachtung mit der in [34] beschriebenen Ordnung in der  $ab$ -Ebene und einem magnetischen Moment, das, wie in Abbildung 3.2 dargestellt, in  $c$ -Richtung sinusförmig moduliert ist.

### 3.2 Quantenphasenübergang in CePd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Al

Die Néel-Temperatur in CePdAl kann zu  $T = 0$  unterdrückt werden. Dies kann – wie oben erwähnt – entweder durch hydrostatischen Druck geschehen [28] oder durch chemischen Druck, der durch teilweise Substitution von Palladium durch Nickel ausgeübt wird [29]. Im Detail wurde dies in [9] an polykristallinem CePd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Al untersucht. Dort wurde die spezifische Wärme der Substitutionsreihe CePd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Al gemessen (s. Abb.3.3). Quantenkritisches Verhalten wurde am Kristall mit der Ni-Konzentration  $x = 14.4\%$  beobachtet. Die Unterdrückung der antiferromagnetischen Ordnung wurde

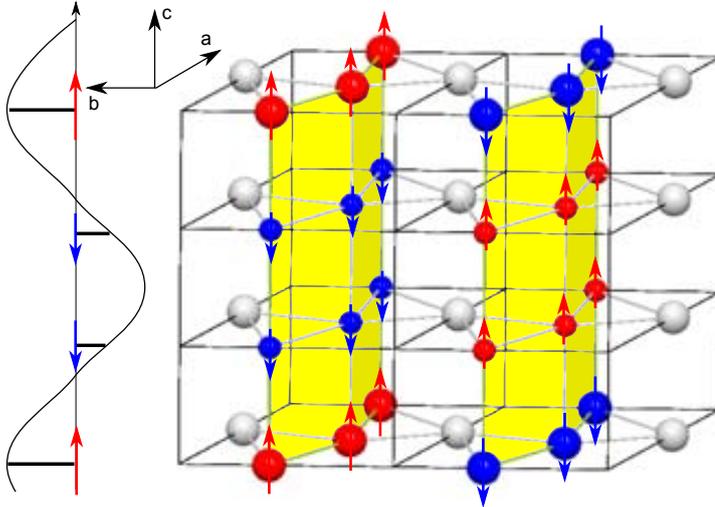


Abbildung 3.2: Magnetische Struktur von  $\text{CePdAl}$ : Die Cer-Momente bilden ferromagnetische Ketten in der  $ab$ -Ebene, die untereinander antiferromagnetisch koppeln. Die gelb ange deuteten antiferromagnetischen Zickzack-Ebenen sind durch Ebenen aus frustrierten Cer-Momenten voneinander getrennt. (aus [35] mit Erlaubnis von Springer, vgl. [9])

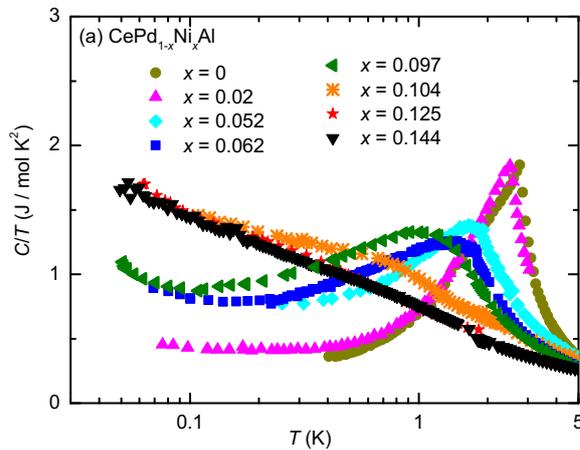


Abbildung 3.3: Spezifische Wärme der Substitutionsreihe  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  [30]: Die Néel-Temperatur wird durch teilweise Substitution von Pd durch Ni zu  $T = 0$  unterdrückt.

bereits in früheren Messungen beobachtet, ohne dass explizit ein QCP identifiziert wurde [30]. Die spezifische Wärme der quantenkritischen Konzentration verhält sich wie  $C/T \propto \log(T_0/T)$ , was nach den Berechnungen von Hertz, Millis und Moriya (HMM), die als Standardtheorie für quantenkritisches Verhalten gelten, mit zweidimensionalen Quantenfluktuationen in  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$

kompatibel ist [36, 37, 38]. Anzeichen für zweidimensionale Fluktuationen in CePdAl wurden auch schon von Goto *et al.* beobachtet, wenn man  $T_N$  durch hydrostatischen Druck zu  $T = 0$  K treibt [28]. Die Ursache für dieses zweidimensionale Verhalten könnte in den Ebenen frustrierter Cer-Momente liegen, die jeweils zwischen zwei antiferromagnetischen Ebenen sind [9].

Die spezifische Wärme des magnetischen Anteils von reinem CePdAl folgt

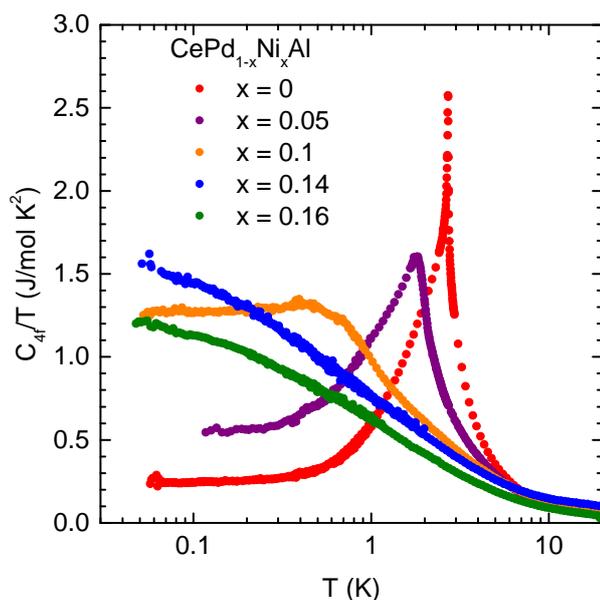


Abbildung 3.4: Spezifische Wärme der magnetischen Momente von  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$ -Einkristallen (nach [39]). Die kritische Konzentration von  $x = 14\%$  wurde bestätigt, die leichte Abweichung vom  $-\ln(T)$ -Verhalten in der  $x = 0.14$ -Kurve bedarf weiterer Untersuchungen.

bei tiefen Temperaturen der Funktion [40]

$$C = \gamma T + \beta T^2 \cdot \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right). \quad (3.2)$$

Abbildung 3.5 stellt dieses Verhalten dar. Die  $T^2$ -Abhängigkeit ist charakteristisch für antiferromagnetische Magnonen in zwei Dimensionen mit linearer Dispersion und bestätigt das Bild von antiferromagnetischen Ebenen, die durch Ebenen aus frustrierten magnetischen Momenten voneinander getrennt werden.  $\Delta$  bezeichnet dabei eine Energielücke im Magnonenspektrum mit  $\Delta/k_B \approx 920$  mK, die aufgrund der Ising-artigen Anisotropie des Systems zu erwarten ist.

### 3.3 Phasendiagramm von CePdAl

Anhand von Messungen des thermischen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha$  und der Magnetostriktion  $\lambda$  wurde von K. Grube *et al.* das  $(B, T)$ -Phasendiagramm

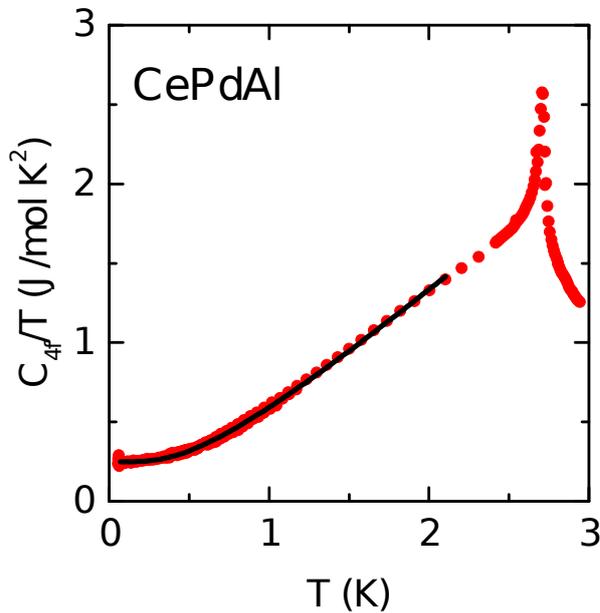


Abbildung 3.5: Spezifische Wärme  $C_{4f}$  der magnetischen Momente von einkristallinem CePdAl. Die Kurve folgt der im Text beschriebenen Funktion. (nach [40])

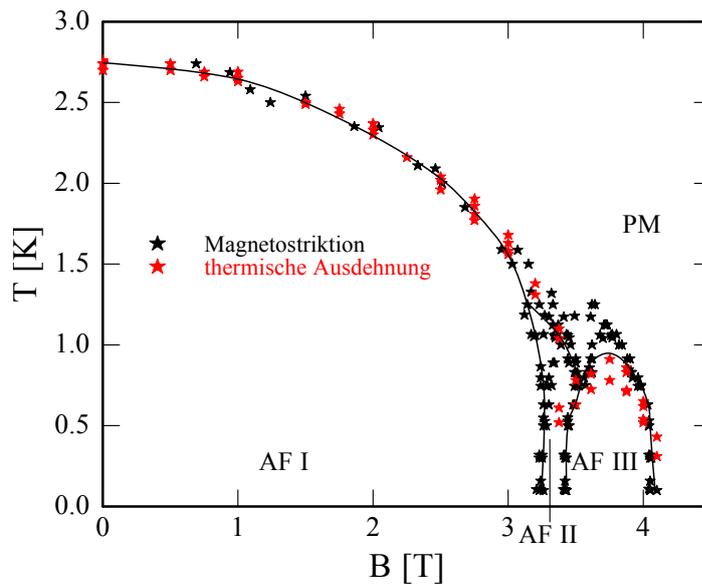


Abbildung 3.6:  $(B,T)$ -Phasendiagramm von CePdAl [41]. Im Magnetfeld durchläuft CePdAl bei tiefen Temperaturen zwei metamagnetische Übergänge.

von CePdAl ausgemessen und aufgestellt. Dieses ist in Abbildung 3.6 zu sehen. Das Phasendiagramm ist konsistent mit früheren Messungen der spezifischen Wärme [42]. Unterhalb von  $T \approx 1$  K sind drei geordnete Phasen zu erkennen, die mit AF-I, AF-II und AF-III bezeichnet werden. Während die AF-I-Phase die in 3.1 beschriebene Struktur zeigt, ist über die AF-II-Phase

und die AF-III-Phase weniger bekannt. Bei tiefen Temperaturen  $T \leq 500$  mK liegen die metamagnetischen Übergänge bei  $B_{c1} = 3.23$  T und  $B_{c2} = 3.42$  T; der Übergang in die paramagnetische Phase PM erfolgt bei  $B_{c3} = 4.05$  T [41]. Auf die Existenz dieser drei Phasen wurde schon früher von Hane *et al.* aus Magnetisierungsmessungen bei  $T = 0.51$  K geschlossen [43].

# Kapitel 4

## Experimentelle Details

Um die für die Experimente nötigen tiefen Temperaturen zu erzeugen, wurde ein  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ -Mischungskryostat vom Typ Oxford Kelvinox TLM verwendet. Dieser verfügt über eine Kühlleistung von etwa  $400\ \mu\text{W}$  bei einer Temperatur von  $100\ \text{mK}$ . Bei  $T = 80\ \text{mK}$  beträgt die Kühlleistung noch  $250\ \mu\text{W}$  [44]. Die spezifizizierte Endtemperatur von  $30\ \text{mK}$  [44] wurde in den hier vorgestellten Experimenten nicht erreicht. Stattdessen stellte sich reproduzierbar eine Endtemperatur von etwa  $50\ \text{mK}$  ein. Ein kleines Wärmeleck – beispielsweise durch die Verdrahtung – oder ein nicht ganz optimales Mischungsverhältnis von  $^3\text{He}$  zu  $^4\text{He}$  sind die wahrscheinlichsten Ursachen hierfür. Beim Oxford TLM wird die Probe über eine evakuierbare Gasschleuse in die Mischkammer des Kryostaten eingebaut. Der Mischkryostat kann bei diesem Vorgang schon auf eine Temperatur von  $T \approx 1.5\ \text{K}$  abgekühlt sein, was einen Probenwechsel innerhalb von einem Tag erlaubt. Die Probe befindet sich auf einem Probenhalter aus Kupfer, der am Ende eines etwa  $2.5\ \text{m}$  langen Probenstabes aus Edelstahl angebracht wird. Da sich während der Experimente die Probe direkt in der Mischkammer in flüssiger  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ -Mischung befindet, ist gute thermische Ankopplung an das Wärmebad gewährleistet. Dies macht einen vergleichsweise hohen Messstrom von bis zu  $1\ \text{mA}$  entsprechend einer Wärmeleistung von etwa  $10\ \text{nW}$  möglich, ohne dass die Probe durch Joule'sche Wärme merklich aufgeheizt wird.

Der Kryostat verfügt über einen supraleitenden Magneten, der bei Heliumtemperatur ein maximales Magnetfeld von  $B = 9\ \text{T}$  und bei Verwendung einer im Kryostaten ebenfalls installierten Lambdastufe ein maximales Magnetfeld von  $B = 11\ \text{T}$  erzeugen kann [44]. Da jedoch in einem Testlauf bei  $8.5\ \text{T}$  ein Quench erfolgte, wurde auf Messungen bei höheren Feldern als  $B = 7\ \text{T}$  verzichtet. Der Magnet ist an eine Oxford IPS 120-10 Stromversorgung angeschlossen, die einen maximalen Strom von  $I = 120\ \text{A}$  bei einer maximalen Spannung von  $U = 10\ \text{V}$  liefern kann [45].

Die Temperaturmessung erfolgte mit einem in Heidelberg kalibrierten Rutheniumoxid-Widerstandsthermometer, das auf geringe Magnetfeldabhängigkeit überprüft worden war. Der Messfehler der Temperatur war kleiner als 1% bei einem maximalen Magnetfeld von 7 T und einer Temperatur von 130 mK. Das Widerstandsthermometer wurde mit einer AVS-47 Widerstandsmessbrücke der Firma RV-Elektronikka Oy Picowatt ausgelesen. Wurde das Magnetfeld bei konstanter Temperatur variiert, wurde die Temperatur mit einem TS-530 A Temperaturcontroller der Firma RV-Elektronikka Oy Picowatt konstant gehalten. Als Heizwiderstand diente dabei ein Dehnungsmessstreifen, der auf dem Probenhalter aufgeklebt war.

Für die Messungen sehr kleiner Widerstände (typischerweise  $1\text{ m}\Omega$ ) wurden das Erdungskonzept und die Verdrahtung überarbeitet und bei Raumtemperatur mit Präzisionswiderständen mit den Absolutwerten  $R = 5\text{ m}\Omega$  und  $R = 1\text{ m}\Omega$  überprüft. Die Abweichung des gemessenen Wertes vom nominalen Wert der Präzisionswiderstände war nach dieser Überarbeitung etwa im Bereich der Fertigungstoleranz der Widerstände. Am Probenstab waren Anschlüsse zur simultanen Widerstandsmessung von zwei Proben vorhanden.

Die Widerstandsmessung erfolgte in Standard-Vierpunktanordnung mit einer LR-700 Widerstandsmessbrücke mit achtfachem Multiplexer der Firma Linear Research. Die Messbrücke arbeitet nach dem Lock-In-Verfahren [46] mit einer Frequenz von 16 Hz.

Die Proben wurden mit  $50\text{ }\mu\text{m}$  dickem Golddraht, der mit Leitsilber auf die Probe aufgeklebt wurde, kontaktiert. Der Messstrom war, soweit nicht anders angegeben,  $1\text{ mA}$ . Dabei wurde bei jeder neu kontaktierten Probe bei tiefster gemessener Temperatur verifiziert, dass die Probe durch den Messstrom nicht messbar aufgeheizt wurde. Auf den Probenhalter wurden die Proben mit Tieftemperaturkleber<sup>1</sup> aufgeklebt, als Isolationsschicht zwischen Probenhalter und Probe diente ein Stück Zigarettenpapier, welches mit verdünntem Tieftemperaturkleber aufgeklebt war. Diese Konfiguration sorgt für guten thermischen Kontakt zum Probenhalter und damit zum Thermometer [47]. Der Widerstand wurde während des Abkühlvorgangs gemessen, da dieser wesentlich länger dauert als der Aufwärmvorgang und die Probe somit gut thermalisiert war. Typischerweise dauerte es zehn Stunden, bis die Endtemperatur erreicht war. Die Messungen des Widerstandes als Funktion der Temperatur erfolgten größtenteils über Nacht.

Für die Widerstandsmessung wurden zwei Messprogramme mit der graphischen Programmierumgebung LabVIEW<sup>2</sup> geschrieben. Das Programm liest simultan den Widerstand der Proben und des Widerstandsthermometers aus

---

<sup>1</sup>GVL Cryoengineering 7031 Varnish

<sup>2</sup>LabVIEW ist eingetragenes Warenzeichen der National Instruments Corporation.

---

und schreibt Probenwiderstand und Temperatur der Probe in eine Datei. Zusätzlich wird eine Log-Datei mit allen gemessenen Temperaturen am Kryostat erstellt. Die Temperatur wurde manuell durch Starten der  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ -Zirkulation variiert. Das Programm zur Messung der Magnetfeldabhängigkeit des Widerstandes hält mit Hilfe des TS-530 A Temperaturcontrollers die Temperatur auf einem konstanten Sollwert und fährt automatisch die zu messenden Magnetfeldstärken an. Erfüllt die gemessene Temperatur ein vorgegebenes Stabilitätskriterium – beispielsweise  $T = 60 \text{ mK} \pm 0.5 \text{ mK}$  für 30 s – wird der Widerstand der Probe ausgelesen. Dabei wird der Widerstand mehrmals für jede vorgegebene Feldstärke ausgelesen, um bei der Auswertung einen Mittelwert bilden zu können. Ist während einer dieser Widerstandsmessungen das Stabilitätskriterium verletzt, erfolgt ein Abbruch, und die Widerstandsmessung bei dieser Feldstärke wird erneut gestartet.

Die Messungen wurden an Einkristallen durchgeführt, die von Dr. V. Fritsch nach der Czochralski-Methode gezüchtet worden waren. Die genaue Zusammensetzung wurde von Dr. P. Adelman mit Röntgendiffraktometrie ermittelt. Die Kristalle der reinen Probe und die  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$ -Kristalle hatten ungefähre Abmessungen von  $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ , die Kristalle der 14%-Probe hatten ebenfalls einen Querschnitt von  $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ , waren aber nur 2 mm lang. Letztere stammten aus dem Halsstück der Czochralskizüchtung. Die Kristallstücke wurden aus dem gesamten Kristall ausgesägt, orientierte Flächen wurden zusätzlich poliert. Die Orientierung der Kristalle wurde von S. Woitschach, Dr. Z. Hüsge und S. Lucas in Dresden mit dem Laue-Verfahren bestätigt.

## Fehlerbetrachtung

Die Hauptursache für Ungenauigkeiten bei den in dieser Arbeit präsentierten Widerstandsmessungen lag in der Bestimmung der Probengeometrie. Dabei kommt die größte Messungenauigkeit durch die Breite der Leitsilbertropfen, mit denen der Golddraht auf der Probe aufgeklebt wird, zustande. Diese liegt bei etwa 0.5 mm. Mit einer Probenlänge von 10 mm ergibt sich eine Bedeckung der Probenoberfläche von 10% durch die beiden Spannungskontakte und damit eine Genauigkeit der Absolutwerte des spezifischen Widerstandes für  $\text{CePdAl}$  und  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  von etwa  $\pm 10\%$ . Wegen der deutlich kleineren Kristalle liegt die Ungenauigkeit des Absolutwertes bei  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  entsprechend bei rund  $\pm 50\%$ .

In den Abbildungen 5.1 und 5.19 werden Messungen aus verschiedenen Kryostaten verwendet, um kontinuierliche Kurven von tiefsten Temperaturen bis 300 K zu erhalten. Da die Proben hierfür neu kontaktiert wurden, wurden bei diesen Abbildungen jeweils die Hochtemperaturdaten um einen für den

jeweiligen Graphen konstanten Faktor multipliziert. Diese Faktoren sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Abbildung	Temperaturbereich der angepassten Daten	Faktor
5.1 $I \parallel c$	500 mK-300 K	1.59
5.1 $I \perp c$	500 mK-300 K	0.83
5.19 $I \parallel c$	1.8 K-300 K	1.14
5.19 $I \perp c$	1.8 K-300 K	0.81

Tabelle 4.1: Faktoren, mit denen die Hochtemperaturdaten multipliziert wurden, um kontinuierliche Widerstandsverläufe zu erhalten.

# Kapitel 5

## Ergebnisse

Im Folgenden werden Messungen des spezifischen Widerstandes der Substitutionsreihe  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  gezeigt und diskutiert. Der Schwerpunkt liegt dabei auf reinem  $\text{CePdAl}$ , um mehr Informationen über das vielfältige  $(B,T)$ -Phasendiagramm von  $\text{CePdAl}$  zu erhalten.

### 5.1 $\text{CePdAl}$

#### 5.1.1 Spezifischer Widerstand

In Abbildung 5.1 ist der spezifische Widerstand  $\rho(T)$  von  $\text{CePdAl}$  bei verschiedenen Magnetfeldern  $B$  über einen Temperaturbereich von  $50 \text{ mK} \leq T \leq 300 \text{ K}$  gezeigt.<sup>1</sup> Das Magnetfeld wurde bei diesen Messungen ebenso wie bei allen im Folgenden gezeigten Messungen an  $\text{CePdAl}$  in Richtung der magnetisch leichten  $c$ -Achse angelegt, da in früheren Messungen, bei denen das Magnetfeld senkrecht zur  $c$ -Achse angelegt wurde, nur sehr geringe Feldabhängigkeit der Néel-Temperatur  $T_N$  beobachtet wurde, was zu einer Abschätzung des kritischen Feldes von etwa 21 T für  $B \perp c$  führte [42]. Im linken Teilbild verlief der Strom parallel, im rechten senkrecht<sup>2</sup> zur magnetisch leichten  $c$ -Achse des Kristalls. Vergleicht man die beiden Graphen, so erkennt man die Anisotropie im spezifischen Widerstand von  $\text{CePdAl}$ : Der Widerstand nimmt in senkrechter Orientierung ( $I \perp c$ ) im gesamten Temperaturbereich höhere Werte an als in paralleler Orientierung ( $I \parallel c$ ).

---

<sup>1</sup>Die Hochtemperaturmessungen ( $1 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ ) wurden am Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden in einem „Physical Property Measurement System“ (PPMS) der Firma Quantum Design, das über die  $^3\text{He}$ -Option verfügt, von S. Woitschach und S. Lucas durchgeführt.

<sup>2</sup>Bei allen in dieser Arbeit präsentierten Messungen mit  $I \perp c$  verlief der Strom in der kristallographischen  $[1\bar{1}0]$ -Richtung

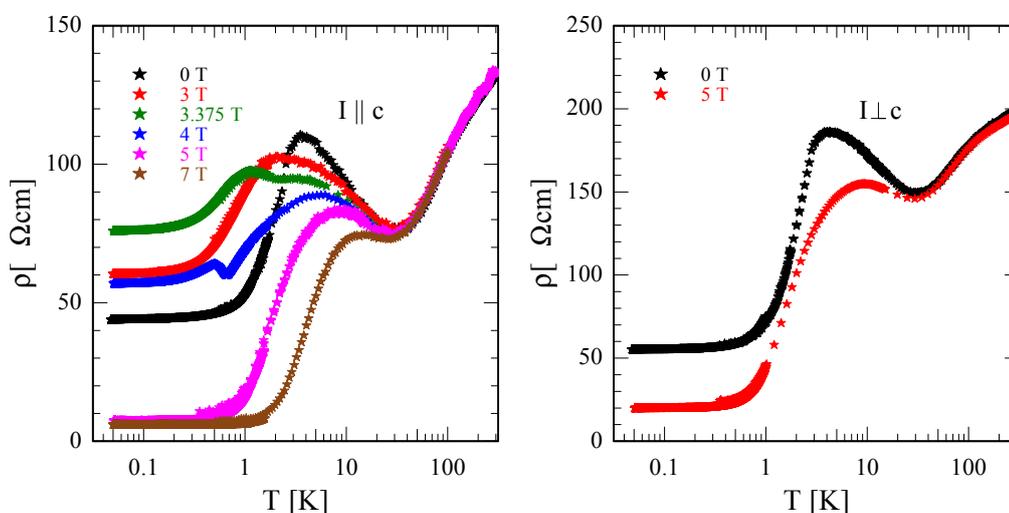


Abbildung 5.1: Spezifischer Widerstand  $\rho(T)$  von CePdAl bei verschiedenen Magnetfeldern  $B \parallel c$  über einen Temperaturbereich von  $T = 300$  K bis zu tiefen Temperaturen ( $T \approx 50$  mK). Die Daten für  $T \geq 1$  K (s. Haupttext) stammen aus [48].

Das linke Teilbild aus Abbildung 5.1 zeigt, dass der Bereich, in dem sich der Kondo-Effekt auf den Widerstand auswirkt, mit steigendem Magnetfeld kleiner wird: Die Position des Kondo-Minimums liegt in guter Näherung konstant bei  $T = 30$  K. Jedoch setzt mit steigendem Feld bei immer höheren Temperaturen kohärente Streuung ein, so dass das dadurch entstehende Maximum zu höheren Temperaturen wandert und mit steigendem Magnetfeld flacher wird. Die Néel-Temperatur von CePdAl sinkt mit steigendem Magnetfeld (s. Abb. 3.6), wodurch das Kondo-Maximum und das Maximum des antiferromagnetischen Übergangs mit steigendem Magnetfeld separiert werden. Anhand dieser Messdaten lässt sich auch das Restwiderstandsverhältnis

$$RRR = \rho(300 \text{ K})/\rho(50 \text{ mK}) \quad (5.1)$$

der Kristalle berechnen. Der recht kleine Wert von  $RRR = 3$  im Nullfeld legt zunächst einmal die Vermutung nahe, dass die gemessenen Kristalle von schlechter Qualität sind. Jedoch weist die Tatsache, dass der Restwiderstand bei  $B = 3$  T höher ist als im Nullfeld, auf eine intrinsische Ursache hierfür hin. Es ist daher anzunehmen, dass die auch bei tiefen Temperaturen nicht geordneten magnetischen Momente den Widerstand signifikant erhöhen. Dies wurde auch schon in früheren Untersuchungen des spezifischen Widerstandes von CePdAl beobachtet [49]. Werden durch ein äußeres Magnetfeld die magnetischen Momente ausgerichtet und/oder wird die Frustration geschwächt oder aufgehoben, wie es bei den Messungen bei  $B = 5$  T und  $B = 7$  T der Fall

ist, ergibt sich ein deutlich höheres Restwiderstandsverhältnis von  $RRR = 18$  ( $B = 5$  T), beziehungsweise  $RRR = 23$  ( $B = 7$  T). Es ist also von einer guten Qualität des Kristallstücks auszugehen.

In senkrechter Orientierung beträgt das Restwiderstandsverhältnis 10 für  $B = 5$  T. Da jedoch hier der Strom senkrecht zum angelegten Magnetfeld verlief, werden die Ladungsträger hier im Feld zusätzlich durch Lorentzkräfte abgelenkt, was einen höheren Restwiderstand bewirkt. Dass beide Kristallstücke im Nullfeld das gleiche Restwiderstandsverhältnis zeigen, ist ein weiteres Indiz dafür, dass Lorentzkräfte in senkrechter Orientierung ein geringeres Restwiderstandsverhältnis bewirken.

### Spezifischer Widerstand bei tiefen Temperaturen

In Abbildung 5.2 ist der spezifische elektrische Widerstand  $\rho(T)$  bei tiefen Temperaturen  $50 \text{ mK} \lesssim T \lesssim 1.5 \text{ K}$  von reinem CePdAl in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  bei unterschiedlichen angelegten Magnetfeldern  $B$  dargestellt. Der Strom war hier parallel zur magnetisch leichten  $c$ -Achse angelegt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurden die Daten für benachbarte Felder um jeweils  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Darüber hinaus wurden die Daten ausgedünnt, indem über ein Temperaturfenster von jeweils  $10 \text{ mK}$  ein Mittelwert gebildet wurde. Änderungen im Verlauf der Kurven, die hierdurch entstehen, sind nicht signifikant.

Der elektrische Widerstand steigt zunächst mit steigender Temperatur an. Bei magnetischen Feldern zwischen  $B = 2.0$  T und  $B = 5.0$  T flacht im dargestellten Temperaturbereich der Verlauf des elektrischen Widerstandes zu höheren Temperaturen hin ab. Im Bereich der Phasenübergänge zwischen  $3$  T und  $4$  T (s. hierzu Abb. 3.6) weist der Verlauf des elektrischen Widerstands von CePdAl ein Maximum auf, dessen Breite variiert. Eine mögliche Ursache für die unterschiedlichen Formen der Maxima in der Nähe der Phasenübergänge ist der Winkel zwischen Phasengrenze und dem Pfad im  $(B, T)$ -Phasendiagramm, auf dem die Phasengrenze durchlaufen wird.

In Abschnitt 2.3.1 wird beschrieben, wie durch den antiferromagnetischen Übergang ein Maximum im spezifischen Widerstand etwas unterhalb  $T_N$  auftritt. In CePdAl wird dieses Maximum bei kleinen Magnetfeldern jedoch vom Kondo-Maximum überlagert. Wie oben gezeigt (Abbildung 5.1), trennen sich die beiden Maxima etwa ab  $B \approx 3.375$  T.

Besonders auffällig sind die Kurven bei  $B = 3.375$  T,  $B = 3.4$  T und  $B = 3.5$  T. Hier liegen zwischen  $T = 0$  und  $T \approx 300 \text{ mK}$  die  $3.4$  T-Kurve und die  $3.5$  T-Kurve in etwa aufeinander. Die  $3.375$  T-Kurve verläuft in diesem Bereich oberhalb der beiden anderen Kurven. Bei  $T = 300 \text{ mK}$  verlässt die  $3.4$  T-Kurve die  $3.5$  T-Kurve und läuft mit der  $3.375$  T-Kurve zusammen, auf

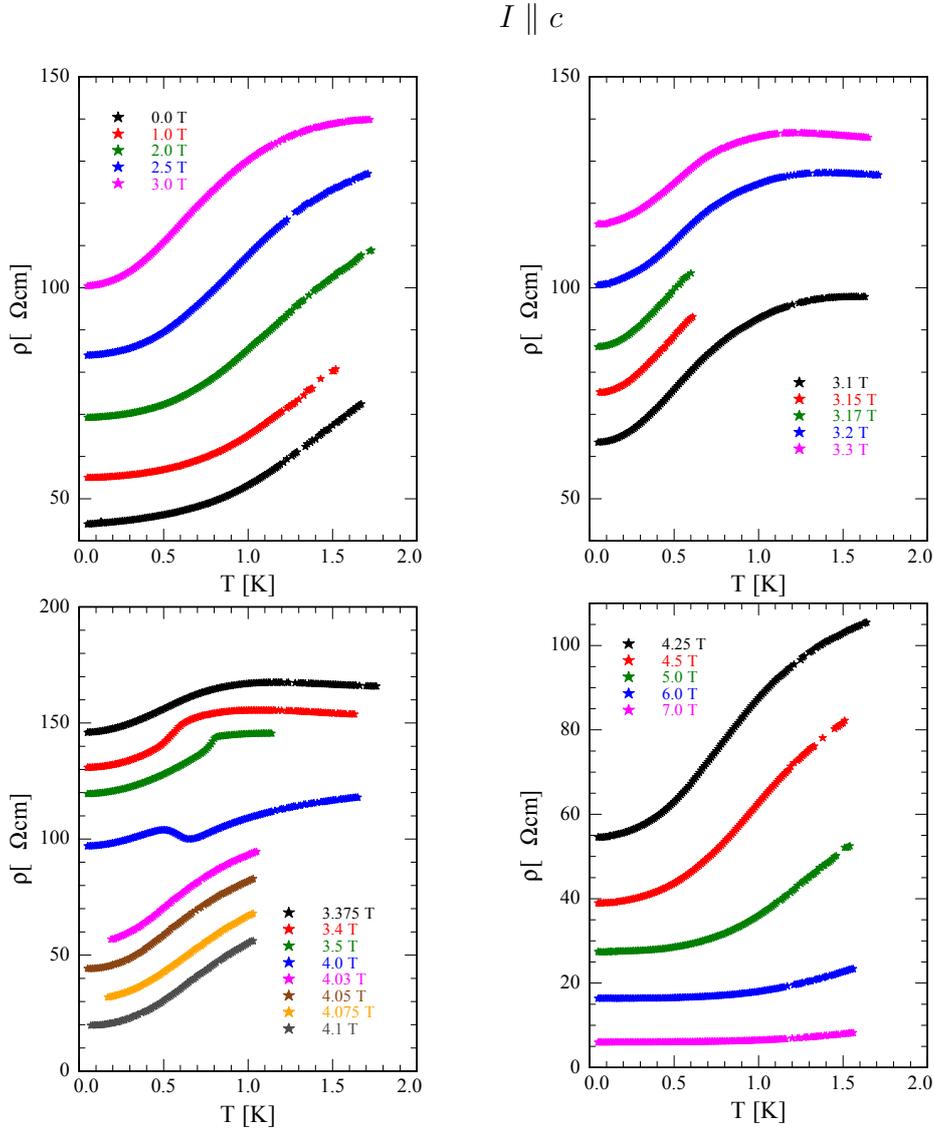


Abbildung 5.2: Tieftemperaturwiderstand von reinem CePdAl bei unterschiedlichen Magnetfeldern  $B$  in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$ . Der elektrische Strom war hier parallel zur magnetisch leichten  $c$ -Achse angelegt. Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Aus Darstellungsgründen ist der Bereich der y-Achse im linken unteren Teilbild größer als in den übrigen Teilbildern. In einem Bild ohne Verschiebungen verlaufen für  $0 < T < 300 \text{ mK}$  die  $B = 3.4 \text{ T}$ - und die  $B = 3.5 \text{ T}$ -Kurve und für  $T > 600 \text{ mK}$  die  $B = 3.375 \text{ T}$ - und die  $B = 3.4 \text{ T}$ -Kurve deckungsgleich (vgl. Haupttext).

welche sie bei etwa 600 mK trifft. Bei  $T = 800 \text{ mK}$  hat die 3.5 T-Kurve einen scharfen Knick und verläuft wieder deckungsgleich mit der 3.4 T-Kurve in

etwa zusammen mit der 3.375 T-Kurve. Interpretiert man dies so, dass sich unterhalb von  $T = 800$  mK CePdAl bei  $B = 3.375$  T durchweg in der AF-II-Phase und bei  $B = 3.5$  T in der AF-III-Phase befindet (vgl. 3.6), scheint der Phasenübergang von der AF-III-Phase in die AF-II-Phase den Widerstand von CePdAl bei  $B = 3.4$  T im Bereich 300 mK-600 mK zu beeinflussen.

Die 3.5 T-Kurve hat einen Knick bei  $T = 800$  mK. Dieser kommt dadurch zustande, dass die aufeinander treffenden Phasengrenzen zwischen der AF-II-Phase und der AF-III-Phase, der AF-II-Phase zum paramagnetischen Bereich sowie zwischen der AF-II-Phase und dem paramagnetischen Bereich das Verhalten des elektrischen Widerstandes bei  $B = 3.5$  T in diesem Temperaturbereich beeinflussen.

In der 4 T-Kurve ist der Rest des Kondo-Maximums bei hohen Temperaturen zu sehen. Der Widerstand fällt zu tieferen Temperaturen zunächst ab durch Einsetzen kohärenter Streuung. Bei  $T = 650$  mK beginnt der Widerstand aufgrund des antiferromagnetischen Übergangs wieder zu steigen, bis er bei  $T = 450$  mK ein Maximum erreicht und weiter abfällt.

Verglichen mit dem spezifischen Widerstand aus Abbildung 5.2 ist in senkrechter Orientierung ( $I \perp c$ , Abbildung 5.3) der Absolutwert des spezifischen Widerstandes höher (vgl. Abb. 5.1). Qualitativ kann man wieder einen Anstieg zu höheren Temperaturen erkennen. Bei Magnetfeldern zwischen  $B = 2$  T und  $B = 5$  T flacht zudem der spezifische Widerstand mit steigender Temperatur ab. Im Verlauf des Widerstandes sind ebenfalls Unterschiede zur parallelen Orientierung vorhanden. In der 4 T-Kurve beginnt der Anstieg von  $\rho$  mit fallender Temperatur bereits bei etwa 850 mK. Das Maximum wird bei 750 mK erreicht. Da die Phasengrenze bei Feldern um 4 T sehr steil verläuft (s. Abb. 3.6), bewirken kleinste Veränderungen des magnetischen Feldes schon merkliche Änderungen der Übergangstemperatur. Die wahrscheinlichste Ursache für die Verschiebungen ist in diesem Fall eine leichte Fehlorientierung des Kristallstücks, an dem die Messung aus Abbildung 5.3 vorgenommen wurde. Dies ist auch in den Messungen bei  $B = 4.03$  T und  $B = 4.05$  T zu sehen. Während in paralleler Orientierung hier gar kein Phasenübergang mehr zu beobachten ist, sind hier Phasenübergänge bei 650 mK und 600 mK erkennbar. Ein weiterer Unterschied der Kurven bei 4 T bis 4.05 T ist, dass hier das Maximum des antiferromagnetischen Übergangs weniger stark ausgeprägt ist als bei der 4 T-Kurve für  $I \parallel c$ . Eine mögliche Erklärung hierfür ist, dass die Grenzen der magnetischen Brillouinzone in  $[1\bar{1}0]$ -Richtung näher an der ursprünglichen Brillouinzone liegen als dies für die  $[001]$ -Richtung der Fall ist. Dadurch würde die Fermifläche weniger stark verformt, und es würde sich eine kleinere Energielücke öffnen, was in einem geringeren Anstieg des spezifischen Widerstandes unterhalb der Néel-Temperatur resultieren würde.

$I \perp c$

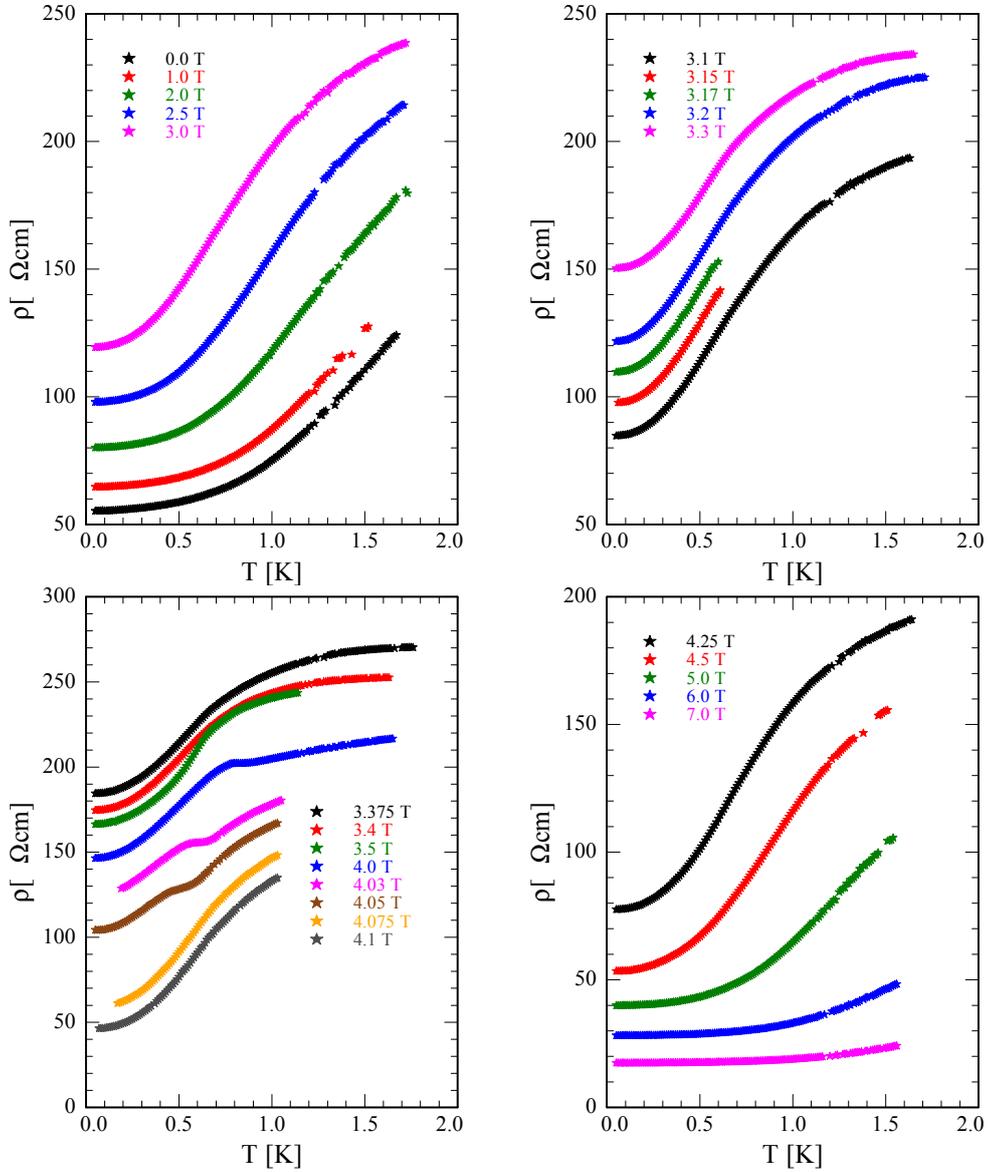


Abbildung 5.3: Spezifischer elektrischer Widerstand  $\rho$  von reinem CePdAl bei unterschiedlichen Magnetfeldern  $B$  in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$ . Der elektrische Strom war hier senkrecht zur magnetisch leichten  $c$ -Achse angelegt. Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Aus Darstellungsgründen ist der Bereich der y-Achse im linken unteren Teilbild größer als in den übrigen Teilbildern.

### Quadratisches Verhalten bei tiefen Temperaturen

Abbildung 5.4 zeigt die Tieftemperaturdaten aus Abbildung 5.2 über die quadrierte Temperatur  $T^2$  aufgetragen. An den Tieftemperaturteil des über  $T^2$  aufgetragenen Widerstand wurden Geraden angepasst, deren Steigung den Koeffizienten  $A$  des quadratischen Widerstandsterms von  $\rho$  und der  $y$ -Achsenabschnitt den Restwiderstand  $\rho_0$  liefern.

Die Temperatur  $T_0$ , bei der der spezifische Widerstand vom quadratischen Verhalten abweicht, hängt schwach vom magnetischen Feld ab und liegt zwischen etwa 400 mK und 800 mK. Liegt  $T_0$  in der Nähe der Néeltemperatur, so verläuft der elektrische Widerstand oberhalb dieser Temperatur unterhalb des quadratischen Fits, da hier der Phasenübergang den elektrischen Widerstand dominiert. Liegt die Néeltemperatur von CePdAl deutlich oberhalb  $T_0$ , so weicht der Widerstand zunächst nach oben vom quadratischen Fit ab, da hier der Kondo-Effekt für das Widerstandsverhalten maßgeblich ist.

In Abbildung 5.5 ist der elektrische Widerstand senkrecht zu  $c$  über  $T^2$  aufgetragen. Nicht nur der Absolutwert des Widerstandes ist in dieser Orientierung höher, sondern auch der Koeffizient  $A$ , wie man an den größeren Steigungen in Abbildung 5.5 gegenüber denen in Abbildung 5.4 erkennen kann. Dies bedeutet, dass die Elektron-Elektron-Streuung senkrecht zu  $c$  gegenüber der in  $c$ -Richtung erhöht ist.

### Feldabhängigkeit des Widerstandes von CePdAl

Der magnetfeldabhängige spezifische Widerstand von CePdAl bei  $T = 60$  mK ist in Abbildung 5.6 gezeigt. Im Bereich kleinerer Felder ( $B \leq 2$  T) lässt sich an den Magnetowiderstand die Funktion  $\rho(B) = \rho(0)(1 + a \cdot B^2)$  anpassen. Der Fitparameter  $a$  ist mit  $0.1 \text{ T}^{-2}$  für  $I \parallel c$  und  $0.09 \text{ T}^{-2}$  für  $I \perp c$  in beiden Richtungen etwa gleich, stimmt jedoch nicht mit dem Vorfaktor aus [24] überein. Dies spricht dafür, dass der Mechanismus, der den Magnetowiderstand in CePdAl bestimmt, komplexer ist als der in [24] beschriebene, der nur auf Antiferromagnetismus beruht.

Die beiden metamagnetischen Übergänge schlagen sich in einem stärkeren Anstieg bis zum kritischen Feld  $B_{c1} = 3.23$  T und einem sprunghaften Abfall bei  $B_{c2} = 3.42$  T im elektrischen Widerstand nieder. Am Übergang zur paramagnetischen Phase bei  $B_{c3} = 4.05$  T erfolgt ebenfalls ein steiler Abfall im elektrischen Widerstand. Für  $I \perp c$  verschieben sich die Felder leicht nach oben. Die kritischen Felder für  $I \parallel c$  stimmen exakt mit den aus Daten der thermischen Ausdehnung und Magnetostriktion bestimmten [41] überein, was die Vermutung stützt, dass die Probe, an der  $I \perp c$  gemessen wurde, eine leichte Verkipfung in ihrer Orientierung zum Magnetfeld hat.

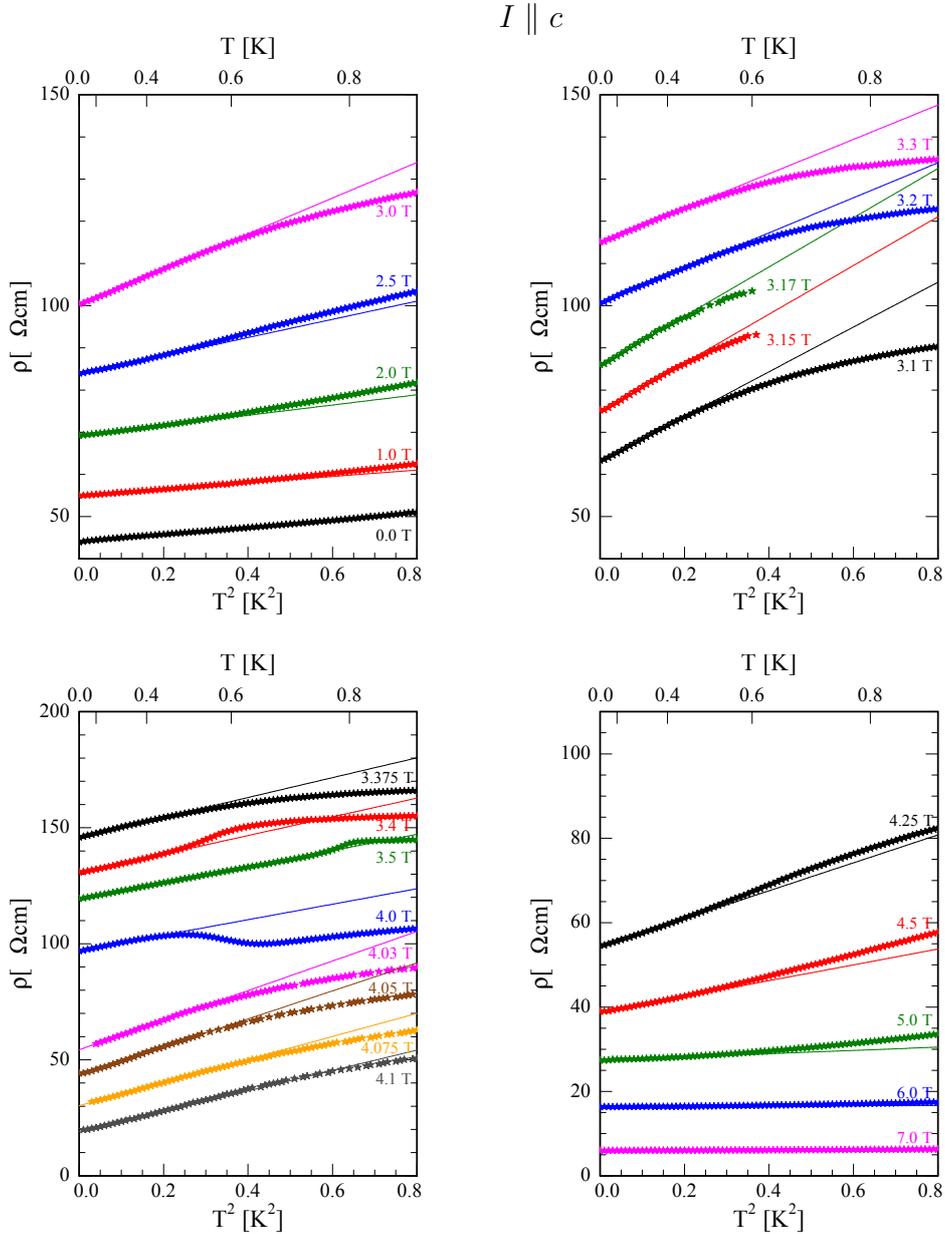


Abbildung 5.4: Daten aus Abbildung 5.2 über  $T^2$  aufgetragen. Linien zeigen Fits an den quadratisch verlaufenden Tieftemperaturteil der Daten. Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Aus Darstellungsgründen ist der Bereich der y-Achse im linken unteren Teilbild größer als in den übrigen Teilbildern.

In der AF-II-Phase steigt  $\rho$  mit steigendem Feld ebenfalls an. In der AF-III-Phase schließlich, fällt der Widerstand monoton in paralleler Orientie-

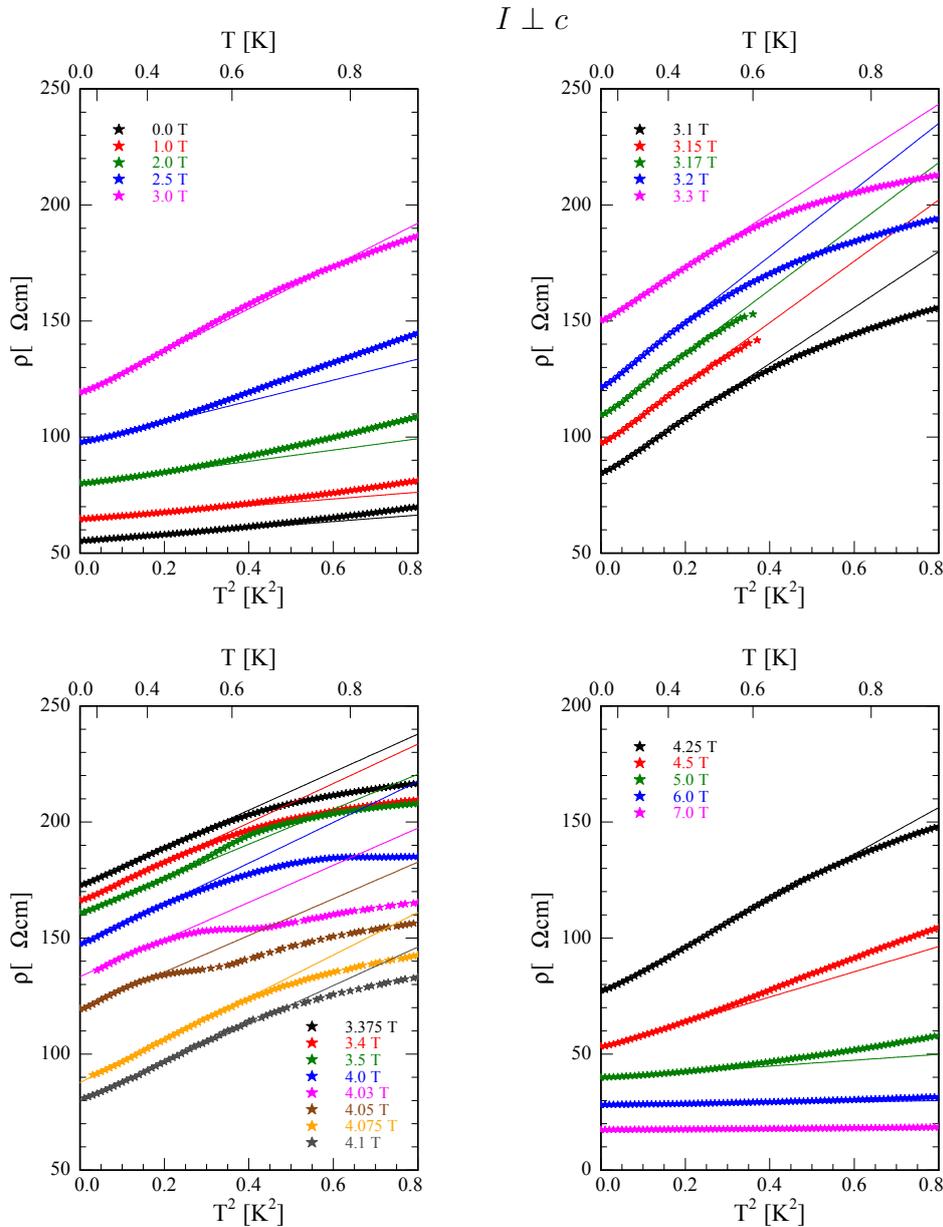


Abbildung 5.5: Daten aus Abbildung 5.3 über  $T^2$  aufgetragen. Linien zeigen Fits an den quadratisch verlaufenden Tieftemperaturteil der Daten. Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Aus Darstellungsgründen ist der Bereich der y-Achse im linken unteren Teilbild größer als in den übrigen Teilbildern.

zung, in senkrechter Orientierung steigt er zunächst weiter an, erreicht bei  $B = 3.87 \text{ T}$  ein Maximum und fällt dann wieder ab. Auf den Phasenübergang

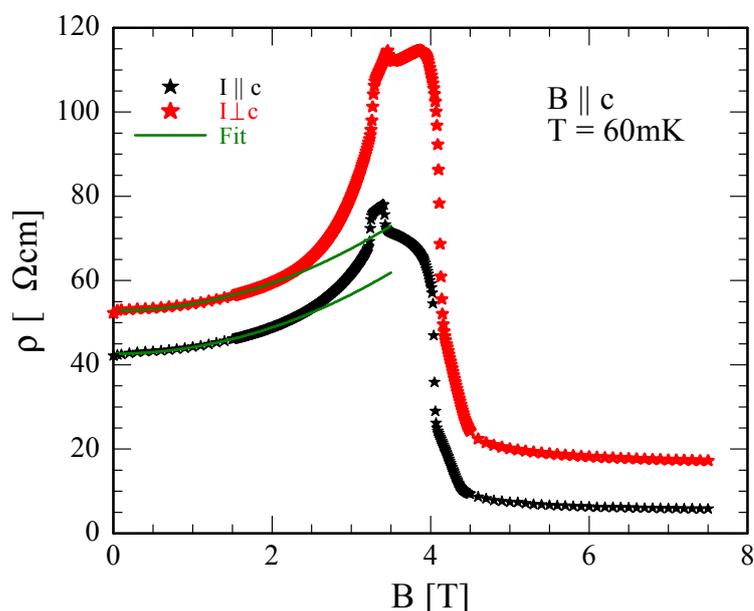


Abbildung 5.6: Spezifischer elektrischer Widerstand in Abhängigkeit vom Magnetfeld  $\rho(B)$  von reinem CePdAl bei einer Temperatur von  $T = 60$  mK. Schwarze Symbole zeigen die Messung mit  $I \parallel c$ , rote Symbole die Messung mit  $I \perp c$ . Die grünen Linien stellen  $B^2$ -Fits dar.

in die paramagnetische Phase folgt ein schulterförmiger Abfall, der in paralleler Orientierung zwischen  $B = 4.09$  T und  $B = 4.38$  T und in senkrechter Orientierung zwischen  $B = 4.16$  T und  $B = 4.48$  T verläuft. Der starke negative Magnetowiderstand entsteht hier vermutlich durch Ausrichtung der in kleineren Feldern ungeordneten frustrierten magnetischen Momente im Magnetfeld.

### Einordnung ins Phasendiagramm

Abbildung 5.7 zeigt das Phasendiagramm von CePdAl (vgl. Abb. 3.6). Hier sind farbig die Phasenübergänge, die aus den Temperatur- und Feldverläufen des spezifischen Widerstandes zu entnehmen sind, eingetragen. Die dem Verlauf des elektrischen Widerstandes entnommenen Phasenübergänge fügen sich sehr gut ins Bild des vorhandenen Phasendiagramms ein. Insbesondere bestätigen die Feldsweeps für  $I \parallel c$  bei konstanter Temperatur die metamagnetischen Übergänge bei Temperaturen unterhalb von 500 mK. Für  $I \perp c$  sind die Phasenübergänge wie oben beschrieben zu leicht höheren Feldern verschoben und daher nicht eingezeichnet.

Physikalisch lassen sich die drei antiferromagnetischen Phasen so interpretie-

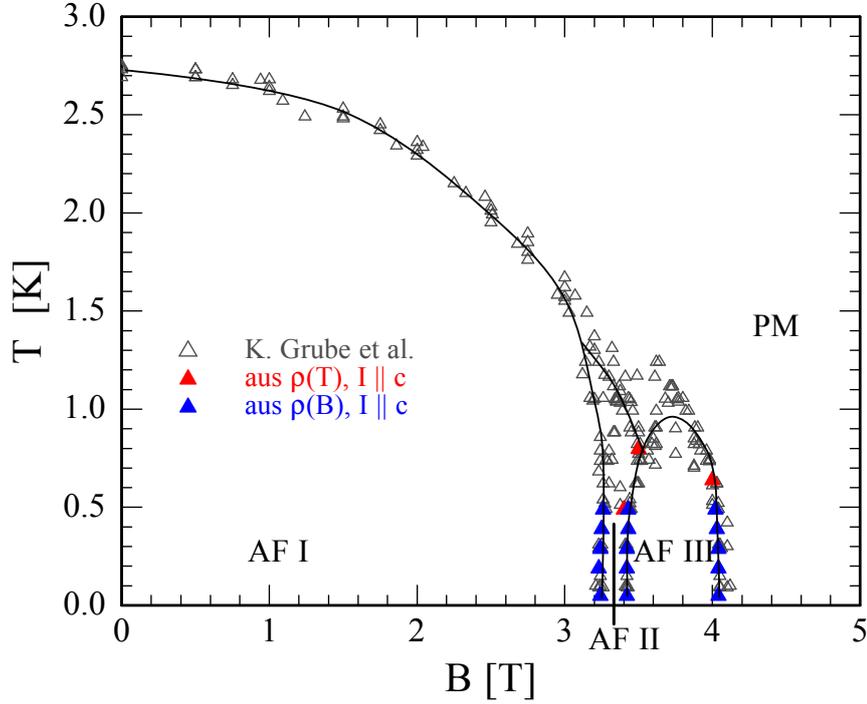


Abbildung 5.7:  $(B - T)$ Phasendiagramm von CePdAl nach [41] (graue Symbole). Die farbigen Symbole zeigen die mithilfe des spezifischen Widerstandes bestimmten Phasenübergänge.

ren, dass in der AF-I-Phase die bei  $B = 0$  frustrierten Cer-Momente weiterhin nicht an der langreichweitigen antiferromagnetischen Ordnung teilnehmen, was auch durch Neutronenstreuung bestätigt wird, und sich in den AF-II- und AF-III-Phasen unterschiedlich an der magnetischen Ordnung beteiligen.

### Koeffizient $A$ des quadratischen Widerstands

In [26] wird für den Koeffizienten des quadratischen Widerstandsterms der Ausdruck

$$A = \frac{16nk_B^2}{\pi\hbar e^2 \langle v_{0x}^2 \rangle N(E_F)^2 \omega^{*2}} \quad (5.2)$$

gefunden. Dabei bezeichnet  $n$  die Ladungsträgerdichte,  $k_B$  die Boltzmannkonstante,  $\hbar$  das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum,  $e$  die Elementarladung,  $\langle v_{0x}^2 \rangle$  den Mittelwert der Geschwindigkeit der Elektronen über die Fermifläche in Stromrichtung  $x$  und  $N(E_F)$  die Zustandsdichte an der Fermikante. Der Index 0 bei der Geschwindigkeit und der Zustandsdichte zeigt an, dass Wechselwirkungen in diesen Größen nicht berücksichtigt wurden.  $\omega^*$  ist eine Energieskala, die die Vielteilchenkorrelationen charakterisiert und in

die effektive Masse einget (vgl. [50]).

Mithilfe der linearen Fits aus Abbildung 5.4 wurde der Koeffizient des quadratischen Widerstandsterms von reinem CePdAl in Abhängigkeit vom magnetischen Feld  $B$  ermittelt. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.8 dargestellt (rote Symbole).

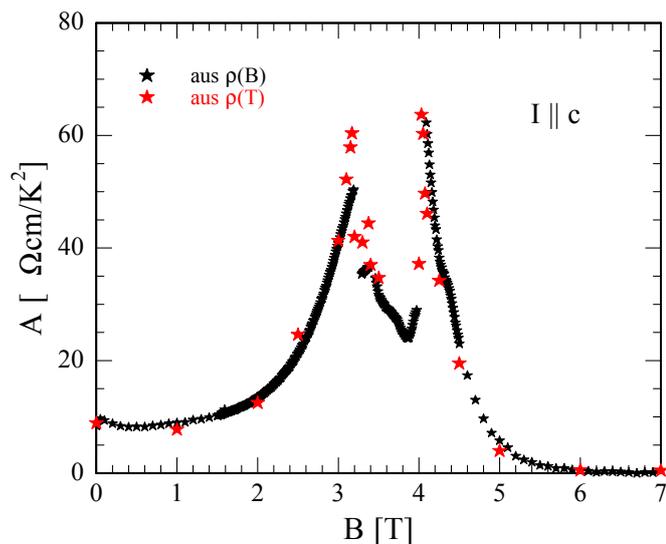


Abbildung 5.8: Quadratischer Koeffizient  $A$  des elektrischen Widerstandes von reinem CePdAl in Abhängigkeit vom Magnetfeld. Die Koeffizienten sind Ergebnis der linearen Fits aus Abbildung 5.4 (rote Symbole) und einer Analyse von mehreren Widerstandskurven bei konstanter Temperatur (schwarze Symbole). Der Strom verlief hier parallel zur  $c$ -Richtung.

Um den Verlauf des Koeffizienten  $A$  in Abhängigkeit vom magnetischen Feld  $B$  mit höherer Feldauflösung abschätzen zu können, wurde der spezifische elektrische Widerstand  $\rho$  bei konstanten Temperaturen von  $T = 60$  mK, 200 mK, 300 mK, 400 mK und 500 mK in Abhängigkeit von  $B$  gemessen. Für jedes Feld, bei dem gemessen wurde, wurden die Datenpunkte aus allen gemessenen Kurven  $\rho_T(B)$  mit einer Funktion  $\rho_T(B) = \rho_0(B) + A(B)T^2$  gefittet. Der so gewonnene Kurvenverlauf ist in Abbildung 5.8 (schwarze Sterne) gezeigt. Im Rahmen der Genauigkeit des jeweiligen Verfahrens stimmen die Werte für die Koeffizienten sehr gut miteinander überein.

$A$  weist um  $B = 3.2$  T und  $B = 4.03$  T zwei ausgeprägte Maxima auf, an denen er etwa den sechsfachen Wert des Koeffizienten im Nullfeld annimmt. Im Bereich zwischen 0 T und 0.5 T fällt  $A$  mit steigendem Magnetfeld leicht ab, oberhalb von 0.5 T steigt  $A$  steil an und erreicht ein Maximum bei 3.2 T. Bei Feldern oberhalb von 4.03 T fällt  $A$  steil ab. Zwischen 4.25 T und 4.35 T ist eine Schulter im Verlauf auszumachen, oberhalb von 4.35 T fällt  $A$  weiter

steil bis auf einen Wert, der nur etwa 1/20 des Wertes im Nullfeld beträgt, ab.

Abbildung 5.9 zeigt den Verlauf von  $A$  in Abhängigkeit vom magnetischen

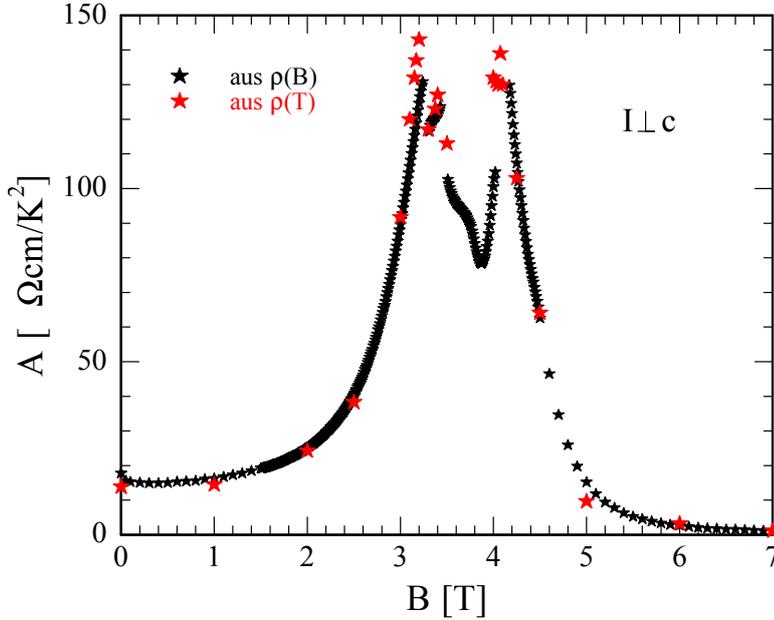


Abbildung 5.9: Quadratischer Koeffizient  $A$  des elektrischen Widerstandes von reinem CePdAl in Abhängigkeit vom Magnetfeld. Die Koeffizienten sind Ergebnis der linearen Fits aus Abbildung 5.5 (rote Symbole) und einer Analyse von mehreren Widerstandskurven bei konstanter Temperatur (schwarze Symbole). Der Strom verlief hier senkrecht zur  $c$ -Richtung.

Feld mit Stromrichtung senkrecht zur  $c$ -Achse. Die Werte wurden analog zu denen aus Abbildung 5.8 ermittelt. Der Absolutwert von  $A$  ist in senkrechter Orientierung höher als in paralleler. Auch hier sind zwei Maxima im Bereich der Felder, bei denen Phasenübergänge stattfinden, zu beobachten. Der Koeffizient nimmt hier wieder einen stark erhöhten Wert mit  $A(B_{c1,3})/A(0) \approx 10$  an. Für Felder oberhalb  $B_{c3}$  fällt der  $A$ -Koeffizient auch hier stark ab, verläuft schulterförmig zwischen  $4.4\text{ T}$  und  $4.45\text{ T}$  und fällt dann wieder stark ab. Die Schulter ist hier weniger deutlich erkennbar als in paralleler Orientierung. Für beide Orientierungen ließ sich im paramagnetischen Bereich oberhalb von  $B_{c3} = 4.03\text{ T}$  keine einfache funktionelle Beschreibung finden, da bei  $4.25\text{ T}$  beziehungsweise  $4.4\text{ T}$  eine leichte Schulter auftritt. Ein  $(B - B_c)^{-1}$ -Verhalten, wie es in [51] für  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  gefunden wurde, konnte nicht beobachtet werden. Jedoch ist bemerkenswert, dass der Koeffizient  $A$ , der sich im Absolutwert für die beiden untersuchten Orientierungen um einen Faktor 2 unterscheidet, für beide Orientierungen den gleichen funktionellen Verlauf zeigt. Die Felder,

bei denen in  $A$  Sprünge auftreten, sind identisch mit den in  $\rho(B)$  gefundenen kritischen Feldern.

### 5.1.2 Kadowaki-Woods-Verhältnis von CePdAl

In Abbildung 5.10 ist der Sommerfeldkoeffizient  $\gamma$  von CePdAl in Abhängigkeit vom Magnetfeld gezeigt (nach [52]).  $\gamma T$  ist der Beitrag der Elektronen

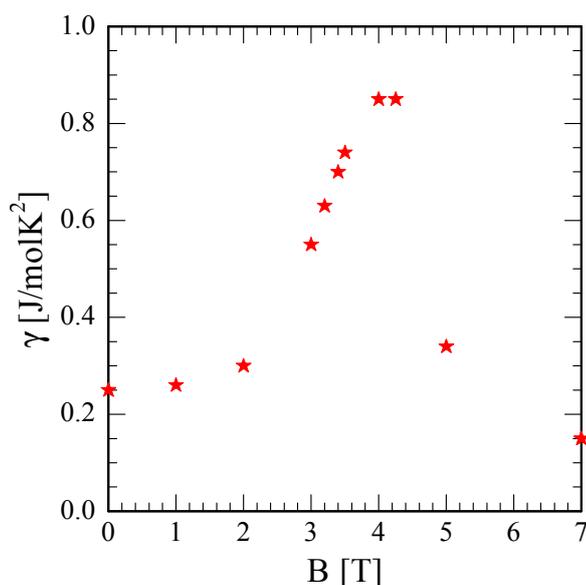


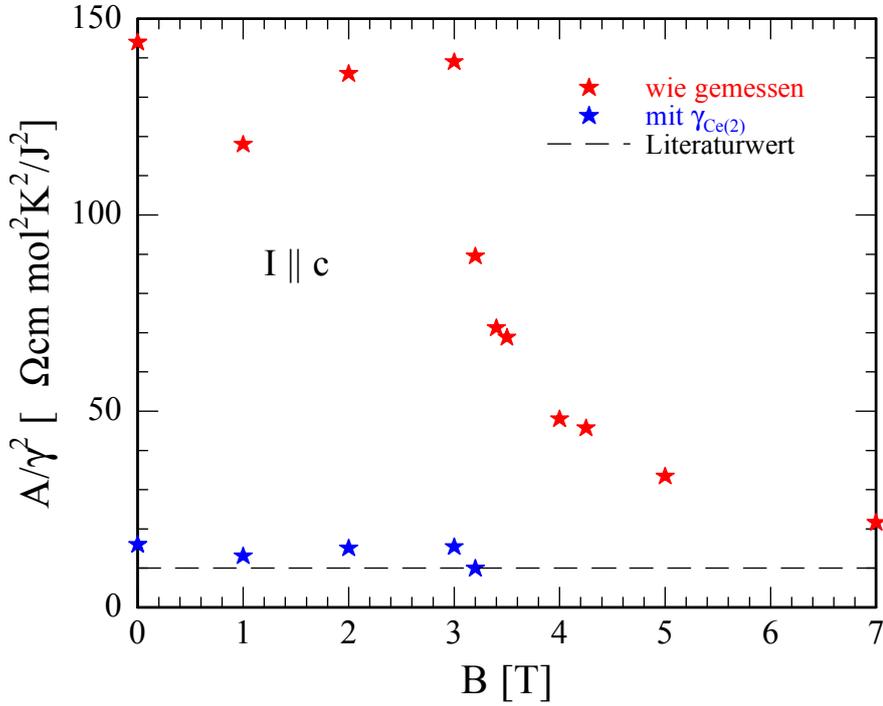
Abbildung 5.10: Sommerfeldkoeffizient  $\gamma$  der spezifischen Wärme von CePdAl.  $\gamma$  wurde anhand der Daten aus [52] ermittelt.

zur spezifischen Wärme. Mit  $\gamma \approx 0.25 \text{ J/molK}^2$  im Nullfeld liegt CePdAl im unteren Bereich der Schwerfermionsysteme (vgl. Abb. 2.4). Im Magnetfeld steigt  $\gamma$  mit steigender Feldstärke zunächst an, wird bei etwa 4 T maximal und fällt dann rapide ab.

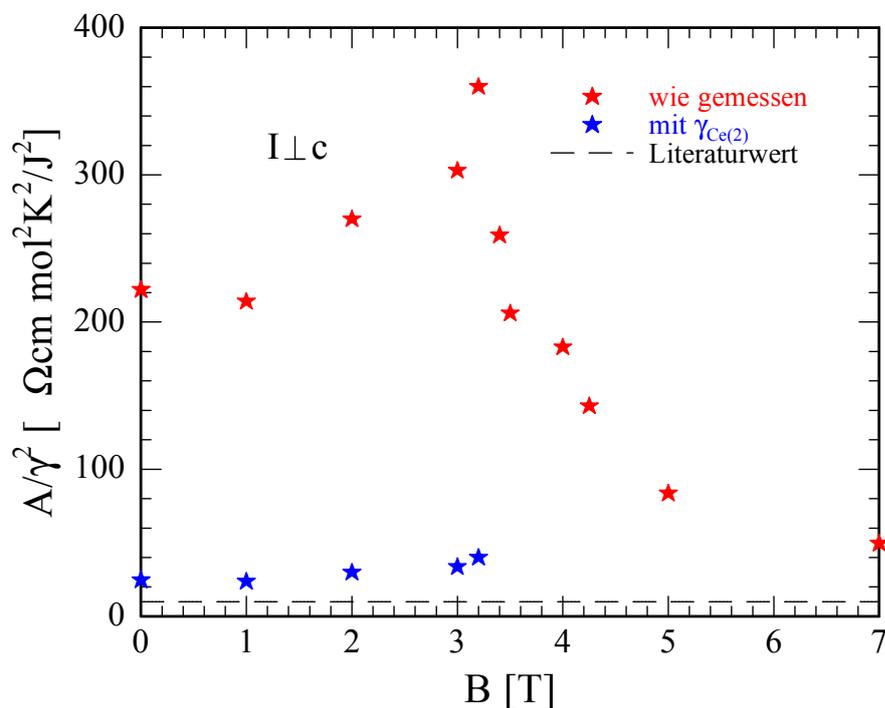
In Abbildung 5.11 ist das Kadowaki-Woods-Verhältnis von CePdAl über das Magnetfeld  $B$  aufgetragen. Der Strom war hier parallel zur  $c$ -Richtung angelegt. Der für Schwerfermionsysteme typische Wert [25] von

$$\frac{A}{\gamma^2} \approx 10 \mu\Omega\text{cm mol}^2\text{K}^2/\text{J}^2 \quad (5.3)$$

ist als gestrichelte Linie markiert. Das Kadowaki-Woods-Verhältnis hat bei kleineren Feldern ( $B \leq 3 \text{ T}$ ) einen etwa 10-15-fach erhöhten, im Rahmen der Messstreuung nahezu konstanten Wert und fällt oberhalb von 3 T ab, bis es bei  $B = 7 \text{ T}$  etwa den üblichen Wert erreicht. Dies lässt sich physikalisch so erklären, dass bei 7 T sich das System im paramagnetischen Zustand einer moderat schweren Fermiflüssigkeit befindet und daher etwa den erwarteten Wert für das Kadowaki-Woods-Verhältnis liefert. Unterhalb von 3 T befindet


 Abbildung 5.11: Kadowaki-Woods-Verhältnis  $A/\gamma^2$  von CePdAl für  $I \parallel c$ .

sich CePdAl bei tiefen Temperaturen in der AF-I-Phase, es sind also  $2/3$  der magnetischen Momente antiferromagnetisch geordnet. Der durch die geordneten Momente hervorgerufene Magnonenbeitrag  $C_m$  zur spezifischen Wärme geht schneller gegen 0 als proportional zu  $T$ , daher verschwindet  $C_m/T$  für  $T \rightarrow 0$ . Ein Drittel der Ce-Momente ist jedoch frustriert und bleibt bis zu tiefen Temperaturen hin ungeordnet [27]. Daher ist anzunehmen, dass nur ein Drittel der Ce-Atome zur spezifischen Wärme für  $T \rightarrow 0$  und damit zu  $\gamma$  im Nenner des Kadowaki-Woods-Verhältnisses beiträgt. Somit hätte CePdAl mit  $\gamma \approx 0.75 \text{ J/mol}_{\text{Ce}(3)}\text{K}^2$  im Nullfeld einen Sommerfeldkoeffizienten, der im mittleren bis oberen Bereich der Schwerfermionsysteme üblichen Werte liegt. Das Kadowaki-Woods-Verhältnis in der partiell geordneten Phase ist in Abb. 5.11 durch blaue Symbole illustriert: Hier nimmt  $A/\gamma^2$  nahezu den aus [25] bekannten Wert für Schwerfermionsysteme an. Dieser Ansatz ist natürlich nur in der AF-I-Phase sinnvoll, da in den in den Phasen bei höheren Magnetfeldern die Ce(2)-Momente auch zur magnetischen Ordnung beitragen. Für  $I \perp c$  ist das Kadowaki-Woods-Verhältnis von CePdAl in Abhängigkeit vom Magnetfeld in Abbildung 5.12 dargestellt. Bedingt durch die höheren  $A$ -Koeffizienten in dieser Orientierung nimmt  $A/\gamma^2$  hier höhere Werte an. Ursache dafür ist nach Gleichung 5.2 die Anisotropie der Fermifläche. Au-


 Abbildung 5.12: Kadowaki-Woods-Verhältnis  $A/\gamma^2$  von CePdAl für  $I \perp c$ .

Berdem unterscheidet sich der Verlauf auch qualitativ von dem in Abbildung 5.11: Das Kadowaki-Woods-Verhältnis steigt hier unterhalb von etwa 3.2 T an, oberhalb dieses Feldes fällt es wie schon für die parallele Orientierung stark ab. Für den anfänglichen Anstieg kommen verschiedene Ursachen in Frage. Nimmt man hier wieder einen durch die partielle Ordnung bedingten dreifachen Wert für  $\gamma$  an, ändert sich das Kadowaki-Woods-Verhältnis wie in der Abbildung durch die blauen Symbole gezeigt. Das Kadowaki-Woods-Verhältnis weicht dann nur noch um einen Faktor von etwa 2-4 vom Literaturwert ab, was nicht ungewöhnlich ist.

## 5.2 $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$

Nickel hat einen kleineren Atomradius als Palladium. Daher kann durch teilweise Substitution von Palladium durch Nickel chemischer Druck auf das CePdAl-Gitter ausgeübt werden. Hierdurch verringern sich die Gitterkonstanten. Folglich wird die Austauschwechselwirkung  $J$  zwischen Leitungselektronen und magnetischen Momenten verstärkt, was im Doniach-Bild dazu führt, dass  $T_N$  sinkt. In  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  wird auf diese Weise die Néel-Temperatur zu  $T_N = 1.8 \text{ K}$  unterdrückt [53, 9].

### 5.2.1 Tieftemperaturwiderstand und Magnetowiderstand

Abbildung 5.13 zeigt den spezifischen Widerstand von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei Temperaturen unterhalb 1.6 K. In beiden Orientierungen ist der Absolutwert

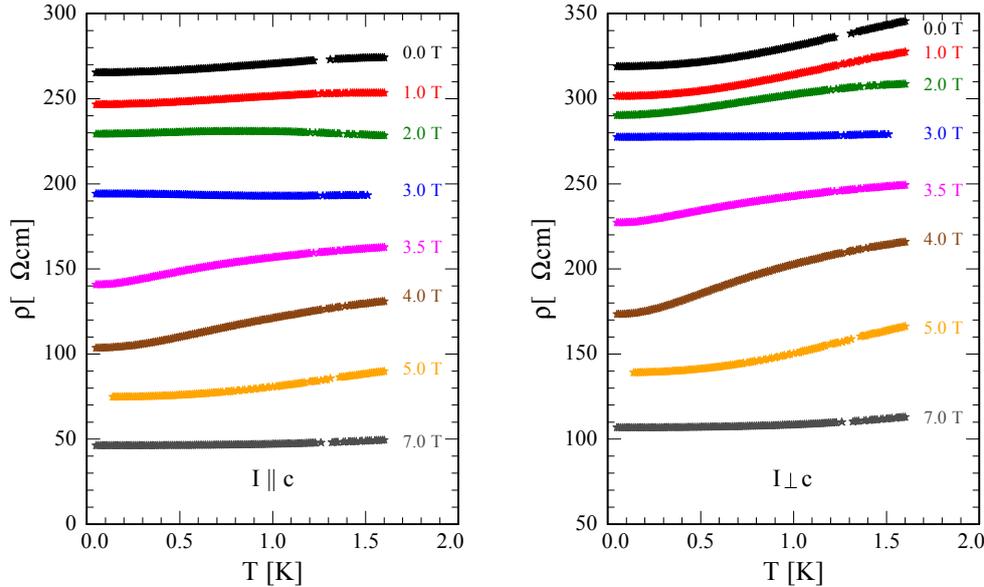


Abbildung 5.13: Tieftemperaturwiderstand von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei unterschiedlichen Magnetfeldern  $B$  in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$ . Im linken Teilbild verlief der Strom parallel, im rechten senkrecht zur magnetisch leichten  $c$ -Achse. Zur besseren Übersicht sind die Kurven um jeweils  $20 \mu\Omega\text{cm}$  zur darunter liegenden Kurve nach oben verschoben.

des elektrischen Widerstandes höher als bei  $\text{CePdAl}$ . Dies ist dadurch begründet, dass die Nickelatome als Störstellen für die Ladungsträger wirken. Außerdem zeigt der Widerstand in diesem Bereich deutlich geringere Temperaturabhängigkeit als bei reinem  $\text{CePdAl}$ , was möglicherweise ebenfalls darauf, verbunden mit einer Abweichung von der Matthiessenschen Regel zurückzuführen ist. Die Ni-Verunreinigungen ändern jedoch nichts an der Anisotropie im elektrischen Widerstand. Auch für  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  ist der Widerstand in senkrechter Orientierung im Nullfeld um einen Faktor von etwa 1.5 höher als in paralleler Orientierung. Die Phasenübergänge können nicht direkt aus den Widerstandskurven abgelesen werden, da sie entweder vom Kondo-Effekt überlagert sind oder  $T_N$  oberhalb des gemessenen Bereichs liegt. Jedoch ist der Einfluss der Phasenübergänge in den Kurven für Feldstärken bis einschließlich 3 T beobachtbar.

In paralleler Orientierung sind in der Nullfeldkurve und der 1 T-Kurve Anstie-

ge zu sehen, bei Temperaturen nahe der Phasengrenze flachen die Kurven ab. Dieses Abflachen ist möglicherweise auf Ausläufer des Maximums im Widerstand beim antiferromagnetischen Phasenübergang zurückzuführen. Bei einer magnetische Feldstärke von 2 T zeigt der Widerstand im gemessenen Temperaturbereich ein leichtes Maximum, was vermutlich ebenfalls durch den Phasenübergang bedingt ist. Laut Phasendiagramm (Abb. 5.17, s.u.) liegt die Néel-Temperatur bei dieser Feldstärke bei etwa 1.3 K. Die 3 T-Kurve verläuft im gezeigten Bereich nahezu flach. Bei näherem Hinsehen (linkes Teil-

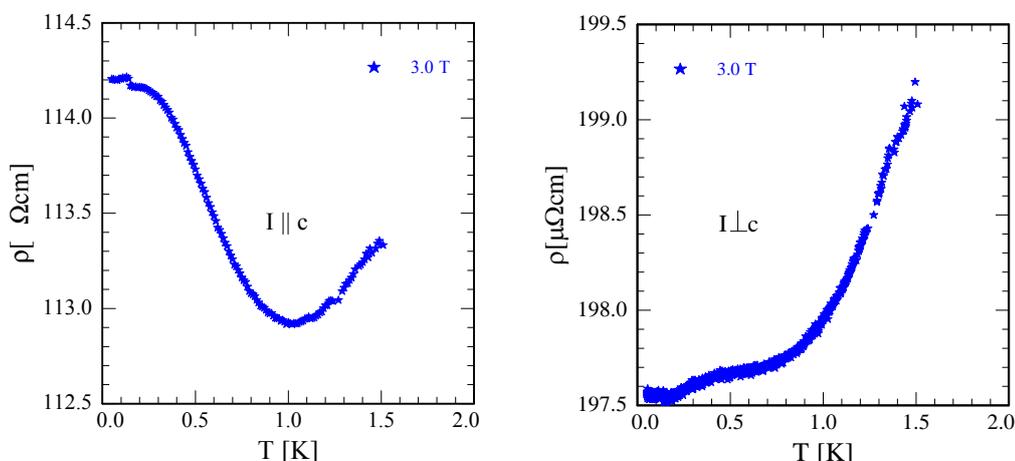


Abbildung 5.14: Widerstand von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei  $B = 3 \text{ T}$  in stark vergrößertem Maßstab.

bild in Abb. 5.14) ist hier ein Minimum bei  $T = 1 \text{ K}$  und ein leichter Anstieg zu tiefen Temperaturen hin zu beobachten. Hier liegt die Néel-Temperatur um  $T_N = 0.8 \text{ K}$ . Für Felder oberhalb von 3 T steigen die Kurven mit steigender Temperatur an und flachen für  $B = 3.5 \text{ T}$  und  $B = 4 \text{ T}$  im gezeigten Bereich zu höheren Temperaturen hin ab. Die Ursache hierfür ist das Kondo-Maximum, unterhalb dessen kohärente Streuung an den magnetischen Momenten stattfindet.

In senkrechter Orientierung sind die Maxima in den Kurven bei 2 T und 3 T nicht zu beobachten. Dies lässt sich so interpretieren, dass die Fermifläche in dieser Orientierung die magnetische Brillouinzone nicht schneidet. Die 3 T-Kurve (rechtes Teilbild in Abb. 5.14) verläuft hier im gezeigten Temperaturbereich nahezu flach, erst oberhalb von 0.8 K ist ein leichter Anstieg zu sehen. Mit Ausnahme der 3 T-Kurve steigen alle Kurven mit steigender Temperatur an, bei Feldern zwischen 2 T und 4 T ist außerdem ein Abflachen beobachtbar, da der Widerstand zu höheren Temperaturen in das Kondo-Maximum läuft.

### Quadratisches Verhalten bei tiefen Temperaturen

Wie in Abbildung 5.15 zu sehen ist, hängt die Änderung des elektrischen Widerstandes von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  im unteren gemessenen Temperaturbereich quadratisch von der Temperatur ab. Die Bereiche quadratischer Abhängig-

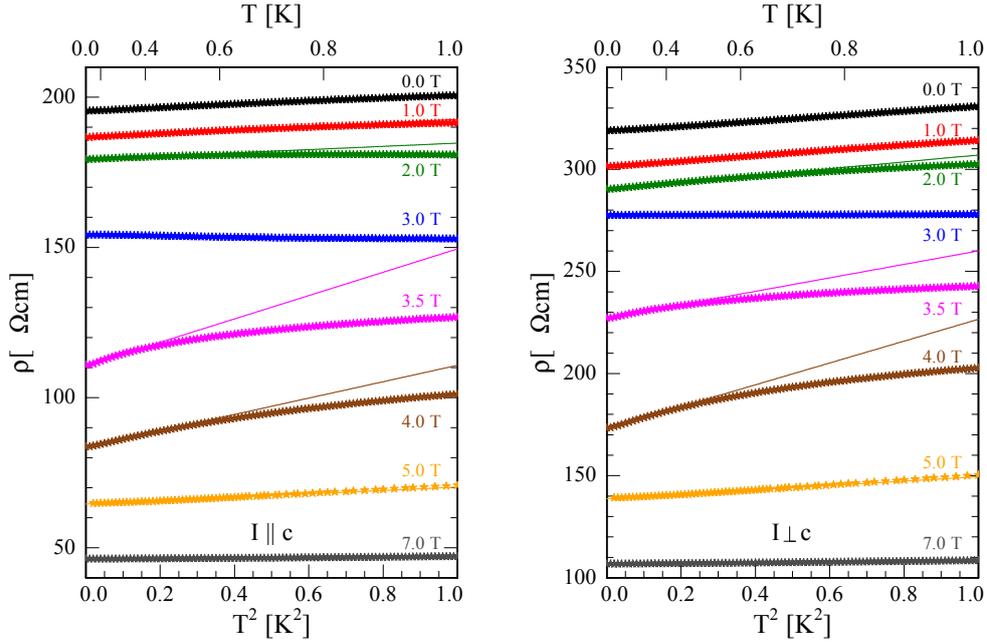


Abbildung 5.15: Tieftemperaturwiderstand von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei unterschiedlichen Magnetfeldern  $B$  in Abhängigkeit von der quadrierten Temperatur  $T^2$ . Im linken Teilbild verlief der Strom parallel, im rechten senkrecht zur magnetisch leichten  $c$ -Achse. Die Kurven wurden für jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  ( $I \parallel c$ ) bzw.  $20 \mu\Omega\text{cm}$  ( $I \perp c$ ) verschoben.

keit sind bei unterschiedlichen Feldstärken unterschiedlich ausgedehnt. Für  $B \leq 3 \text{ T}$  ist kein  $T^2$ -Verhalten zu beobachten. Dies ist ein Effekt, der auf die Nähe zum Phasenübergang zurückzuführen ist. In Magnetfeldern  $B = 3.5 \text{ T}$  und  $B = 4 \text{ T}$  ist  $\rho \propto T^2$  für  $T \leq 0.5 \text{ K}$ . Für  $B = 5 \text{ T}$  und  $B = 7 \text{ T}$  beobachtet man einen kleinen  $T^2$ -Term bis etwa  $1 \text{ K}$ .

### Feldabhängigkeit des Widerstandes

In Abbildung 5.16 ist der magnetfeldabhängige Widerstand der Legierung  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei einer Temperatur von  $60 \text{ mK}$  gezeigt. Es sind keine Sprünge oder Schultern im elektrischen Widerstand wie in Abb. 5.6 zu sehen. Im Bereich kleinerer Felder, unterhalb von etwa  $2.7 \text{ T}$ , steigt  $\rho$  leicht an, erreicht dann ein Maximum und fällt wieder ab. Der Anstieg lässt sich

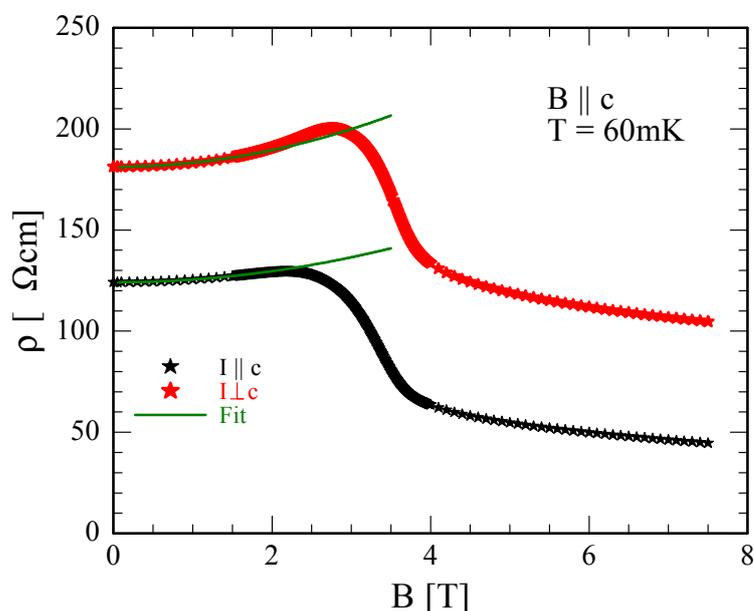


Abbildung 5.16: Spezifischer elektrischer Widerstand in Abhängigkeit vom Magnetfeld  $\rho(B)$  von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  bei einer Temperatur von  $T = 60 \text{ mK}$ . Schwarze Symbole zeigen die Messung mit  $I \parallel c$ , rote Symbole die Messung mit  $I \perp c$ . Die grünen Linien stellen den  $B^2$ -Fit dar.

bis zu einem Feld von  $B = 1.5 \text{ T}$  auch hier gut durch die Funktion  $\rho(B) = \rho(0)(1 + a \cdot B^2)$  beschreiben. Der Fitparameter  $a$  war für beide Richtungen  $0.01 \text{ 1/T}^2$ , stimmte aber auch hier nicht mit dem in [24] errechneten überein. Trotz der Unordnung, die durch Substitution von Palladium durch Nickel entsteht, ist der elektrische Widerstand von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  unverändert anisotrop. Aus  $\rho(B)$  lässt sich das kritische Feld für  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  zu  $B_c = 3.35 \text{ T}$  ( $I \parallel c$ ), bzw.  $B_c = 3.55 \text{ T}$  ( $I \perp c$ ) bestimmen<sup>3</sup>. Diese Diskrepanz beim kritischen Feld ließe sich wieder durch eine leichte Fehlorientierung begründen. Jedoch geben Neutronenstreuexperimente [54] Anlass zu der Annahme, dass die  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$ -Züchtung nicht homogen ist. Es ist also möglich, dass in der ( $I \parallel c$ )-Probe eine andere Fremdphasenkonzentration ist als in der ( $I \perp c$ )-Probe.

### Einordnung ins Phasendiagramm

Aus den Temperaturabhängigkeiten des elektrischen Widerstands lässt sich die Néel-Temperatur nicht ablesen. Daher ist in das Phasendiagramm in Ab-

<sup>3</sup>Hierfür wurden die Messdaten numerisch nach  $B$  abgeleitet und die Position des Extremums als Wert für das kritische Feld genommen.

bildung 5.17 nur das aus den Feldsweeps ermittelte kritische Feld eingetragen. Die übrigen Daten stammen aus [53]. Der gemessene Wert für  $B_c$  passt gut

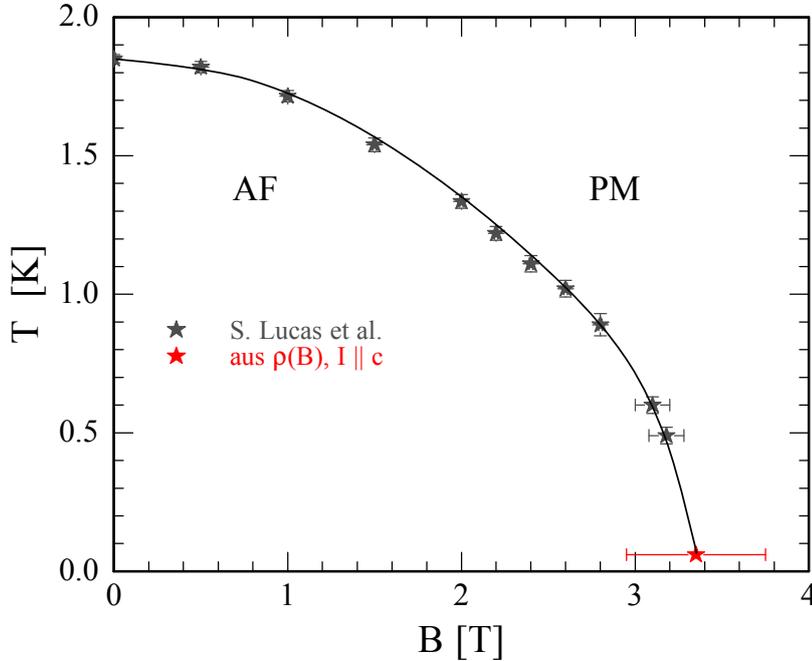


Abbildung 5.17:  $(B, T)$ -Phasendiagramm von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$ . Das aus den in Abbildung 5.16 gezeigten Daten ermittelte kritische Feld ist farblich in das Diagramm eingetragen.

zu dem bisher angenommenen Phasendiagramm.

### Koeffizient $A$ des quadratischen Widerstandsterms

Aus den Widerstandskurven in Abbildung 5.15 wurde analog zu  $\text{CePdAl}$  die Magnetfeldabhängigkeit des  $A$ -Koeffizienten ermittelt. Wie schon oben erwähnt wurde nur für  $B \geq 3.5$  T ein eindeutiger  $T^2$ -Beitrag beobachtet. Aus Gründen der Vollständigkeit sind in Abbildung 5.18 auch die Steigungen der Fitgeraden für  $B \leq 3$  T gezeigt. Die Absolutwerte des  $A$ -Koeffizienten für  $B \geq 3.5$  T sind in etwa vergleichbar mit denen für reines  $\text{CePdAl}$ .

Auf eine Diskussion des Kadowaki-Woods-Verhältnisses für  $x = 0.05$  wird hier verzichtet, da die hierfür notwendige Messung der spezifischen Wärme durch Dr. A. Sakai, Universität Augsburg, nur für  $B = 0$  T, 1 T, 2 T, 3 T, 5 T und 7 T durchgeführt wurde. Bei großer Streuung ergaben sich hier Mittelwerte von  $A/\gamma^2 = 12$  und  $30 \mu\Omega\text{cm mol}^2\text{K}^2/\text{J}^2$  für  $I \parallel c$  und  $I \perp c$ . Die Werte

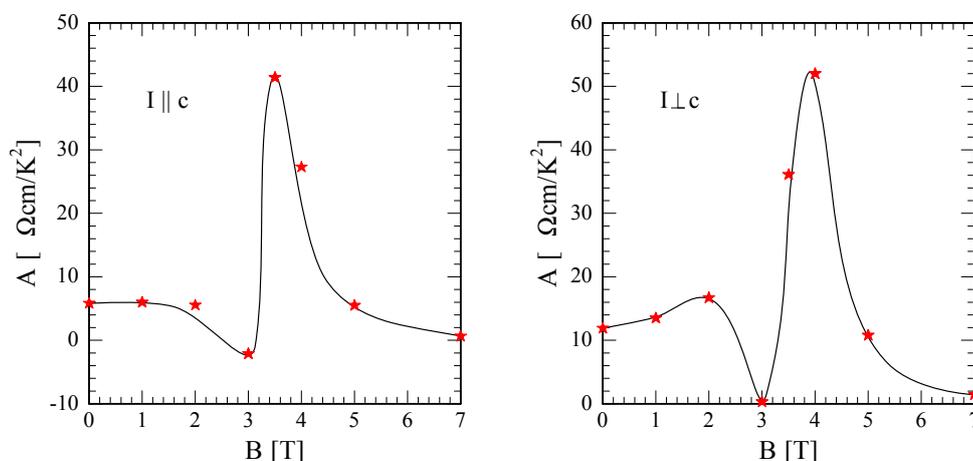


Abbildung 5.18:  $A$ -Koeffizient von  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  in Abhängigkeit vom Magnetfeld, links für  $I \parallel c$ , rechts für  $I \perp c$ . Die Linien dienen der Orientierung.

liegen etwa in dem Bereich für Schwerfermionsysteme [25]. Dies weist eventuell darauf hin, dass die Frustration eines Teils der Cer-Momente abgeschwächt wird, möglicherweise durch Ni-induzierte lokale Verzerrungen.

## 5.3 $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$

In Messungen der spezifischen Wärme wurde gefunden, dass die quantenkritische Ni-Konzentration von  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  etwa bei  $x = 0.14$  liegt [9, 30]. Daher wurde der spezifische Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  auf quantenkritisches Verhalten untersucht.

### 5.3.1 Spezifischer Widerstand

Der spezifische Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  ist in Abbildung 5.19 dargestellt. Die Tieftemperaturdaten wurden hier in einem  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ -Mischkryostat, bei dem sich die Proben im Vakuum befinden, gemessen, weshalb die thermische Ankopplung deutlich schlechter war und der Messstrom auf  $0.05\text{ mA}$  reduziert werden musste. Daher war in diesen Messungen das Rauschen deutlich höher. Deshalb wurden die Tieftemperaturmesspunkte in gleich große Temperatur- bzw. Magnetfeldintervalle zu einem Mittelwert zusammengefasst. In Abbildung 5.19 waren diese Intervalle  $\Delta T = 10\text{ mK}$  breit. Das Restwiderstandsverhältnis (RRR) bei  $B = 7\text{ T}$  ist bei diesen Proben  $1.6$  ( $I \parallel c$ ), bzw.  $1.2$  ( $I \perp c$ ). Dies hat hauptsächlich die Unordnung im System,

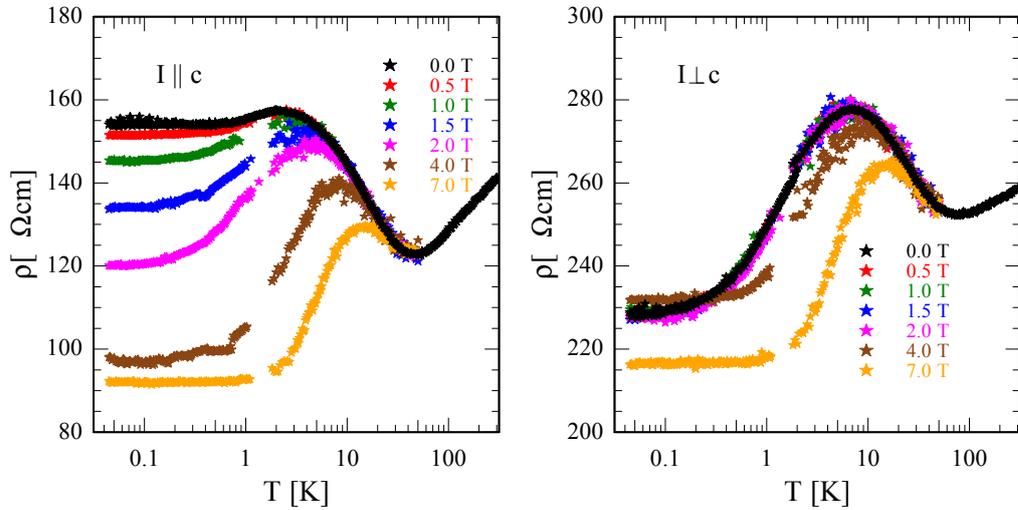


Abbildung 5.19: Spezifischer Widerstand  $\rho(T)$  von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  bei verschiedenen Magnetfeldern über einen Temperaturbereich von  $T = 300\text{ K}$  bis zu tiefen Temperaturen ( $T \approx 50\text{ mK}$ ). Im linken Teilbild verlief der Strom parallel zur magnetisch leichten Achse ( $I \parallel c$ ), im rechten Teilbild senkrecht ( $I \perp c$ ).

die mit zunehmendem Nickelgehalt steigt, als Ursache. EDX-Messungen<sup>4</sup> an Proben aus der gleichen Züchtung ergaben jedoch, dass die  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$ -Proben in der Nickelkonzentration nicht homogen sind [39]. Im Nullfeld fällt der Widerstand für  $I \parallel c$  unterhalb der Temperatur, bei der er sein Maximum erreicht nur wenig ab und läuft bald in einen etwa konstanten „Restwiderstand“, der höher ist als der Widerstand bei Raumtemperatur. Dieser sinkt monoton mit steigendem Magnetfeld von  $155\ \mu\Omega\text{cm}$  auf  $92\ \mu\Omega\text{cm}$  zwischen  $0\text{ T}$  und  $7\text{ T}$ . Der Kondo-Effekt wird im Feld immer stärker unterdrückt und das Kondo-Maximum zu höheren Temperaturen verschoben, wie es aus der Literatur bekannt ist und für  $\text{CePdAl}$  beobachtet wird (Abbildung 5.1). Für  $I \perp c$  sieht das Widerstandsverhalten deutlich anders aus. Der elektrische Widerstand fällt zu tieferen Temperaturen durch die einsetzende kohärente Streuung. Der Kondo-Effekt wird in dieser Orientierung offenbar weniger stark durch Magnetfelder unterdrückt. Erst ab einem Feld von  $4\text{ T}$  verkleinert sich der Bereich des logarithmischen Anstiegs signifikant.

### Tieftemperaturwiderstand

Der Tieftemperaturwiderstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  wurde eingehender untersucht. Jedoch sind hier bedingt durch die experimentellen Umstände (s.o.) die Werte stark verrauscht, weshalb die in Abbildung 5.20 präsentierten Mess-

<sup>4</sup>Energiedispersive Röntgenspektroskopie

kurven wie oben beschrieben gemittelt wurden.

Für  $0 < B < 7$  T steigt in paralleler Orientierung der spezifische Widerstand

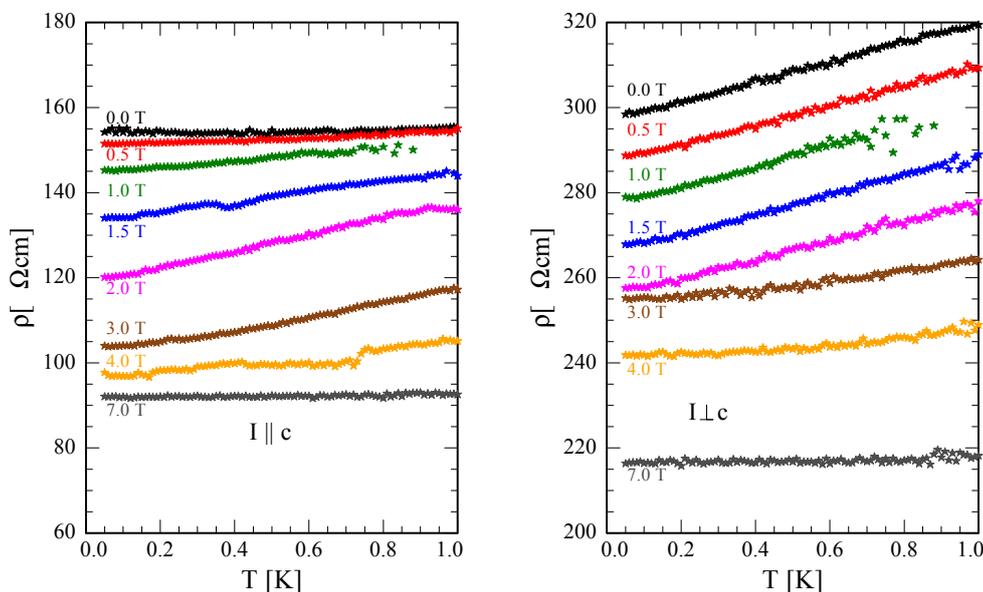


Abbildung 5.20: Tiefemperaturwiderstand  $\rho(T)$  von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  bei verschiedenen Magnetfeldern. Im linken Teilbild verlief der Strom parallel zur magnetisch leichten Achse ( $I \parallel c$ ), im rechten Teilbild senkrecht ( $I \perp c$ ). Die Kurven im rechten Teilbild wurden zur jeweils darunter liegenden Kurve um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben.

im hier gezeigten Bereich mit steigender Temperatur an. Für  $I \perp c$  sind die Kurven bei allen gezeigten Magnetfeldern monoton steigend, und es ergeben sich kaum Änderungen in Magnetfeldern  $B \leq 2$  T. Der Widerstand verhält sich bis zu einem Magnetfeld von 2 T in guter Näherung linear in  $T$ . Oberhalb von 2 T weicht er vom linearen Verhalten ab.

Der spezifische Widerstand im Nullfeld ist in Abbildung 5.21 vergrößert dargestellt. Für  $I \parallel c$  (linkes Teilbild) steigt der Widerstand zu tiefen Temperaturen hin leicht an. Möglicherweise findet hier ein Übergang in die antiferromagnetische Phase bei etwa 0.5 K statt. Dies könnte darauf hinweisen, dass die kritische Nickelkonzentration etwas oberhalb von  $x = 0.14$  liegt. Andererseits sind Konzentrationsinhomogenitäten nicht auszuschließen. Der Anstieg ist jedoch vergleichbar mit der Messgenauigkeit, so dass eine Klärung weiterer Untersuchungen bedarf.

Der Widerstand für  $I \perp c$  unterhalb einer Temperatur von  $T = 1$  K verläuft linear. Das HMM-Modell sagt für den Widerstand am Quantenphasenübergang eines zweidimensionalen Antiferromagneten lineare Temperaturabhängigkeit, für einen dreidimensionalen Antiferromagneten  $T^{3/2}$ -Abhängigkeit voraus [36, 37, 38]. Letztere kann hier ausgeschlossen werden. Daher ist die

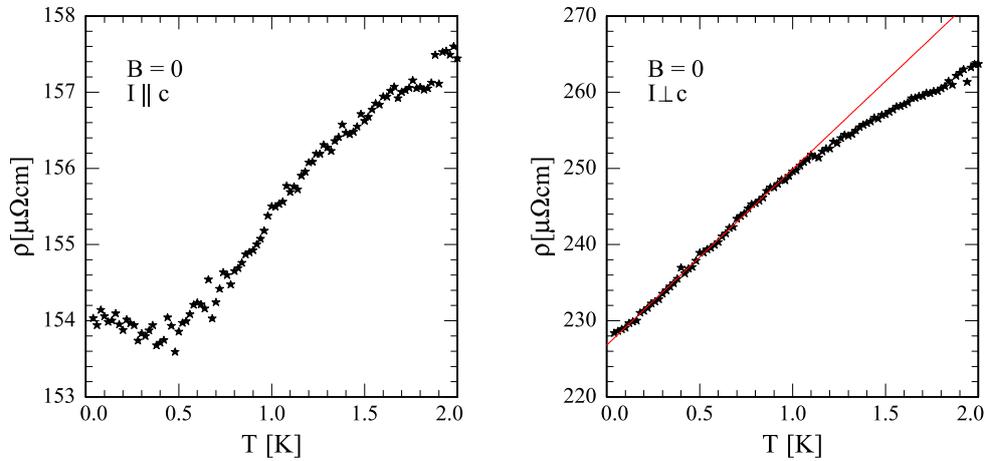


Abbildung 5.21: Spezifischer Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  im Nullfeld bei tiefen Temperaturen. Im linken Teilbild verlief der Strom parallel zur magnetisch leichten Achse ( $I \parallel c$ ), im rechten Teilbild senkrecht ( $I \perp c$ ).

für  $I \perp c$  beobachtete lineare Temperaturabhängigkeit konsistent mit dem in [9] und [39] geschilderten Szenario von zweidimensionalen Fluktuationen im dreidimensional ordnenden Antiferromagneten.

Abbildung 5.22 zeigt den spezifischen Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  im Bereich kleiner Feldstärken. Die Kurven werden für  $I \parallel c$  (linkes Teilbild) mit

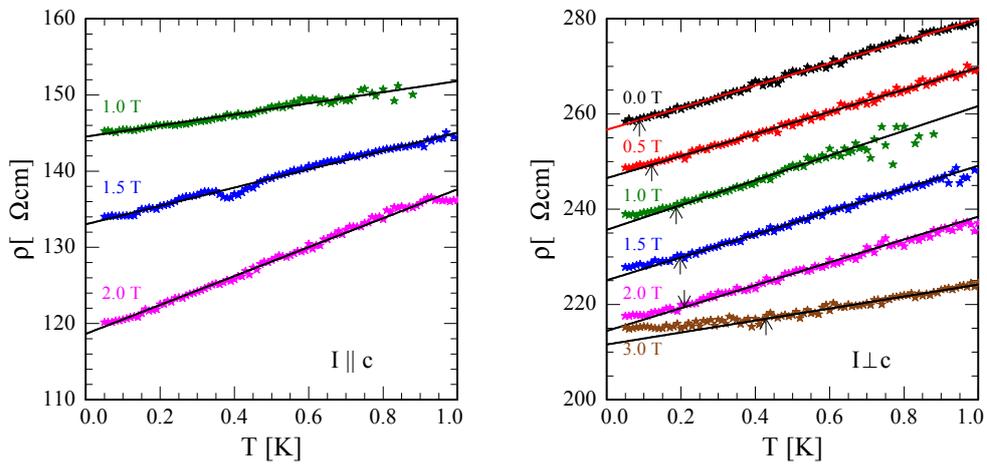


Abbildung 5.22: Lineares Verhalten für den spezifischen Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$ . Im linken Teilbild verlief der Strom parallel zur magnetisch leichten Achse ( $I \parallel c$ ), im rechten Teilbild senkrecht ( $I \perp c$ ). Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10 \mu\Omega\text{cm}$  verschoben. Die Pfeile markieren die Temperaturen, unterhalb denen  $\rho(T)$  vom linearen Verhalten abweicht.

zunehmendem Magnetfeld steiler. Für  $I \perp c$  (rechtes Teilbild) verhält sich der Widerstand für  $0 \leq B \leq 2\text{ T}$  bei nicht zu tiefen Temperaturen linear. Die Steigung liegt hier bei konstant  $23\ \mu\Omega\text{cm}/\text{K}$ . Unterhalb der im rechten Teilbild von Abbildung 5.22 durch Pfeile markierten Temperaturen weicht  $\rho(T)$  vom linearen Verhalten ab.

Für  $B > 2\text{ T}$  ist  $\rho$  über  $T^n$  mit  $n = 3/2$  für  $I \parallel c$  und  $n = 2$  für  $I \perp c$  aufgetragen. In senkrechter Orientierung verhält sich der spezifische Wider-

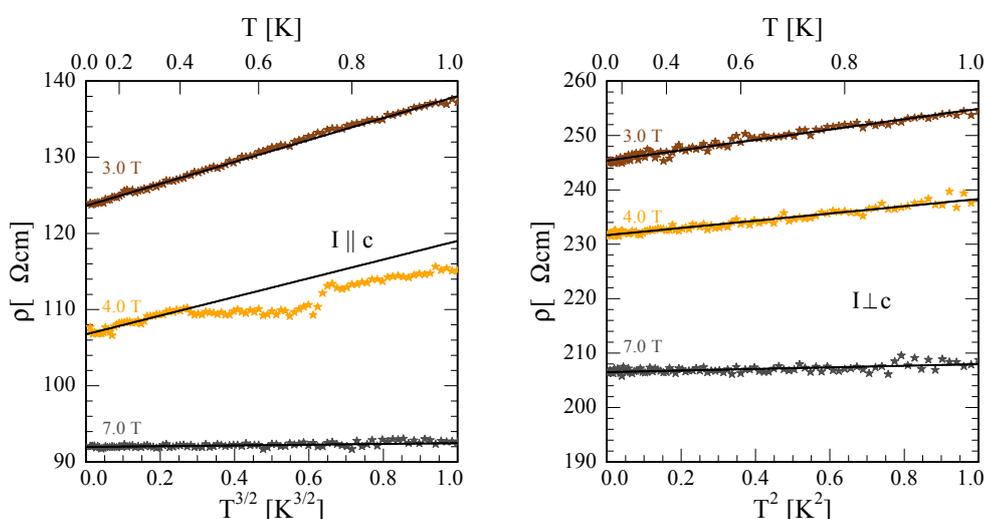


Abbildung 5.23: Spezifischer Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  in Magnetfeldern, in denen der Widerstand vom linearen Verhalten abweicht. Im linken Teilbild verlief der Strom parallel zur magnetisch leichten Achse ( $I \parallel c$ ), im rechten Teilbild senkrecht ( $I \perp c$ ). Die Kurven wurden zur jeweils darunter liegenden um  $10\ \mu\Omega\text{cm}$  verschoben.

stand wie man es von einer schweren Fermiflüssigkeit erwartet quadratisch. Aus vielen anderen Beispielen ist dieser Crossover von quantenkritischem zu Fermiflüssigkeitsverhalten bekannt. Für  $I \parallel c$  scheint die 3 T-Kurve einem  $T^{3/2}$ -Verhalten zu folgen, wie es im HMM-Modell für einen dreidimensionalen Antiferromagneten am Quantenphasenübergang vorhergesagt wird. Die 4 T-Messung ist wegen des Sprungs bei etwa  $0.7\text{ K}$  nicht zuverlässig auswertbar. In einem Feld von  $7\text{ T}$  ist für beide Stromrichtungen die Temperaturabhängigkeit so gering, dass im Rahmen des Rauschens Exponenten zwischen 1 und 2 zu den Daten passen. Die Diskrepanz zwischen dem Verhalten bei  $I \parallel c$  und  $I \perp c$  ist unklar.

### Feldabhängigkeit des Widerstandes

Abbildung 5.24 zeigt den spezifischen Widerstand von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  bei einer konstanten Temperatur von  $T = 40 \text{ mK}$  in Abhängigkeit vom magnetischen Feld  $B$ . Wegen der Schwankung der Messdaten wurden in diesen

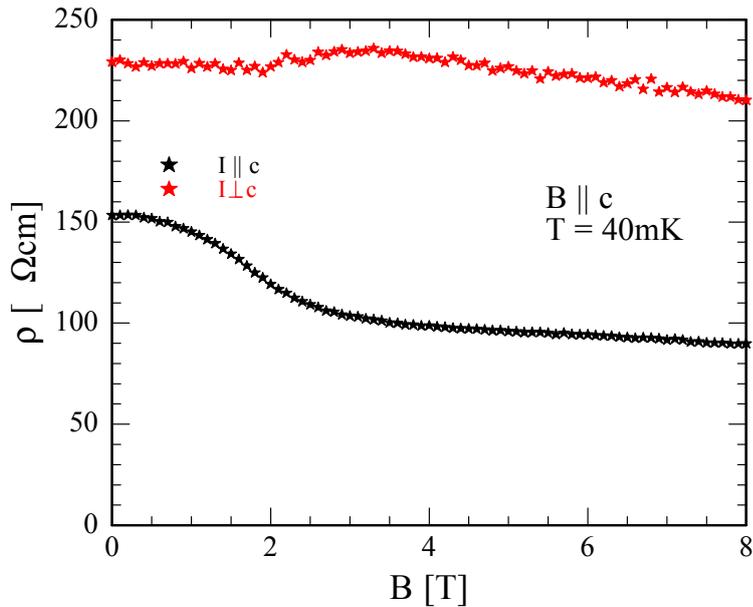


Abbildung 5.24: Spezifischer elektrischer Widerstand in Abhängigkeit vom Magnetfeld  $\rho(B)$  von  $\text{CePd}_{0.86}\text{Ni}_{0.14}\text{Al}$  bei einer Temperatur von  $T \approx 40 \text{ mK}$ . Schwarze Symbole zeigen die Messung mit  $I \parallel c$ , rote Symbole die Messung mit  $I \perp c$ .

Kurven Messpunkte über ein Intervall von  $\Delta B = 0.1 \text{ T}$  zu einem Mittelwert zusammengefasst. Während für  $I \parallel c$  der Widerstand mit steigendem Magnetfeld monoton fällt, sinkt der Widerstand für  $I \perp c$  zunächst bis zu einer Feldstärke von etwa  $2 \text{ T}$ , steigt danach wieder an und erreicht ein Maximum bei  $B \approx 3 \text{ T}$ . Danach fällt er wieder ab. Der Widerstand für  $I \perp c$  ist deutlich schwächer vom Magnetfeld abhängig als für  $I \parallel c$ .

Aus der Kurve für  $I \parallel c$  lässt sich ein kritisches Feld von  $B_c = 1.7 \text{ T}$  ableiten. Dies fällt im Rahmen der Streuung etwa mit dem lokalen Minimum in der Kurve für  $I \perp c$  bei etwa  $2 \text{ T}$  zusammen. Mögliche Ursache für dieses kritische Feld  $B_c$  ist unterhalb von  $B_c$  einsetzende kurzreichweitige Ordnung.



# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde der spezifische elektrische Widerstand  $\rho$  des partiell frustrierten Schwerfermionensystems  $\text{CePd}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}$  für die Konzentrationen  $x = 0, 0.05$  und  $0.14$  bei tiefen Temperaturen und in Magnetfeldern bis zu  $7\text{ T}$  untersucht.

Für alle gemessenen Konzentrationen verhält sich  $\rho$  anisotrop: In Richtung der magnetisch leichten  $c$ -Achse ist der spezifische Widerstand geringer als senkrecht zur  $c$ -Achse.

In Messungen des Magnetowiderstands von  $\text{CePdAl}$  wurde die Existenz von drei antiferromagnetischen Phasen von  $\text{CePdAl}$  bei tiefen Temperaturen bestätigt. Bei tiefen Temperaturen wurde für  $x = 0$  Fermiflüssigkeitsverhalten ( $T^2$ -Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes) im gesamten Feldbereich beobachtet. Für den Koeffizienten  $A$  des quadratischen Widerstandsterms wurde die Magnetfeldabhängigkeit untersucht. In  $\text{CePdAl}$  wird  $A$  durch die drei antiferromagnetischen Phasen, die in Abhängigkeit vom Magnetfeld  $B$  auftreten, wesentlich beeinflusst. Das Kadowaki-Woods-Verhältnis (KWV)  $A/\gamma^2$  von  $A$  zum Sommerfeldkoeffizienten  $\gamma$  der spezifischen Wärme ist in  $\text{CePdAl}$  bei niedrigen Feldern bis etwa  $3.5\text{ T}$  stark erhöht, wenn man den Wert von  $\gamma$  auf alle Cer-Atome bezieht. Berücksichtigt man, dass zwei Drittel der Cer-Momente zur magnetischen Ordnung beitragen und zur Fermiflüssigkeit nur ein Drittel beiträgt, ergibt sich etwa das für Schwerfermionensysteme typische KWV  $A/\gamma^2 = 10\ \mu\Omega\text{cm mol}^2\text{K}^2/\text{J}^2$ . Überraschend ist, dass bei  $\text{CePd}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{Al}$  das KWV sehr klein ist. Möglicherweise wird die Frustration durch Ni-induzierte lokale Verzerrungen geschwächt. Das Schicksal der frustrierten Cer-Momente bei tiefen Temperaturen ist ungeklärt. Insbesondere ist unklar, ob sie dem Kondo-Effekt unterliegen oder – wie spekuliert wird – eine Spinflüssigkeit, also einen ungeordneten Zustand mit starken kurzreichweitigen Korrelationen, ausbilden. Hierüber könnten eventuell Messungen der thermischen Leitfähigkeit  $\kappa$  Aufschluss geben. Anregungen in einer Spinflüs-

sigkeit würden zu  $\kappa$  beitragen, nicht aber zur Leitfähigkeit  $\sigma$ . Daher würde man erwarten, dass die Lorenzzahl erhöht wird. Andererseits tragen auch Magnonen zum Wärmetransport aber nicht zum Ladungstransport bei. Notwendig ist also eine detaillierte Messung der Abhängigkeit der Lorenzzahl vom Magnetfeld und der Orientierung der Probe, um die Frage eine Spinflüssigkeit in CePdAl zu klären.

Am quantenkritischen Punkt ist für  $I \perp c$  Nichtfermiflüssigkeitsverhalten im Nullfeld beobachtbar. Die gefundene lineare  $T$ -Abhängigkeit des elektrischen Widerstandes ist mit zweidimensionalen antiferromagnetischen Fluktuationen in CePd<sub>0.86</sub>Ni<sub>0.14</sub>Al kompatibel. Eine lineare  $T$ -Abhängigkeit wird im HMM-Modell für  $\rho(T)$  bei zweidimensionalen Systemen vorausgesagt. Eine Schlüsselrolle spielen hier die frustrierten Momente, die die antiferromagnetischen Ebenen, in denen die Fluktuationen stattfinden, voneinander trennen. Im Magnetfeld geht das System nach und nach zu Fermiflüssigkeitsverhalten über, wie von anderen bei  $B = 0$  quantenkritischen Schwerfermionsystemen bekannt ist. Dagegen ist der Widerstand von CePd<sub>0.86</sub>Ni<sub>0.14</sub>Al bei  $I \parallel c$  für  $B = 0$  nahezu temperaturunabhängig und möglicherweise von Konzentrationsinhomogenitäten beeinflusst. Zwischen 1 T und 3 T ist jedoch auch hier eine lineare Abhängigkeit von  $\rho(T)$  zu sehen. Mit steigenden Magnetfeldern weicht auch hier der Widerstand deutlich vom linearen Verhalten ab.

# Literaturverzeichnis

- [1] H. v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta und P. Wölfle. *Fermi-liquid instabilities at magnetic quantum phase transitions*. Rev. Mod. Phys. **79**, 1015 (2007).
- [2] H. von Löhneysen und M. H. Vojta. *Quantum Phase Transitions in Correlated Electron Systems* (2015).
- [3] H. v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H. Schlager, A. Schröder, M. Sieck und T. Trappmann. *Non-Fermi-liquid behavior in a heavy-fermion alloy at a magnetic instability*. Phys. Rev. Lett. **72** (20), 3262 (1994).
- [4] Q. Si. *Global magnetic phase diagram and local quantum criticality in heavy fermion metals*. Physica B **378**, 23 (2006).
- [5] M. Vojta. *From itinerant to local-moment antiferromagnetism in Kondo lattices: Adiabatic continuity versus quantum phase transitions*. Phys. Rev. B **78** (12), 125109 (2008).
- [6] P. Coleman und A. H. Nevidomskyy. *Frustration and the Kondo effect in heavy fermion materials*. J. Low Temp. Phys. **161** (1-2), 182 (2010).
- [7] H. Kitazawa, A. Matsushita, T. Matsumoto und T. Suzuki. *Electronic and thermal properties of CePdAl*. Physica B **199**, 28 (1994).
- [8] Y. Isikawa, T. Mizushima, N. Fukushima, T. Kuwai, J. Sakurai und H. Kitazawa. *Magnetocrystalline Anisotropy of Magnetic Dense-Kondo Compound CePdAl*. J. Phys. Soc. Jpn **65**, 117 (1996).
- [9] V. Fritsch, N. Bagrets, G. Goll, W. Kittler, M. Wolf, K. Grube, C.-L. Huang und H. v. Löhneysen. *Approaching quantum criticality in a partially geometrically frustrated heavy-fermion metal*. Phys. Rev. B **89** (5), 054416 (2014).

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- [10] P. Nozières und A. Blandin. *Kondo effect in real metals*. J. Phys. **41** (3), 193 (1980).
- [11] J. Custers, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaier, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, C. Pépin und P. Coleman. *The break-up of heavy electrons at a quantum critical point*. Nature **424** (6948), 524 (2003).
- [12] J. Kondo. *Resistance Minimum in Dilute Magnetic Alloys*. Prog. Theor. Phys. **32** (1), 37 (1964).
- [13] H. v. Löhneysen. *Magnetismus und Supraleitung in Schwer-Fermion-Systemen*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen 24. IFF Ferienkurs (1993).
- [14] C. Enss und S. Hunklinger. *Low-Temperature Physics*. Springer (2005).
- [15] S. Blundell. *Magnetism in condensed matter*. Oxford Univ. Press (2001).
- [16] S. Doniach. *The Kondo lattice and weak antiferromagnetism*. Physica B+C **91** (0), 231 (1977).
- [17] M. Harris. *Condensed-matter physics: The eternal triangle*. Nature **456** (7224), 886 (2008).
- [18] G. Wannier. *Antiferromagnetism. the triangular ising net*. Phys. Rev. **79** (2), 357 (1950).
- [19] P. W. Anderson. *Resonating valence bonds: A new kind of insulator?*. Mater. Res. Bull. **8** (2), 153 (1973).
- [20] P. Drude. *Zur Elektronentheorie der Metalle*. Ann. Phys. **306** (3), 566. ISSN 1521-3889 (1900).
- [21] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders, Philadelphia **293** (1976).
- [22] G. T. Meaden. *Conduction electron scattering and the resistance of the magnetic elements*. Contemp. Phys. **12** (4), 313 (1971).
- [23] H. v. Löhneysen, A. Neubert, T. Pietrus, A. Schröder, O. Stockert, U. Tutsch, M. Loewenhaupt, A. Rosch und P. Wölfle. *Magnetic order and transport in the heavy-fermion system CeCu<sub>6-x</sub>Au<sub>x</sub>*. Eur. Phys. J. B **5** (3), 447 (1998).

- [24] H. Yamada und S. Takada. *Magnetoresistance due to Electron-Spin Scattering in Antiferromagnetic Metals at Low Temperatures*. Prog. Theor. Phys. **49** (5), 1401 (1973).
- [25] K. Kadowaki und S. Woods. *Universal relationship of the resistivity and specific heat in heavy-fermion compounds*. Solid State Commun. **58** (8), 507 (1986).
- [26] A. C. Jacko, J. O. Fjaerestad und B. J. Powell. *A unified explanation of the Kadowaki-Woods ratio in strongly correlated metals*. Nat. Phys. **5** (6), 422. ISSN 1745-2473 (2009).
- [27] A. Oyamada, S. Maegawa, M. Nishiyama, H. Kitazawa und Y. Isikawa. *Ordering mechanism and spin fluctuations in a geometrically frustrated heavy-fermion antiferromagnet on the Kagome-like lattice CePdAl: A  $^{27}\text{Al}$  NMR study*. Phys. Rev. B **77** (6), 064432 (2008).
- [28] T. Goto, S. Hane, K. Umeo, T. Takabatake und Y. Isikawa. *Field-induced magnetic transitions and pressure-induced magnetic instability in CePdAl*. J. Phys. Chem. Solids **63** (6), 1159 (2002).
- [29] Y. Isikawa, T. Kuwai, T. Mizushima, T. Abe, G. Nakamura und J. Sakurai. *Disappearance of magnetic moments in CePd $_{1-x}$ Ni $_x$ Al*. Physica B **281**, 365 (2000).
- [30] V. Fritsch, C.-L. Huang, N. Bagrets, K. Grube, S. Schumann und H. v. Löhneysen. *Magnetization and specific heat of CePd $_{1-x}$ Ni $_x$ Al*. phys. status solidi (b) **250** (3), 506 (2013).
- [31] A. Griбанov, A. Tursina, E. Murashova, Y. Seropegin, E. Bauer, H. Kaldarar, R. Lackner, H. Michor, E. Royanian, M. Reissner *et al.*. *New orthorhombic modification of equiatomic CePdAl*. J. Phys. Condens. Matter **18** (42), 9593 (2006).
- [32] F. Hulliger. *On new ternary aluminides LnPdAl and LnPtAl*. J. Alloys Compd. **196** (1-2), 225 (1993).
- [33] A. Dönni, G. Ehlers, H. Maletta, P. Fischer, H. Kitazawa und M. Zolliker. *Geometrically frustrated magnetic structures of the heavy-fermion compound CePdAl studied by powder neutron diffraction*. J. Phys. Condens. Matter **8** (50), 11213 (1996).
- [34] M. D. Núñez-Regueiro, C. Lacroix und B. Canals. *Magnetic ordering in the frustrated Kondo lattice compound CePdAl*. Physica C **282**, 1885 (1997).

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- [35] V. Fritsch, O. Stockert, C.-L. Huang, N. Bagrets, W. Kittler, C. Taubenheim, B. Pilawa, S. Woitschach, Z. Huesges, S. Lucas *et al.*. *Role of the tuning parameter at magnetic quantum phase transitions*. Eur. Phys. J. Spec. Top. **224** (6), 997 (2015).
- [36] J. A. Hertz. *Quantum critical phenomena*. Phys. Rev. B **14** (3), 1165 (1976).
- [37] A. Millis. *Effect of a nonzero temperature on quantum critical points in itinerant fermion systems*. Phys. Rev. B **48** (10), 7183 (1993).
- [38] T. Moriya und T. Takimoto. *Anomalous properties around magnetic instability in heavy electron systems*. J. Phys. Soc. Jpn. **64** (3), 960 (1995).
- [39] A. Sakai, S. Lucas, P. Gegenwart, O. Stockert, H. v. Löhneysen und V. Fritsch. *Signature of frustrated moments in quantum critical CePd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Al*. Phys. Rev. B **94** (22), 220405 (2016).
- [40] H. v. Löhneysen *et al.*. *persönliche Mitteilung* (2015).
- [41] K. Grube, C.-L. Huang *et al.*. *persönliche Mitteilung* (2013).
- [42] S. Woitschach. *Magnetische Eigenschaften des geometrisch frustrierten Schwere-Fermionen-Systems CePdAl*. Diplomarbeit, Technische Universität Dresden / Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe Dresden (2011).
- [43] S. Hane, T. Goto, T. Abe und Y. Isikawa. *Magnetic behavior of CePdAl under high pressures and high magnetic fields*. Physica B **281**, 391 (2000).
- [44] Oxford Instruments – Scientific Research Division, Old Station Way, Eynsham, Witney, Oxon, OX8 1TL, England. *Kelvinox Dilution Refrigerator and Superconducting Magnet System – Operator’s Handbook* (1995).
- [45] Oxford Instruments – Research Instruments, Tubney Woods, Abingdon, Oxon, OX13 5QX, England. *Superconducting Magnet Power Supply IPS120-10 (120 amps, 10 volts) – Operator’s Handbook* (1998).
- [46] Linear Research Inc., 5231 Cushman Place, Suite 21, San Diego, CA 92110-3910 USA. *LR-700 AC Resistance Bridge – User’s Manual*, 1.3 edition (1997).

- [47] J. Ekin. *Experimental Techniques for Low-Temperature Measurements: Cryostat Design, Material Properties and Superconductor Critical-Current Testing: Cryostat Design, Material Properties and Superconductor Critical-Current Testing*. OUP Oxford (2006).
- [48] S. Lucas, S. Woitschach, V. Fritsch *et al.*. *persönliche Mitteilung* (2015).
- [49] S. Akamaru, Y. Isikawa, T. Kuwai, T. Mizushima, J. Sakurai und Y. Uwatoko. *Low temperature transport properties of CePdAl under pressure*. Physica B **312–313**, 466 . ISSN 0921-4526. The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (2002).
- [50] D. C. Cavanagh, A. C. Jacko und B. J. Powell. *When is the Kadowaki-Woods ratio universal?*. ArXiv e-prints (2015), 1502.01800.
- [51] P. Gegenwart, J. Custers, C. Geibel, K. Neumaier, T. Tayama, K. Tenya, O. Trovarelli und F. Steglich. *Magnetic-Field Induced Quantum Critical Point in YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>*. Phys. Rev. Lett. **89** (5), 056402 (2002).
- [52] A. Sakai, V. Fritsch *et al.*. *persönliche Mitteilung* (2015).
- [53] S. Lucas. *Stabilität der magnetischen Ordnung im geometrisch frustrierten Schwere-Fermionen-System CePd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Al*. Masterarbeit, Technische Universität Dresden / Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe Dresden (2014).
- [54] Z. Huesges. *Probing magnetic fluctuations close to quantum critical points by neutron scattering*. Dissertation, Technische Universität Dresden / Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe Dresden (2015).



# Danksagung

Die folgenden Seiten sind all denen gewidmet, die mir während meiner Zeit am KIT auf unterschiedliche Art und Weise zur Seite standen.

PROF. DR. HILBERT VON LÖHNEYSSEN danke ich für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und für die anregenden und richtungsweisenden Diskussionen.

Bei PROF. DR. GEORG WEISS bedanke ich mich für die Übernahme des Korreferats und dafür, dass ich in seinem Kryostaten messen durfte.

Besonderer Dank geht auch an DR. VERONIKA FRITSCH für die Betreuung meiner Arbeit, die besonders in den letzten Monaten noch einmal intensiver wurde, und natürlich für die schönen Einkristalle.

Von unschätzbarem Wert war die Hilfe, die ich durch DR. WOLFRAM KITTLER erfahren habe. Wenn er mir nicht mit seiner Tatkraft im Labor zur Seite gestanden hätte, wäre diese Arbeit um so manche Messung ärmer ausgefallen. Zudem brachte er mir mit seinen unübertroffenen Modellen von Gartenzwerge und S-21-Gegnern die Welt der Schwerfermionsysteme und Quantenphasenübergänge auf bunte Art und Weise nahe.

Eine große Hilfe im Labor war mir auch DR. MICHAEL MARZ, der maßgeblich an der Wiederinbetriebnahme des Toploaders beteiligt war.

Ich danke DR. CHIEN-LUNG HUANG für die schöne gemeinsame Zeit im Labor und die Diskussionen, die sich um Physik aber auch um Sprache und Kultur oder Agatha Christie drehten.

SASKIA MEISSNER und ARNOLD SEILER danke ich für die Hilfe bei Messungen im „Mammutkryostaten“. Außerdem waren sie immer eine gute Anlaufstelle, wenn es um die kleinen und größeren Probleme ging, die im Labor so auftreten können – ganz gleich, ob ich Kupferdraht oder ein neues Erdungskonzept brauchte, konnte ich immer auf Hilfe aus der AG Weiß zählen.

---

Meinem Sangerkollegen, dem Herrn Akademischen Direktor DR. CHRISTOPH SURGERS, danke ich fur die stets kompetente Unterstutzung bei experimentellen Dingen wie auch fur die guten Tipps bei der Literaturrecherche.

Fur nutzliche Ideen und anregende Diskussionen sowie Orientierungshilfe im Probandenschungel danke ich DR. KAI GRUBE.

Den Kollegen aus Dresden DR. OLIVER STOCKERT, DR. ZITA HUSGES, SARAH WOITSCHACH und STEFAN LUCAS danke ich fur die gute Zusammenarbeit, die nette Atmosphare bei unseren Workshops und naturlich fur schon orientierte Proben.

Fur die ebenfalls fruchtbare Zusammenarbeit, gute Gesellschaft auf CePdAl-Workshops und fur die Messung der spezifischen Warme in Augsburg danke ich DR. AKITO SAKAI und PROF. DR. PHILIPP GEGENWART aus Augsburg.

Der AG ENSS aus Heidelberg danke ich fur das Thermometer, das ich als Dauerleihgabe bekam.

Dem Team der WERKSTATT um Herrn MICHAEL MEYER und Herrn BERNHARD ZINK danke ich fur die Hilfe mit allem, was Mechanik betraf – ganz gleich, ob es sich um eine Senkkopfschraube, einen selbstdichtenden Schaftbolzen oder irgendeine Spezialanfertigung handelte.

Ebenso unentbehrlich war die Hilfe von ROLAND JEHLE und ULRICH OPFER aus der elektronischen Werkstatt, ohne die ich wohl am Probenstab des Toploaders verzweifelt ware. Danke!

HANS-WILLI PENSL danke ich fur unzahlige Kannen flussigen Heliums, die netten Gesprache, die Rezepte und die Hilfe mit vielen, vielen Kleinigkeiten.

Mein Dank geht auch an LARS BEHRENS fur seine Arbeit als fleiiger Computer-Administrator. Ich bitte um Nachsicht, dass ich jedes Jahr wieder den SysAdmin-Day vergessen habe.

Frau STEFFI BAATZ, Frau ILONA BROSCH und Frau BIRGIT SCHELSKE danke ich fur die Hilfe mit allen Formularen, die einen armen Doktoranden verwirren konnen.

Danke auch an Frau KORNELIA HUGLE fur die Versorgung mit mehr oder minder garstigen Losungsmitteln.

Herrn ORHAN AYDIN danke ich fur Gummihandschuhe.

---

Für die gute Unterhaltung in der Mensa oder bei Heißgetränk und Kuchen und den bisweilen nötigen Zuspruch danke ich DR. GERDA FISCHER, PROF. DR. BERND PILAWA, PROF. DR. GERNOT GOLL, DR. REGINA HOFFMANN-VOGEL, DR. DIRK WAIBEL, DR. CARMEN PÉREZ LÉON, DR. TORBEN PEICHL und allen Bachelor-/Master-/Diplomstudenten, die über die Zeit hier waren.

Bei meinen Eltern, MARIA und DR. REINHARD HÖHN und meiner Schwester THERESA HAASE bedanke ich mich für die immerwährende moralische Unterstützung.

Meiner Frau CLAUDIA TAUBENHEIM danke ich dafür, dass sie mich zu Hause in jedweder Art unterstützt hat. Dank Deiner Hilfe konnte ich mich auf die Arbeit im Labor und am Schreibtisch konzentrieren.

Schließlich danke ich meiner Tochter MIRIAM TAUBENHEIM dafür, dass sie mich nach schlechten Tagen immer wieder aufzumuntern wusste.