

# **Der Metamagnetismus in $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$**

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
in Frankfurt am Main

von Dirk Wichert  
aus Hanau

Frankfurt am Main 2001

Vom Fachbereich Physik der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
als Dissertation angenommen.

Dekan : Prof. Dr. Dr. H.c. mult. W. Greiner

Erster Gutachter : PD Dr. G. Bruls  
Zweiter Gutachter: Prof. Dr. M. Lang

Datum der Disputation : 18. Juni 2002

für Simone Arlene

*für Mupfels,  
Schloko  
Porzelei,  
Düssos  
Mandolinen und  
Werge*

Inhaltsangabe	Seite
Einleitung	1
1. Elektronisch hochkorrelierte Systeme	2
1.1 Der Einionen-Kondoeffekt	2
1.2 Der Anderson-Gitter-Hamiltonian	4
1.3 Die Fermiflüssigkeitstheorie	5
1.4 Das Konkurrenzphänomen	6
2. Metamagnetismus	8
3. Elastische Größen	10
3.1 Elastische Konstanten	10
3.2 Das Poissonverhältnis und die Kompressibilität	16
3.3 Elastische Konstanten unter Druck	19
4. Die Elektron-Gitter-Kopplung	21
4.1 Der Grüneisenparameter	21
5. Magnetostriktion	25
6. Ultraschallaufbau	27
6.1 Das Messprinzip	27
6.2 Das Messverfahren der Puls-Echo-Methode	28
6.3 Bestimmung der absoluten Schallgeschwindigkeit	31
6.4 Die Probenpräparation	31
6.5 Magnetostruktionsaufbau	32
6.6 Der Suszeptibilitätsaufbau	44
6.7 Der Magnetisierungsaufbau	45
6.8 Kryogenik und Tieftemperaturequipment	46
7. Die Messzelle	47
7.1 Uniaxialer Druck	47
7.2 Die Idee	48
7.3 Die Konstruktion	48
8. $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ und seine physikalischen Eigenschaften	51
8.1 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$	51
8.2 Druckmessungen	60
8.2.1 Das Skalierungsverfahren	61
8.3 Dotierungen	65
8.4 Elastische Konstanten und diverse deduzierte Resultate	68
9. Skalierungsthese	70
10. Experimente	73
10.1 Magnetisierung, Suszeptibilität, Dilatation	73
10.2 Ergänzende Dilatationsmessungen und Ultraschallexperimente	87

11.	Die theoretischen Modelle und die Interpretation der eigenen Experimente	91
11.1	Das Ohkawa-Modell und dessen Erweiterung	91
11.2	Das Slave-boson-meanfield-Kalkül	93
11.2.1	Das Evans-Modell	93
11.2.2	Das Goltsev-Bruls-Modell	96
11.3	Interpretation	109
	Zusammenfassung	113
	Literaturverzeichnis	115
	Veröffentlichungen	123
	Danksagung	124
	Lebenslauf	125

## Einleitung

Elektronisch hochkorrelierte Systeme sind intermetallische Verbindungen auf Lanthanoid- oder Actinoidbasis. Die Physik dieser Substanzen ist komplex und wird geprägt durch das magnetische Verhalten des f-Elektronensystems. Der Tieftemperaturbereich eröffnet eine Vielfalt von Grundzuständen, in denen auch die Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus realisiert wird.

Die vorliegende Arbeit widmet sich nun vollständig einem Vertreter dieser Systeme, der Seltenen Erd-Verbindung  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Der paramagnetische Grundzustand, den  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  aufweist, ist eher unspektakulär. Doch beobachtet man im Magnetfeld ein Phänomen, das das eigentliche Interesse an dieser Substanz begründet – den Metamagnetismus, der sich in der Suszeptibilität in einem ausgeprägten Maximum manifestiert. Verknüpft ist dieses Maximum mit einer Magnetostriktion im Promillebereich, und es stellt sich einem die Frage nach der Natur dieses Phänomens, besonders, da eine nicht geringe Anzahl dieser elektronisch hochkorrelierten Systeme in einem externen Magnetfeld mehr oder minder analoges metamagnetisches Verhalten aufweist.

Da der Metamagnetismus von einer Volumendilatation begleitet wird, scheint es offensichtlich, die Involvierung des Gitterfreiheitsgrades zu untersuchen, und augenscheinlich ist ebenfalls die Anwendung von Druck ein geeigneter Parameter zur Klärung dieser Interaktion. Nun sind bereits Druckexperimente an  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  durchgeführt worden, doch keines dieser Experimente realisierte die Zwangsbedingung des konstanten Volumens.

Zu Beginn dieser Arbeit stand der Aufbau einer Messzelle mit der der elastische Freiheitsgrad unterdrückt werden sollte.

Die physikalischen Untersuchungen bedienten sich neben herkömmlichen Magnetisierungs-, Suszeptibilitäts- und Ultraschallmessungen einer am hiesigen Physikalischen Institut von G. Bruls neu entwickelten Magnetostruktionsmessmethode auf Grundlage der Ultraschallinterferometrie.

Die experimentellen Resultate werden durch ein abschließend vorgestelltes theoretisches Modell erläutert, das in Kooperation zwischen A.V. Goltsev vom Ioffe Physikalisch-Technischem-Institut in St.Petersburg und G. Bruls entwickelt wurde.

Die Gliederung der Arbeit besteht im Wesentlichen neben der Klärung einiger relevanter Begriffe und den Einführungen in die maßgeblichen Themenbereiche, wie

- der Physik der elektronisch hochkorrelierten Systeme – Kapitel 1,
- der Definition der elastischen Konstanten – Kapitel 3,
- der des Grüneisenparameters – Kapitel 4,
- der Magnetostriktion – Kapitel 5 und der zum Verständnis der eigenen Messungen beitragenden
- Skalierungsthese in Kapitel 9,

in einer Präsentation des

- Apparativen und der Messmethoden – Kapitel 6 und 7,
- in der Vorstellung der Substanz  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  an sich – Kapitel 8,
- den Experimenten in Kapitel 10
- und der Analyse inklusive dem theoretischen Modell in Kapitel 11.

# 1. Elektronisch hochkorrelierte Systeme

Einführend wird in diesem Kapitel die Theorie der elektronisch hochkorrelierten Systeme vorgestellt. Es handelt sich hierbei um intermetallische Verbindungen aus der dritten Nebengruppe des Periodensystem, auch Seltene Erden genannt, die sich aus der Lanthangruppe und ihrer höheren Homologen, der Actiniumreihe, bilden.

Die Lanthanoide und Actinoide sind daher so bemerkenswert, weil sie die Gesetzmäßigkeit des Periodensystems durchbrechen, die sich darin äußert, dass sich mit steigender Ordnungszahl eine Besetzung der äußersten Schale mit Elektronen oder der nächstfolgenden darunterliegenden vollzieht, wie bei den Hauptgruppen respektive Übergangselementen. In den Seltenen Erden vollzieht sich mit zunehmender Kernladungszahl eine Okkupierung einer kernnahen, magnetischen Schale. Bezüglich der Lanthanoide ist dies die 4f- im Falle der Actinoide die 5f-Schale.

Sie besitzen ungewöhnliche Tieftemperatureigenschaften, wofür hauptsächlich das f-Elektronensystem dieser Substanzen verantwortlich ist. So sind diese Verbindungen unter anderem dadurch aufgefallen, dass sie bei niedrigen Temperaturen Quasiteilchen mit schweren itineranten Massen ausbilden, einhergehend mit einer hohen Zustandsdichte am Fermiiveau.

## 1.1 Der Einionen-Kondoeffekt

Die magnetischen f-Momente verhalten sich bei hohen Temperaturen wie einzelne voneinander unabhängige Streuzentren, mit denen die Leitungselektronen wechselwirken. Die antiferromagnetische Natur dieser Streuprozesse ist begleitet von einem Spinflip, der im Rahmen des Kondoszenarios interpretiert werden kann. Das magnetische Moment wird als Folge dieses antiferromagnetischen Austausches, der eine Art Singulettzustand verkörpert, fast vollständig kompensiert. Man spricht vom Quenchen. Das Einsetzen der Kondospinflipstreuung wird durch die sogenannte Kondotemperatur  $T^*$ , auch Fluktuationstemperatur genannt, markiert. Durch die Resonanzstreuung kommt es zur Formierung eines flachen Quasiteilchenbandes enormer Zustandsdichte der Breite  $k_B T^*$ , der Abrikosov-Suhl-Resonanz. Theoretisch erfolgt die Beschreibung durch den Einionen-Anderson-Hamiltonian, siehe zum Beispiel [Hess93].

Die magnetischen f-Momente der Seltenen Erden sind instabil, da die antiferromagnetischen Wechselwirkungen durch reelle beziehungsweise virtuelle Ladungsfluktuationen, je nach Lage des f-Levels in Bezug auf die Fermienergie, das heißt einer Abwanderung der f-Elektronen in das Leitungsband und umgekehrt, begleitet werden. Somit bewirkt die Hybridisierung zwischen den Leitungsband- und den f-Elektronen eine Verbreiterung der anfangs scharfen f-Zustände. Die Lebensdauer dieser Singulettzustände spiegelt die Halbwertsbreite wider. Die Lage des f-Niveaus wird nun benutzt, um das Schwere-Fermionen-Verhalten vom Valenzfluktuationsverhalten bei elektronisch hochkorrelierten Systemen etwas abzugrenzen. Ein Maß für das verbreiterte f-Niveau stellt der Ausdruck  $v_f \Gamma = v_f \pi \rho_0 V^2$  dar, in dem  $\rho_0$  die Zustandsdichte der Leitungselektronen an der Fermikante,  $V$  deren Hybridisierungsstärke mit den f-Elektronen und  $v_f$  den Entartungsgrad des f-Zustandes darstellen.

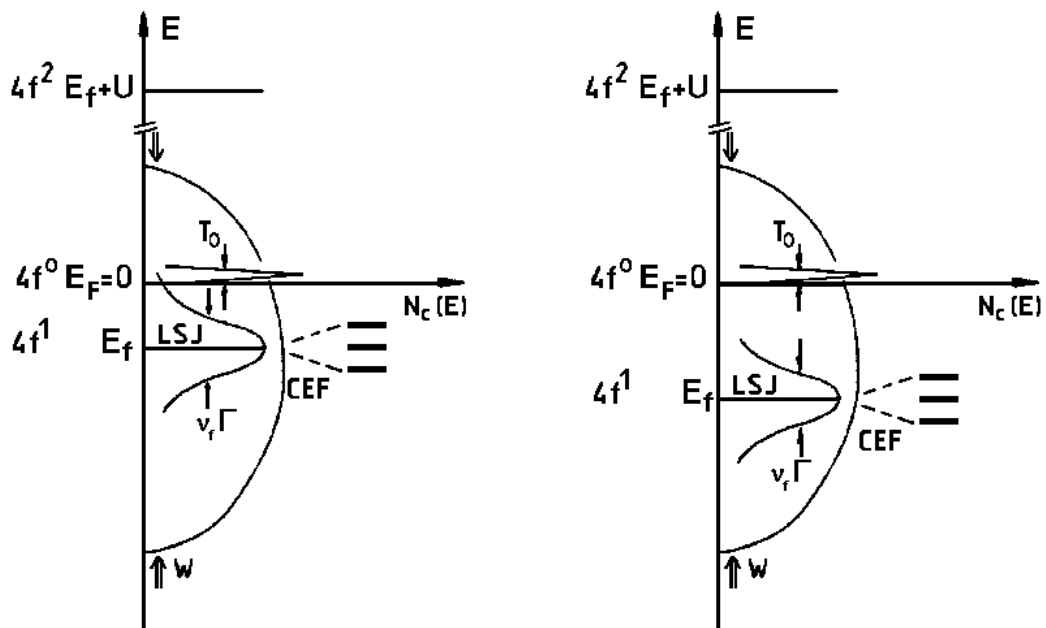


Abb.1.1: Darstellung des Energieschemas für elektronisch hochkorrelierte Systeme. Die Energien sind bezüglich der Fermikante angegeben. Kurz oberhalb von  $E_F$  liegt die Abrikosov-Suhl-Resonanz, die durch die Halbwertsbreite  $T_0$  charakterisiert ist. Sie entspricht in etwa der Kondotemperatur. Darunter die Zustandsdichte der  $f$ -Momente mit der Halbwertsbreite  $\eta G$ . Das Leitungselektronenband besitzt die Breite  $W$ . Die linke Abbildung mit dem energetisch höher liegenden  $f$ -Level kennzeichnet den valenzfluktuierenden Zustand, rechts ist hingegen das Schwere-Fermionen-Verhalten skizziert.

Betrachtet man die hochkorrelierten Systeme als eine Familie mit unterschiedlichen Erscheinungsformen, so kann man deren Verhalten vereinfacht anhand der Abbildungen 1.1a und 1.1b verdeutlichen. Befindet sich das verbreiterte  $f$ -Niveau in einer Lage bezüglich der Fermikante, ähnlich wie in Abbildung 1.1a zu ersehen, so wird das Verhalten der hochkorrelierten elektronischen Systeme bedingt durch den verhältnismäßig großen Überlapp des  $f$ -Niveaus mit dem Fermisee durch reelle Ladungsfluktuationen beschrieben. Hierdurch ist die Besetzungszahl  $n_f$  des  $f$ -Niveaus im zeitlichen Mittel nicht ganzzahlig. Dieses Verhalten wird als gemischt- oder zwischenvalenter Zustand bezeichnet. Die auftretenden reellen Ladungsfluktuationen versuchen den Kristallfeldeffekt zu unterdrücken. Nimmt der Abstand des  $f$ -Niveaus zur Fermikante zu und wird größer als die Halbwertsbreite des  $f$ -Niveaus, so wechselt der Charakter der Ladungsfluktuationen. Sie werden zunehmend virtuell. Die sich durch die Hybridisierung formierenden schweren Massen der Quasiteilchen sind in diesem Zustand im Allgemeinen größer als im zwischenvalenten Zustand, daher kennzeichnet man diesen Bereich als Schweren-Fermionen-Zustand. Allgemein werden die Substanzen in diesem Regime noch als Kondogitter bezeichnet.

Bei noch größerem Abstand des  $f$ -Niveaus zur Fermikante werden Ladungsfluktuationen aufgrund der verschwindenden Hybridisierung vernachlässigbar, die  $f$ -Momente werden stabil. Die Phänomene des Schweren Fermionen- sowie des zwischenvalenten Zustandes sind nicht eindeutig gegeneinander abgrenzbar, wie es vielleicht zunächst das eben simplifiziert gezeichnete Bild nahelegen mag, und bei eingehender Betrachtung zeigt sich, dass



hochkorrelierte Systeme bei einer Änderung des Zustandes von einem Verhalten mit stark geprägtem Schweren Fermionen Charakter in einen mit gemischtvalentem Verhalten sogar einen Phasenübergang 1.Ordnung zeigen können. So wurde dieser Fall jüngst sehr deutlich an der Substanz YbInCu<sub>4</sub> herausgearbeitet. Das „klassische“ gemischtvalente System zeigt bei T<sub>Ph</sub>=67K einen Phasenübergang 1.Ordnung der des öfteren in der Literatur durch das eigentlich unbefriedigende Kimball-Falicov-Modell beschrieben wurde [Falicov69]. In einem theoretischen Ansatz zurückgehend auf Goltsev und Bruls [Goltsev01] wurde das Verhalten oberhalb des Phasenübergangs durch inkohärente und unterhalb T<sub>Ph</sub> durch kohärente Streuung gedeutet, wobei simultan eine Valenzänderung an den f-Plätzen eintritt.

Eine direkte Trennung, das heißt Klassifizierung der Entfaltungsart, scheint schon aus der Tatsache nicht gegeben, dass die Kondotemperatur sowie die effektiven Massen bei einem stufenlosen Übergang von einem valenzfluktuierenden Regime in eine Kondogitterregion kontinuierlich ab- beziehungsweise zunehmen – siehe zum Beispiel Kapitel 8, äquivalent dem stetigen Niveaus $h$ ift des f-Levels weg von der Fermikante.

## 1.2 Der Anderson-Gitter-Hamiltonian

Das Modell des Einionen-Kondoeffektes zur Beschreibung des Schweren Fermionen Verhaltens, in denen die f-Elektronen unkorrelierte magnetische Streuzentren bilden, wird zu tiefen Temperaturen ineffizient. Es erfolgt nunmehr eine Betrachtung der f-Momente der Lanthanoide beziehungsweise Actinoide als regelmäßige Implementierung von Streuzentren in den „Wirt“, den intermetallischen Kristallverbund, die ein Quasiuntergitter, eben jenes vorab erwähnte Kondogitter, darstellen. In ihnen formieren sich neue Blochzustände dank eines einsetzenden kohärenten Streumechanismus. Es existiert somit eine weitere wichtige Temperaturskala, die Kohärenztemperatur T<sub>Koh</sub>, geprägt durch T<sub>Koh</sub> << T\*. Dieses Phänomen findet seine mathematische Formulierung im Anderson-Gitter-Hamiltonian (PAM - Periodic Anderson-Modell). Praktisch stellt dieses Modell eine Erweiterung des *single-ion*-Falles dar, das durch eine zusätzliche Summierung über die Gitterplätze der f-Orbitale erzielt wird. Das das periodische Anderson-Modell den Kondo-Hamiltonian  $H = -2J \underline{s}_c \cdot \underline{s}_f$  [Kondo64] inkorporiert, konnten Schrieffer und Wolff mit einer kanonischen Transformation zeigen [Schrieffer66].

Nur der Vollständigkeit halber sei hier der Anderson-Gitter-Hamiltonian [Fulde88] erwähnt, der den Kondo-Hamiltonian unter Berücksichtigung der Instabilität der f-Momente auf das Gitter überträgt:

$$H = H_f + H_c + H_{f,c}$$

$$H = \sum_{mi} \mathbf{e}_{im} f_m^+(i) f_m(i) + \frac{U_{ff}}{2} \sum_{i,m \neq m'} n_m^f(i) n_{m'}^f(i) + \sum_{\underline{k}ns} \mathbf{e}_n(\underline{k}) c_{\underline{k}ns}^+ c_{\underline{k}ns} \\ + \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{im\underline{k}ns} V_{ms}(\underline{k}, n) (c_{\underline{k}ns}^+ f_m(i) e^{-i\underline{k} \cdot \underline{R}_i} + \text{h.c.})$$

n: Bandindex, die Wellenzahlen  $\underline{k}$  entstammen somit der ersten Brillouinzone,

i: der Index i kennzeichnet den Gitterplatz der f-Elektronen,

$\underline{R}_i$ : ist deren Lage,

m: charakterisiert den Entartungsgrad; m=1...  $n_f$ ,

$f_m^+(i)$  bzw.  $f_m(i)$ : sind Erzeuger beziehungsweise Vernichter eines f-Elektrons der Entartung  $m$  am Gitterplatz  $i$ .

$c_{\underline{k}n\mathbf{s}}^+$  bzw.  $c_{\underline{k}n\mathbf{s}}$ : sind die Erzeuger und Vernichter der Leitungselektronen mit der Wellenzahl  $\underline{k}$  des  $n$ -ten Bandes mit dem Spin  $\mathbf{s}$ .

$U$ : benennt die Coulombabstoßung zwischen den f-Elektronen. Sie wird üblicherweise durch das Doppelbesetzungsverbot als unendlich definiert  $U_{ff} \rightarrow \infty$ .

Der Entartungsgrad  $n_f$  ist  $n_f \geq 2$  und sämtliche Energien sind bezüglich der Fermikante angegeben.

Der letzten Endes wichtigste Ausdruck ist der Hybridisierungsterm mit dem Parameter  $V_{m\mathbf{s}}(\underline{k}, n)$ . Er kennzeichnet die Stärke, die die Blochelektronen an das f-Elektronensystem koppelt. Der erste Term hierin beschreibt den Übergang eines f-Elektrons ins Leitungsband durch die Vernichtung eines f-Elektrons und die Erzeugung eines itineranten Ladungsträgers, wohingegen der zweite Term den umgekehrten Prozess darstellt. Die f-Zustände sind gebunden an die Spin-Bahn-Kopplung und den Kristallfeldeffekt. Das bewirkt, dass nicht nur die Energien der f-Zustände von diesen Kopplungen abhängen, sondern auch der Hybridisierungsterm, und im allgemeinen wird man eine  $\varphi$ - und  $\theta$ -Winkelabhängigkeit erhalten. In vielen Rechnungen wird jedoch ein isotropes Modell vorausgesetzt und das führt dazu, dass  $V_{m\mathbf{s}}(\underline{k}, n)$  als konstante Größe behandelt wird. Wie im Kapitel 11 anhand einiger ausgewählter Modelle diskutiert wird, kann es aber gerade von besonderer Relevanz sein, die Spin-Bahn-Wechselwirkung und die Kopplung an die Gittersymmetrie zu berücksichtigen und nicht wertvolle Informationen durch eine isotrope Kondowechselwirkung zu unterdrücken. Das Anderson-Modell inkorporiert eine variable, nicht notwendigerweise ganzzahlige f-Elektronenzahl, da die Elektronen des Lanthanoid- beziehungsweise Actinoidions an der Bildung der Fermifläche partizipieren. Der Hamiltonian ist zudem keineswegs beschränkt auf geringe Varianzen der Wertigkeit. Hirst hat gezeigt [Hirst74], dass die Coulombwechselwirkung der f(d)-Elektronen in der f(d)-Schale wichtig für die Beschreibung der Valenzfluktuation ist, und das Anderson-Modell behandelt die Wechselwirkung zwischen den f(d)-Elektronen in der f(d)-Schale mit den Leitungselektronen durch eine Hybridisierung. Somit involviert der Anderson-Hamiltonian das Hirst-Modell für Valenzfluktuationen. Das Kondogitter wird im Allgemeinen über den *meanfield-slave-boson*-Ansatz [Kapitel 11] dadurch beschrieben, dass man einen Valenzwechsel nicht berücksichtigt. Diese Näherung kann sich sicherlich als eine Einschränkung der Allgemeingültigkeit erweisen. Für die Formierung der hybridisierten Bänder ist dies jedoch nicht von Belang.

### 1.3 Die Fermiflüssigkeitstheorie

Die Existenz einer kohärenten Spinflipstreuung in Verbindung mit Quasiteilchen renormalisierter Massen bedingt die Frage nach den Wechselwirkungen dieses elektronischen Systems. Die direkten Interaktionen können durch eine Landau-Fermiflüssigkeitstheorie bei geeigneter Adaption der Landau-Parameter dargestellt werden. Das äußert sich in Analogie zur hohen Zustandsdichte des Quasiteilchenbandes der Abrikosov-Suhl-Resonanz [Abrikosov65] [Suhl65] in einer Modifikation der effektiven Massen der Ladungsträger:

$$m^* = \hbar \frac{k_F}{v_F}$$

mit der Fermigeschwindigkeit

$$v_F = \left. \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \epsilon}{\partial k} \right|_{k=k_F}.$$

Verflochten hiermit sind die spezifische Wärme und die Paulisuszeptibilität, die sich durch das Massenverhältnis, die Renormierung,

$$\frac{m^*}{m} = 1 + F$$

mittels der Ausdrücke

$$C = g^* T = \frac{m^*}{m} \cdot g^0 T = \frac{m^* k_F T}{3\hbar^2}$$

und

$$c_{\text{Pauli}} \approx m_B \frac{m^* k_F}{4p^2 \hbar^2} \frac{1}{1+G} = \frac{m^*}{m} \cdot \frac{1}{1+G} c_{\text{Pauli}}^0$$

schreiben lassen [Hess93].

Die Renormierung verknüpft die physikalischen Größen mit den entsprechenden Werten  $c_{\text{Pauli}}^0$  und  $g^0$  des Fermigases. Die Parameter F und G, die spinunabhängigen beziehungsweise spinabhängigen Wechselwirkungskoeffizienten der Legendre-Polynome in der Landauschen Fermiflüssigkeitstheorie sind von der Größenordnung  $10^2$ - $10^3$  beziehungsweise 1. Als weiteres Indiz für das Vorhandensein eines Fermiflüssigkeitszustandes wird der quadratische Widerstandsabfall unterhalb der Kohärenztemperatur angesehen:

$$r = r_0 + AT^2.$$

Er erklärt sich theoretisch aus einer Quasiteilchen-Quasiteilchen-Streuung [Pines66].

Der zweite indirekte Wechselwirkungsmechanismus wird durch die Phononenstreuung bestimmt. Wie im Kapitel [4] gezeigt wird, existiert eine starke Abhängigkeit der Fluktuationstemperatur  $T^*$  von Volumendeformationen oder Spannungen bedingt durch äußeren oder inneren Druck, wodurch der Begriff des Grüneisenparameters Relevanz erfährt. Er sorgt für eine quantitative Aufspaltung zwischen adiabatischen und isothermen elastischen Konstanten, die, im Unterschied zu herkömmlichen Metallen, bei diesem korrelierten Vielteilchenzustand eine neue Beachtung erfährt.

Die durch die Kondowechselwirkung bedingte Reduktion des magnetischen Momentes aufgrund des singulettartigen Zustandes erfolgt beim Einionen-Kondoeffekt durch genau ein Leitungselektron. Hingegen zeigen Rechnungen von Millis und Lee [Millis87], dass beim Kondogitter die Abschirmung durch den Bruchteil eines Elektrons erklärt werden kann, der durch das Hybridisierungsgap  $2G$  und die Bandbreite  $W$  des Leitungsbandes ausgedrückt wird  $G/W \ll 1$ .

## 1.4 Das Konkurrenzphänomen

Das ein Großteil der elektronisch hochkorrelierten Systeme einen magnetischen Grundzustand aufweist, wenn auch mit sehr schwachem effektiven magnetischen Moment pro f-Elektron, liegt in einem Konkurrenzphänomen begründet, nämlich dem einander entgegenwirkenden Verhalten der Kondosingulettformierung und dem der Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung (RKKY-WW) [Doniach77]. Verantwortlich hierfür ist das Austauschintegral  $J$ . Beschreibt es einerseits die magnetische Streuung der Leitungselektronen an den magnetischen Störzentren, die *intrasite*-Effekte auch *singlesite*-Effekte genannt, so ist es doch andererseits dieselbe Kopplungskonstante, die die lokalen

magnetischen Momente via RKKY-WW, den *intersite*-Effekten, versucht (antiferro-) magnetisch zu ordnen. Ein Energieschema der Wechselwirkungen ist in Abbildung 1.2 dargestellt. Die Energieabsenkung des Kondogrundzustandes skaliert mit

$$E_{\text{Kondo}} \propto \frac{1}{r_0} \cdot \exp\left(-\frac{1}{r_0 J}\right)$$

und die der spinpolarisierten Zustände aufgrund der RKKY-WW mit

$$E_{\text{RKKY}} \propto r_0 J^2.$$

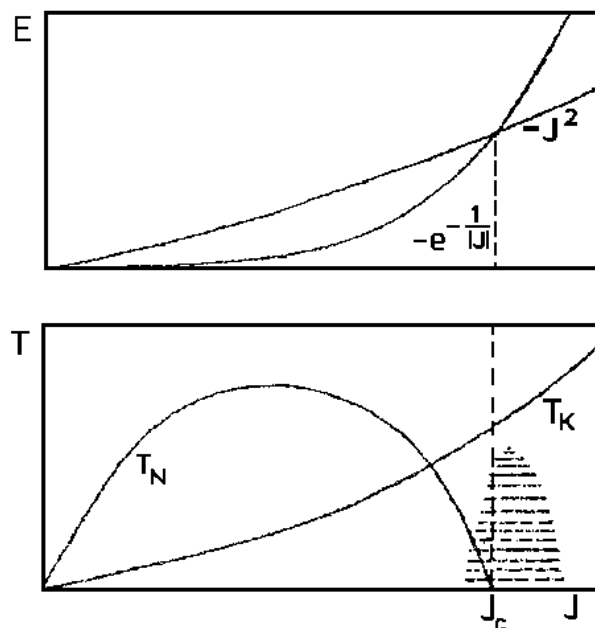


Abb.1.2: Im oberen Diagramm sind entsprechend dem Doniach-Modell die Energien aufgetragen und im unteren die durch sie bestimmten Übergangstemperaturen. Um  $J_c$  werden zweierlei Effekte diskutiert. Zum einen soll sich das Nichtfermi-flüssigkeitsverhalten bei  $J_c$  manifestieren und zum anderen wird das Schwere-Fermionen-Verhalten in dem schraffierten Gebiet von dem sogenannten Kondovolumenkollaps begleitet, bei dem das System das Kondoregime stabilisiert durch eine Verringerung seines Volumens.

Ob die magnetischen Korrelationen langreichweitig sind oder nicht, parametrisiert sich demnach durch die Größe der Austauschkonstanten. Je kleiner diese ist, um so stärker tendiert das System zu einer langreichweitigen Ordnung. Für den umgekehrten Fall verhindern die Fluktuationen des Spins verursacht durch die Kondostreuung diese magnetische Ordnung. Jedoch kann man magnetisch geordnete Kondosysteme mit reduzierten Momenten in dem Falle beobachten, in dem die Energien beider Prozesse von vergleichbarer Größe sind. Abweichendes Verhalten von einer Fermiflüssigkeit tritt bei dem kritischen Wert  $J_c$  auf, und man charakterisiert derartige Substanzen als Nichtfermi-flüssigkeiten [v.Löhneysen95].

## 2. Metamagnetismus

Es folgt eine kurze Begriffserklärung sowie eine Auflistung einiger Kondosysteme, die sich hierunter einklassifizieren.

Diese Arbeit beschränkt sich ausschließlich auf die Darstellung und Erörterung eines magnetischen Phänomens, das bei den elektronisch hochkorrelierten Systemen in einer Vielzahl der Substanzen auftritt und wird stellvertretend an der intermetallischen  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Verbindung untersucht. Der Begriff des Metamagnetismus definiert ein Maximum in der Suszeptibilität bei einem kritischen Feld  $B_{\text{kr}}$  und ist somit verknüpft mit einem Wendepunkt in der Magnetisierung. Der Urheber dieser Namensschöpfung ist nicht mehr genau zu benennen. Einerseits scheinen Becquerel und von den Handel zirka Mitte des 19. Jahrhunderts den Begriff geprägt zu haben, als sie bei Experimenten auf ein ihnen unverständliches magnetisches Verhalten stießen, andererseits wird in Referenzen der Name des Physikers Kramers zitiert. Zu betonen ist, dass die Bezeichnung **metamagnetisch** auf jede Klasse von Magnetisierungskurven angewendet wird, die eben besagten Wendepunkt in  $M(B)$  besitzt, wobei nicht zwingend ein Phasenübergang vorliegen muss. So ordnet sich hier der Ummagnetisierungsprozess der antiferromagnetisch ordnenden Substanzen, der klassischen Néel-Antiferromagneten mit starker magnetokristalliner Anisotropie ( $H$  parallel zur leichten Magnetisierungsrichtung) [Hellwege88] genauso ein, wie auch der Phasenübergang 1. Ordnung eines itineranten paramagnetischen Systems in den ferromagnetischen Zustand [Wohlfarth62] [Yamada91] [Yamada92], wie in einigen intermetallischen Cobaltverbindungen beobachtet, der durch ferromagnetische Spinfluktuationen gesteuert wird. Ohne Anspruch auf Vollständigkeit sind nachfolgend ein paar Kondogitter mit metamagnetischem Verhalten aufgelistet.

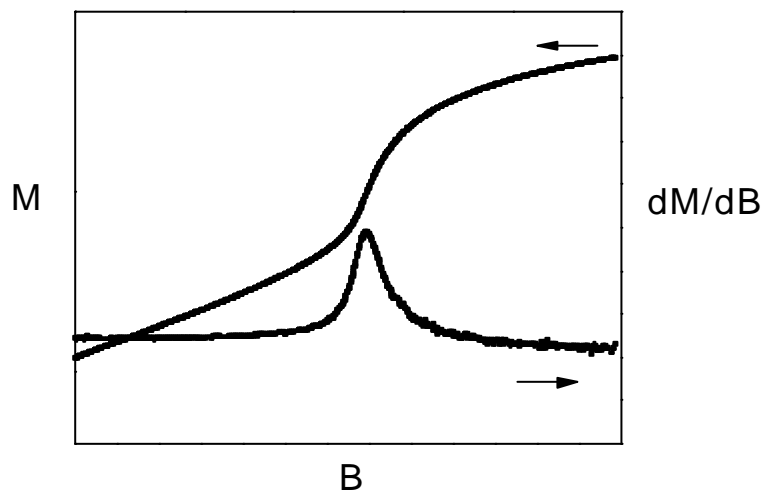


Abb.2.1: Schematischer Verlauf der Magnetisierung und der Suszeptibilität bei einem metamagnetischen Übergang.

	$B_M$ [T]	Orientierung	Referenz
$CeRu_2Si_2$	7.7	B  c	[Haen87]
$CeNi_2Ge_2$	43	(polykristallin)	[Fukuhara96]
$CeCu_6$	1.7	B  c	[Goto88]
$UCoAl$	1	B  c	[Sechovsky86]
$URu_2Si_2$	36-40	B  c	[deBoer86]
$UPt_3$	20	$B \perp c$	[Bruls90]
$UPd_2Al_2$	18	$B \perp c$	[Oda94]
$Y_{1-x}U_xCu_2Si_2$	3.5	(polykristallin)	[Lenkewitz96]
$CeAl_2$	6	B  c	[Fawcett91]

*Tabelle 2.1: Aufstellung einiger hochkorrelierter Elektronensysteme mit metamagnetischem Verhalten. Es wurde jeweils nur eine Referenz angegeben, obwohl einzelne Substanzen von mehreren Forschergruppen untersucht wurden. Zudem ist keine Priorität auf die Bedeutung oder Erstveröffentlichung gelegt worden.*

Ein kurzer Abriss über einige Modelle, die das magnetische Verhalten des in dieser Arbeit vorgestellten Systems  $CeRu_2Si_2$  erläutern sollen, wird in Kapitel [11] gegeben.

### 3. Elastische Größen

Dieses Kapitel soll vertraut machen mit den elastischen Konstanten beziehungsweise mit den über sie definierten reinen Moden in der Schallpropagation. Abschließend behandelt es die unter Druck an Bedeutung gewinnenden Größen des Poissonverhältnisses und des Kompressionsmoduls.

#### 3.1 Elastische Konstanten

Ein mächtiges Instrument zur Bestimmung und Analyse des Volumenverhaltens unterschiedlichster Materialien stellt der Ultraschall dar, beziehungsweise die durch ihn definierten elastischen Konstanten. Viele physikalische Größen koppeln mehr oder minder an die elastische Verschiebung, und durch Symmetriebetrachtungen können im Zweifelsfalle Modelle ihre Gültigkeit verlieren oder favorisiert werden. Das Problem der Elastizitäts- oder Gittertheorie besteht in seiner Komplexität, das heißt, im Normalfall hat man es mit einem Ion-Ion-Wechselwirkungspotential zu tun, das nicht quadratischer Natur ist. Die höheren Potenzen lassen eine einfache Handhabung physikalischer Probleme aber meistens nicht zu. Im Allgemeinen entwickelt man daher das Gitterpotential in eine Taylorreihe und bricht die Entwicklung nach dem Glied ab, der für die Lösung des Problems keine Relevanz mehr zu haben scheint [Leibfried55]:

$$V = V_0 + \sum_{\substack{a \\ e \\ x}} \frac{\partial V}{\partial u_{aex}} u_{aex} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{aa' \\ ee' \\ xx'}} \frac{\partial^2 V}{\partial u_{aex} \partial u_{a'e'x'}} u_{aex} u_{a'e'x'} + \\ \frac{1}{6} \sum_{\substack{aa'a'' \\ ee'e'' \\ xx'x''}} \frac{\partial^3 V}{\partial u_{aex} \partial u_{a'e'x'} \partial u_{a''e''x''}} u_{aex} u_{a'e'x'} u_{a''e''x''} + \dots$$

a: a-te Basisatom

e: e-te Wigner-Seitz-Zelle

x: kartesische Koordinate

u: Auslenkungen

Für die Differentialterme der Taylorreihe etablierte sich in einigen Publikationen der Begriff

der Kraftkonstanten. Der Term  $\frac{\partial^2 V}{\partial u_{aex} \partial u_{a'e'x'}}$  u realisiert dabei die Kraft auf das a-te Basisatom

in der e-ten Zelle in Richtung x, wenn das a'-te Basisatom in der e'-ten Zelle in Richtung x' um u verschoben wird. Die Verknüpfung zwischen der Gittertheorie und der Elastizitätstheorie geschieht durch die Abbildung mit der sogenannten *Born-Huang*-Beziehung, die die Kraftkonstanten in die elastischen Konstanten transformiert, aber nur für den Fall des spannungsfreien Ausgangszustandes [Ludwig78]. Die Nichtberücksichtigung höherer Potenzen als zwei, das heißt, das Arbeiten in der harmonischen Näherung, ist zwar maßgebend für die Herleitung des physikalischen Themengebietes der Elastizitätstheorie, zeigt aber doch eklatante Schwächen; denn die Berücksichtigung der Kraftkonstanten höherer Ordnung als zwei führt auf eine Verzerrungsabhängigkeit der elastischen Konstanten, das heißt, die in dieser Arbeit untersuchte Änderung der elastischen Konstante, verursacht durch die Magnetostriktion, ist ein anharmonischer Effekt, der durch eine harmonische Approximation behandelt wird.

Andererseits besitzen die elastischen Konstanten die Eigenschaft aus einem thermodynamischen Potential ableitbar zu sein, und man kann ohne tiefere Kenntnis der mikroskopischen Eigenschaften, allein aufgrund des strengen allgemeingültigen Aufbaus der Thermodynamik wissenschaftlich exakte Aussagen herleiten.

Ultraschallmessungen in der Grundlagenforschung werden in den physikalischen Journalen selten veröffentlicht. Es scheint sich um eine Untersuchungsmethode abseits gängiger Verfahren zur Klärung physikalischer Probleme zu handeln. Daher und auch aufgrund der Tatsache, dass populäre Lehrbücher der Physik in ihren Neuauflagen des öfteren das Kapitel der Elastizitätstheorie aussparen, soll hier ein einführender Abriss in das Gebiet der elastischen Konstanten gegeben werden – siehe zum Beispiel [Nye60] [Bhatia86] [Love44].

Betrachtet man einen Punkt eines Kontinuums und lässt eine Verzerrung auf ihn einwirken, so wird er seine Lage innerhalb dieses Kontinuums ändern. Die neue Position  $\underline{r}'$  resultiert nun aus der alten Position  $\underline{r}$  und einer Verzerrung, die üblicherweise durch eine ortsabhängige Funktion  $\underline{u}(\underline{r})$ , dem sogenannten Verschiebungsfeld, dargestellt wird:

$$\underline{r}' = \underline{r} + \underline{u}(\underline{r}).$$

Dieses Verschiebungsfeld ist naturgemäß differenzierbar nach  $r$ , sodass gilt:

$$\underline{u}(\underline{r}) = \frac{\partial \underline{u}(\underline{r})}{\partial r} d\underline{r} = \underline{v} d\underline{r},$$

mit den dimensionslosen tensoriellen Größen

$$v_{ij} = \frac{\partial u_{ij}}{\partial r_j} \quad i, j \in \{x, y, z\}.$$

Eine beliebige Deformation resultiert in einem symmetrischen und einem antisymmetrischen Anteil des Verschiebungstensors entsprechend

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2}(v_{ij} + v_{ji}) \quad \text{und} \quad \omega_{ij} = \frac{1}{2}(v_{ij} - v_{ji}).$$

Diese beiden Ausdrücke können durch eine Pseudovektordarstellung, der *Voigtschen* Notation [Voigt66], mittels neun voneinander unabhängiger Komponenten in drei Blöcke gegliedert werden, in denen der erste, der isosymmetrische Anteil, die

Dehnungen

$$\begin{aligned} \varepsilon_1 &= v_{xx} \\ \varepsilon_2 &= v_{yy} \\ \varepsilon_3 &= v_{zz}, \end{aligned}$$

der zweite symmetrische Anteil, die

Scherungen

$$\begin{aligned} \varepsilon_4 &= \frac{1}{2}(v_{yz} + v_{zy}) \\ \varepsilon_5 &= \frac{1}{2}(v_{zx} + v_{xz}) \\ \varepsilon_6 &= \frac{1}{2}(v_{xy} + v_{yx}) \end{aligned}$$

und der dritte, der antisymmetrische Anteil, die



Drehungen

$$\varepsilon_7 = \frac{1}{2}(v_{yz} - v_{zy})$$

$$\varepsilon_8 = \frac{1}{2}(v_{zx} - v_{xz})$$

$$\varepsilon_9 = \frac{1}{2}(v_{xy} - v_{yx})$$

beschreibt.

Verursacht werden diese Verzerrungen durch Kräfte  $\underline{K}$ , die an der Oberfläche  $\underline{A}$  eines Körpers angreifen. Die hierdurch bedingten Spannungen

$$\sigma_{ij} = \frac{\partial K_i}{\partial A_j},$$

skizziert in Abbildung 3.1, zerfallen analog zur Verzerrung in als Spannung und Rotation benannte Anteile, die ebenfalls durch *Voigt*-Notation eine übersichtliche Gliederung erfahren. Der isosymmetrische Beitrag definiert den

Zug (positives Vorzeichen) beziehungsweise Druck (negatives Vorzeichen)

$$\sigma_1 = \sigma_{xx}$$

$$\sigma_2 = \sigma_{yy}$$

$$\sigma_3 = \sigma_{zz},$$

die symmetrische Spannung den

Schub ohne Drehmoment

$$\sigma_4 = \frac{1}{2}(\sigma_{yz} + \sigma_{zy})$$

$$\sigma_5 = \frac{1}{2}(\sigma_{zx} + \sigma_{xz})$$

$$\sigma_6 = \frac{1}{2}(\sigma_{xy} + \sigma_{yx})$$

und die antisymmetrischen Rotationsanteile den

Schub mit Drehmoment

$$\sigma_7 = \frac{1}{2}(\sigma_{yz} - \sigma_{zy})$$

$$\sigma_8 = \frac{1}{2}(\sigma_{zx} - \sigma_{xz})$$

$$\sigma_9 = \frac{1}{2}(\sigma_{xy} - \sigma_{yx}).$$

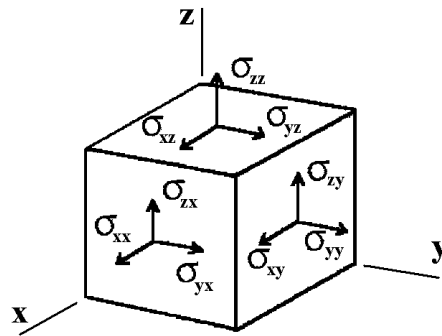


Abb.3.1: Die Orientierung der Spannungskomponenten.

Der Zusammenhang zwischen Spannung und Verzerrung liefert unter Zugrundelegung des Hookschen Gesetzes die Gleichung

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{c}} \underline{\underline{v}}$$

oder unter Verwendung der dimensionsverringenden Voigt-Notation

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{c}} \underline{\underline{\varepsilon}} \quad \Leftrightarrow \quad \sigma_i = \sum_k c_{ik} \varepsilon_k$$

Die Proportionalitätsfaktoren definiert man nun als Elastizitätsmoduli. Im statischen Gleichgewicht, wie es bei in hiesiger Arbeit durchgeführten Experimenten entspricht, verschwinden die Drehmomente und Rotationsanteile, somit besteht die Matrix aus 36 Elementen, die zudem noch für eine stetig differenzierbare Energiedichte, ein Maß für die gespeicherte Verformungsarbeit, ähnlich dem Hookschen Gesetz,

$$W_{el} = \frac{1}{2} \sum_{ij} c_{ij} \varepsilon_i \varepsilon_j \quad \text{mit} \quad \frac{\partial^2 W}{\partial \varepsilon_i \partial \varepsilon_j} = \frac{\partial^2 W}{\partial \varepsilon_j \partial \varepsilon_i} = \frac{1}{2} (c_{ij} + c_{ji})$$

symmetrisch ist. Eine weitere Vereinfachung gewinnt man durch eine Symmetriebetrachtung. Die Anzahl der voneinander unabhängigen elastischen Moduli ist abhängig von dem zugrundeliegenden Bravaisgitter, und dieses wird durch eine Punktsymmetriegruppe klassifiziert. Für die Symmetrieklassen mit der höchsten Entartung, dem auch das kubische Gitter zugeordnet ist, erzielt man somit eine Reduzierung der unabhängigen elastischen Konstanten auf eine Anzahl von 3. Für tetragonale Gitter spaltet die Anzahl der unabhängigen Elastizitätsmoduli bezüglich der Punktgruppe noch einmal auf. So existieren für die Punktgruppen  $C_4$ ,  $C_{4h}$  und  $S_4$  deren 7 und für die Punktgruppen  $C_{4v}$ ,  $D_4$ ,  $D_{4h}$  und  $D_{2d}$  6 unabhängige elastische Konstanten. Die Relationen zwischen den einzelnen Komponenten der Matrix sind anschließend aufgeführt:

## Tetragonale Symmetrie

Punktgruppe  $C_4$ ,  $C_{4h}$  und  $S_4$

$$\begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & & & c_{16} \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & & & -c_{16} \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & & & \\ & & & c_{44} & & \\ & & & & c_{44} & \\ c_{16} & -c_{16} & & & & c_{66} \end{pmatrix}$$

Punktgruppe  $C_{4v}$ ,  $D_4$ ,  $D_{4h}$  und  $D_{2d}$

$$\begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & & & \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & & & \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & & & \\ & & & c_{44} & & \\ & & & & c_{44} & \\ & & & & & c_{66} \end{pmatrix}$$

Die nicht aufgeführten Komponenten sind identisch null. In dieser Arbeit erfolgt ausschließlich der Umgang mit der  $D_{4h}$ -Symmetrie und demzufolge eine Beschränkung auf die 6 voneinander unabhängigen elastischen Konstanten. Der Versuch einer Bestimmung elastischer Konstanten mittels dynamischer Messmethode führt bei einem theoretischen Ansatz über eine zeitabhängige Wellengleichung der Form

$$\rho \frac{\partial^2 \underline{u}_i}{\partial t^2} = \sum_j \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial r_j}$$

$\rho$ : konstante Dichte

$\underline{u}$ : Teilchenauslenkungsvektor,

die unter Einbeziehung des Hookschen Linearitätsgesetzes geschrieben werden kann als:

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \sum_{jkl} c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial r_j \partial r_k}$$

Diese Identität gilt nur für den dämpfungsfreien Fall. Folglich rechtfertigt sich der Lösungsansatz der ebenen Welle

$$\underline{u} = \underline{u}_0 e^{i(\omega t + \underline{k} \cdot \underline{r})}$$

mit dem daraus resultierenden Ergebnis

$$\rho v^2 u_{0i} = \sum_{kl} c_{ijkl} u_{0j} n_k n_l$$

Hierbei sind  $v$  die Phasengeschwindigkeit und  $\underline{k} = \left(\frac{\omega}{v}\right)\underline{n}$  mit  $|\underline{n}|=1$ . Bei Schallfrequenzen unterhalb 1GHz sind Phasen- und Gruppengeschwindigkeit in etwa gleich, und die lineare Dispersionsrelation liefert

$$v_{\text{Gruppe}} = \frac{\partial \omega}{\partial k} \approx v_{\text{Phase}} = \frac{\omega}{k} = \sqrt{\frac{c_{\text{eff}}}{\rho}}.$$

$c_{\text{eff}}$  ist eine gewichtete elastische Konstante.

Die Lösung gliedert sich für jede Ausbreitungsrichtung in 3 Schallwellen mit zueinander senkrechter Polarisation. Je 2 sind Transversalmoden und die verbleibende ist eine Longitudinalmode. Experimentell interessant ist der Fall reiner Moden. Das sind Moden, die sich entlang einer Symmetrieachse im Kristall ausbreiten. Das tetragonale  $D_{4h}$ -System besitzt hiervon 9, die nachstehend aufgelistet und zum besseren Verständnis noch einmal in der Abbildung 3.2 veranschaulicht sind.

Propagation	Lösung	Auslenkung
<u><math>\underline{k}</math></u>   [100]		
longitudinal	$\rho v_1^2 = c_{11}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [100]$
transversal	$\rho v_{t1}^2 = c_{66}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [010]$
transversal	$\rho v_{t2}^2 = c_{44}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [001]$
<u><math>\underline{k}</math></u>   [001]		
longitudinal	$\rho v_1^2 = c_{33}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [001]$
transversal	$\rho v_{t1}^2 = c_{44}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [010]$
transversal	$\rho v_{t2}^2 = c_{44}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [100]$
<u><math>\underline{k}</math></u>   [110]		
longitudinal	$\rho v_1^2 = 1/2(c_{11} + c_{12} + 2c_{66})$	$\mathbf{u}_0 \parallel [110]$
transversal	$\rho v_{t1}^2 = 1/2(c_{11} - c_{12})$	$\mathbf{u}_0 \parallel [1\bar{1}0]$
transversal	$\rho v_{t2}^2 = c_{44}$	$\mathbf{u}_0 \parallel [001]$

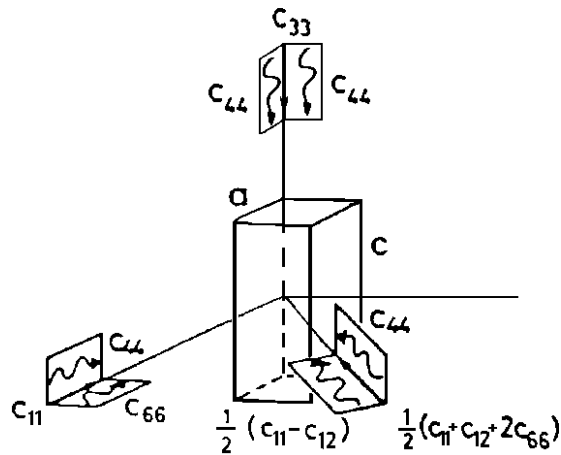


Abb.3.2: Die reinen Moden für die  $D_{4h}$ -Symmetrie.

### 3.2 Das Poissonverhältnis und die Kompressibilität

Für Druckmessungen und im Besonderen für uniaxiale Drücke an kristallinen Proben ist die Längen- beziehungsweise Volumenänderung von speziellem Interesse. Dieses Verhalten wird durch das Poissonratio und die Kompressibilität oder ihrer inversen Größe dem Kompressionsmodul beschrieben. Die Poissonzahl ist definiert als das Verhältnis der relativen Querkontraktion zur relativen Längenänderung

$$\nu = -\frac{\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\parallel}} \text{ mit } \epsilon_{\perp} \perp \underline{P} \text{ bzw. } \epsilon_{\parallel} \parallel \underline{P}$$

und sagt aus, dass sich bei negativer Poissonzahl, wenn man zum Beispiel auf zwei gegenüberliegende Seiten eines Quaders drückt, die Flächen mit ihren Flächennormalen senkrecht zur Druckrichtung einander annähern. Solche Poissonverhältnisse werden aufgrund ihrer Seltenheit in der Materialwissenschaft auch als anormal bezeichnet. Die in Kapitel 1 vorgestellten elektronisch hochkorrelierten Systeme mit Valenzfluktuationscharakter sind typische Vertreter anormaler Poissonverhältnisse [Lüthi85]. Eine Erklärung hierfür wird in Kapitel 11 gegeben. Die Menge der Poissonzahlen für eine gegebene Kristallsymmetrie variiert. Für den kubischen Kristall existiert nur eine Poissonzahl, hingegen besitzen alle Klassen der tetragonalen Symmetriegruppe 3 Poissonzahlen und die der orthorhombischen Kristalle 6. Der Kompressionsmodul ist im isotropen Fall definiert als

$$K = -\frac{V}{\Delta V} P \text{ oder in differentieller Schreibweise als } K = -V \left. \frac{\partial P}{\partial V} \right|_T$$

und gibt die relative Volumenänderung unter hydrostatischem Druck an. Er wird in der Elastizitätstheorie auch oft mit dem englischen Namen *Bulkmodul* bezeichnet und mit der Variable  $c_B$  belegt. Mit der Summe  $\epsilon_v = \sum_{i=1,2,3} \epsilon_i$ , lässt sich der Ausdruck abändern in  $\kappa = 1/K = -\epsilon_v / P$ , der Kompressibilität  $\kappa$  in Abhängigkeit der Dehnungen. Für nichtkubische Kristalle muss der Anisotropie entsprechend Rechnung getragen werden. Des Weiteren definiert man sogenannte lineare Kompressibilitäten für uniaxiale Drücke. Wie im Einzelnen die (lineare) Kompressibilität und das Poissonverhältnis mit den elastischen Konstanten verwoben sind, ist in den folgenden Zeilen für die tetragonale  $D_{4h}$ -Punktgruppe ausgeführt.

Präsentiert werden hier zwei Fälle: Der des uniaxialen Druckes entlang der tetragonalen Hauptachse ( z-Achse ) und der des hydrostatischen Druckes. Die Rechnungen wurden unter Zuhilfenahme des Programmes Mathematica® von Wolfram Research durchgeführt. Erinnerung man sich an die Definitionsgleichung der Elastizitätsmoduli

$$\sigma_i = \sum_{j=1}^6 c_{ij} \varepsilon_j$$

so sei erwähnt, das die inverse Abbildung

$$\varepsilon_i = \sum_{j=1}^6 s_{ij} \sigma_j$$

die sogenannten elastischen Konstanten deklariert. Im Allgemeinen wird zwischen beiden Größen, den elastischen Konstanten und den Elastizitätsmoduli, im Sprachgebrauch nicht mehr unterschieden, und beide Begriffe synonym füreinander verwendet. Die Matrix der Elastizitätsmoduli wird repräsentiert durch

$$\begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & & & \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & & & \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & & & \\ & & & c_{44} & & \\ & & & & c_{44} & \\ & & & & & c_{66} \end{pmatrix},$$

deren inverse Darstellung eine etwas unübersichtlichere Form annimmt:

$$\begin{pmatrix} \frac{c_{13}^2 - c_{11}c_{33}}{(c_{11} - c_{12})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} & \frac{c_{13}^2 - c_{12}c_{33}}{(-c_{11} + c_{12})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} & -\frac{c_{13}}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{c_{13}^2 - c_{12}c_{33}}{(-c_{11} + c_{12})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} & \frac{c_{13}^2 - c_{11}c_{33}}{(c_{11} - c_{12})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} & -\frac{c_{13}}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{c_{13}}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} & -\frac{c_{13}}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} & \frac{c_{11} + c_{12}}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} \end{pmatrix}$$

Uniaxialer Druck  $\underline{P}$  entlang  $z$  bedeutet, dass sich der Spannungsvektor in Voigt-Notation schreiben lässt als  $\underline{\sigma}_{\text{uniaxial}} = (0,0,-P,0,0,0)$ .

Daraus extrahieren sich folgende Deformationen:

$$\epsilon_1 = s_{13}\sigma_3 = s_{31}\sigma_3$$

$$\epsilon_2 = s_{23}\sigma_3 = s_{32}\sigma_3$$

$$\epsilon_3 = s_{33}\sigma_3$$

$$\epsilon_4 = \epsilon_5 = \epsilon_6 = 0$$

und mit  $s_{31} = s_{32} \Rightarrow \epsilon_1 = \epsilon_2$ .

Der Verzerrungsvektor in Voigt-Notation schreibt sich

$$\underline{\epsilon} = (\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3, 0, 0, 0)$$

mit

$$\epsilon_1 = \epsilon_2 = \frac{c_{13}(-P)}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}} \quad \text{und} \quad \epsilon_3 = \frac{(c_{11} + c_{12})(-P)}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}}.$$

Die Poissonzahl  $\nu$  errechnet sich daraus zu:

$$\nu = -\frac{\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\parallel}} = \nu_{13} = -\frac{\epsilon_1}{\epsilon_3} = -\frac{\epsilon_2}{\epsilon_3} = \nu_{23},$$

$$\nu_{13} = \frac{c_{13}}{c_{11} + c_{12}}.$$

Die beiden anderen unabhängigen Poissonzahlen sind  $\nu_{31}$  und  $\nu_{21}$  mit  $\underline{P}||x$ -Achse.

Für die lineare Kompressibilität mit  $\kappa = -\left(\sum_i \epsilon_i\right)/P$  resultiert letztendlich

$$\kappa = \frac{(-c_{11} - c_{12} + 2c_{13})}{2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33}}.$$

Bezugnehmend auf die vorhergehende Rechnung ergeben sich analog die Resultate für den hydrostatischen Druck.

Dieser schreibt sich als

$$\underline{\sigma}_{\text{hydrostatisch}} = (-P, -P, -P, 0, 0, 0).$$

Die *Strains* definieren sich über

$$\epsilon_1 = s_{11}\sigma_1 + s_{12}\sigma_2 + s_{13}\sigma_3, \quad \epsilon_2 = s_{21}\sigma_1 + s_{22}\sigma_2 + s_{23}\sigma_3, \quad \epsilon_3 = s_{31}\sigma_1 + s_{32}\sigma_2 + s_{33}\sigma_3,$$

$$\epsilon_4 = \epsilon_5 = \epsilon_6 = 0,$$

$$\underline{\epsilon} = (\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3, 0, 0, 0),$$

und lauten entsprechend

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \frac{(c_{13} - c_{33})(-P)}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}},$$

$$\varepsilon_3 = \frac{(c_{11} + c_{12} - 2c_{13})(-P)}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}}.$$

Das Poissonverhältnis bezüglich der z-Achse beträgt

$$\nu_{13} = \frac{c_{13} - c_{33}}{c_{11} + c_{12} - 2c_{13}}.$$

Für die Kompressibilität findet sich nun

$$\kappa = \frac{(c_{11} + c_{12} - 4c_{13} + 2c_{33})}{-2c_{13}^2 + c_{11}c_{33} + c_{12}c_{33}}.$$

In einigen Veröffentlichungen ist neuerdings bei Arbeiten an tetragonalen Systemen mit einem Kompressions( K )- beziehungsweise *Bulk* modul(  $c_B$  ) von

$$K = c_B = \frac{1}{9}(2(c_{11} + c_{12}) + c_{33} + 4c_{13})$$

gerechnet worden. Hierbei ist aber Vorsicht geboten; denn das Resultat lässt sich nur aufgrund einer isotropen Verformung ableiten, das heißt,  $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \varepsilon_3$ . Das ist sicherlich bei diesem anisotropen System nicht immer realisiert. Gilt jedoch die Beziehung, so lässt sich der schwer zugängliche  $c_{13}$ -Mode eliminieren und das eben angegebene Ergebnis vereinfacht sich weiter zu

$$c_B = \frac{1}{27}(10(c_{11} + c_{12}) + 7c_{33}).$$

### 3.3 Elastische Konstanten unter Druck

Beim Arbeiten mit Drücken müsste man genau genommen die Abhängigkeit der elastischen Konstanten von Verformungen oder exakter vom nicht spannungsfreien Ausgangszustand berücksichtigen. Der angelegte Druck kann nämlich durchaus die Gittersymmetrie im Vergleich zum spannungsfreien Zustand ändern, und man hat sogenannte Spannungs-Verzerrungs-Koeffizienten einzuführen. Die Physik lässt sich noch einmal vereinfachen je nachdem, von welcher Größenordnung die Anfangsspannungen sind. Für den Fall verschwindender Spannungen sind diese Spannungs-Verzerrungs-Koeffizienten identisch mit den elastischen Konstanten zweiter Ordnung. Der nicht spannungsfreie Ausgangszustand erschließt sich einem durch die Anharmonizitäten in den elastischen Konstanten höherer Ordnung [Wallace70]. Ähnlich der Entwicklung des allgemeinen Potentials bei der Definition der Kraftkonstanten, kann man das entsprechende thermodynamische Potential nach der Verzerrung entwickeln und erhält, je nachdem, ob man die Innere Energie U oder die Freie



Energie  $F$  nach dem *Strain* ableitet, die adiabatischen elastischen Konstanten  $c^a$  einerseits oder die isothermen elastischen Konstanten  $c^t$  andererseits [Brugger64] [Thurston64]:

$$\rho_0 U(\underline{\epsilon}_{ij}, \underline{r}_0) = \rho_0 U(0, \underline{r}_0) + c_{ij}^a \epsilon_{ij} + \frac{1}{2!} c_{ijkl}^a \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} + \frac{1}{3!} c_{ijklmn}^a \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} \epsilon_{mn} + \dots,$$

$$\rho_0 F(\underline{\epsilon}_{ij}, \underline{r}_0) = \rho_0 F(0, \underline{r}_0) + c_{ij}^t \epsilon_{ij} + \frac{1}{2!} c_{ijkl}^t \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} + \frac{1}{3!} c_{ijklmn}^t \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} \epsilon_{mn} + \dots$$

Es gelte die Einsteinsche Summenkonvention.  $\rho_0$  ist die Dichte des Stoffes im Ausgangszustand. Die einzelnen Glieder der Taylorreihe wurden um  $\underline{r}_0$  entwickelt und die Entwicklungskoeffizienten sind Tensoren 2n. Stufe:

$$c_{ij}^{a(t)} = \rho_0 \frac{\partial U(F)}{\partial \epsilon_{ij}}, \quad c_{ijkl}^{a(t)} = \rho_0 \frac{\partial^2 U(F)}{\partial \epsilon_{ij} \partial \epsilon_{kl}}, \quad c_{ijklmn}^{a(t)} = \rho_0 \frac{\partial^3 U(F)}{\partial \epsilon_{ij} \partial \epsilon_{kl} \partial \epsilon_{mn}}.$$

Der erste Term deklariert die Spannungskomponenten des Ausgangszustandes. Der zweite Term definiert die bereits bekannten elastischen Konstanten 2. Ordnung. Der 3. Term die elastischen Konstanten 3. Ordnung mit insgesamt 729 Komponenten. Die Tensorsymmetrie und eine Einschränkung auf die  $D_{4h}$ -Symmetrie lässt die Anzahl unabhängiger elastischer Konstanten in Voigtschreibweise auf 12 schrumpfen, die da wären:

$$c_{111}, c_{112}, c_{113}, c_{123}, c_{133}, c_{333}, c_{144}, c_{155}, c_{166}, c_{344}, c_{366} \text{ und } c_{456}.$$

Abschließend muss jedoch bemerkt werden, dass die Nichtlinearitäten in den elastischen Konstanten nicht Thema dieser Arbeit waren und eventuellen späteren Untersuchungen vorbehalten bleiben müssen; denn es wurde erachtet, dass die Auswirkungen der in dieser Arbeit auftretenden Drücke von bis zu einigen Kilobar noch im Rahmen der harmonischen Näherung hinreichend beschrieben werden können.

## 4. Die Elektron-Gitter-Kopplung

In diesem Kapitel soll eine Einführung in eine physikalische Größe gegeben werden, die in der Theorie der elektronisch hochkorrelierten Systeme neben den renormierten effektiven Massen und dem Sommerfeldkoeffizienten der spezifischen Wärme eine signifikante Erhöhung erfährt – der Grüneisenparameter. Er ist ein Maß für die Kopplung der Elektronen an das Gitter.

### 4.1 Der Grüneisenparameter

1912 versuchte E.Grüneisen [Grüneisen12] in den „Annalen der Physik“ in seiner „Theorie des festen Zustandes einatomiger Elemente“ die Beschreibung thermisch-elastischer Eigenschaften von Metallen. Er bediente sich, wie gezeigt wird, eines vereinfachten Modells. Die Herleitung erfolgte über ein Lennard-Jones-Potential der Form

$$V_{LJ} \propto \left( -\frac{a}{r^x} + \frac{b}{r^y} \right) \quad x < y.$$

Aus der Direktionskraft resultierte die Schwingungsfrequenz eines einzelnen Atoms zu

$$v^2 = c \cdot \frac{V_0^{m-n}}{V^{m+2/3}},$$

wobei sich die Exponenten aus denen des Lennard-Jones-Potentials ergeben

$$m = y/3 \quad n = x/3$$

$V_0$  ist das Atomvolumen für  $T=0K$  und  $P=0Pa$ .

In obiger Identität steckt die Schwierigkeit die Eigenfrequenzen in Abhängigkeit des Atomvolumens zu bestimmen. Sein entscheidender Ansatz, der E.Grüneisen zur Lösung seines Problems verhalf, ist folgender:

$$\frac{1}{v} \frac{\partial v}{\partial T} = \frac{d \log v}{d \log V} \cdot \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T} = -\Omega \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T},$$

$$\frac{1}{v} \frac{\partial v}{\partial P} = \frac{d \log v}{d \log V} \cdot \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial P} = -\Omega \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial P}.$$

Die Konstante  $\Omega$  definiert sich somit durch

$$\Omega = -\frac{d \log v}{d \log V} \quad \text{mit } \Omega \in \mathbb{R}^+$$

und erhielt den Namen Grüneisenparameter. Dieser sollte positiv sein, wodurch eine Frequenzabnahme der Atomschwingungen mit steigender Temperatur und eine Frequenzzunahme mit steigendem Druck erzielt wird

$$\frac{\Delta v}{v} = -\Omega \frac{\Delta V}{V},$$

wenn eine Temperaturerhöhung mit einer Volumenvergrößerung und eine Druckerhöhung entsprechend mit einer Volumenverminderung einhergehen.

Die starke Vereinfachung des Ansatzes ist offensichtlich das analoge Verhalten aller Eigenmoden unter Druck- und Temperaturänderungen

$$\Omega = \Omega_i(v_i) = \text{const.}$$

Im allgemeinen bestehen auch Unterschiede in den Volumeneffekten für akustische und optische Phononen:  $\Omega_{\text{op}} > \Omega_{\text{ak}}$ .

Experimentell finden sich zum Beispiel für einfache Metalle sowie Salze annähernd konstante Grüneisenparameter in der Größenordnung 1 und das über Temperaturintervalle zwischen 100-600K [Kittel67] [Weißmantel79] [Reissland73]. Grüneisen errechnete einen Parameterwert der in der gleichen Größenordnung liegt

$$\Omega = \frac{m+n+3}{6}.$$

Die Übereinstimmung konnte von E.Grüneisen noch durch eine Berücksichtigung von übernächsten Nachbarwechselwirkungen verbessert werden.

Die Bedeutung des Grüneisenparameters für fundamentale physikalische Größen, wie der thermischen Ausdehnung, dem linearen Term in der spezifischen Wärme für hohe Temperaturen, dass heißt, der Abweichung vom Dulong-Petit-Gesetz, und der Verzerrungsabhängigkeit der elastischen Konstanten, erfährt man durch eine Betrachtung des Ion-Ion-Wechselwirkungspotentials. Roberts zeigte 1960, dass in einer harmonischen Potentialnäherung der Grüneisenparameter identisch 0 ist [Roberts60]. Er stellt somit ein Maß für die Abweichung von der quadratischen Approximation dar. Einzig die Anharmonizitäten im Ion-Ion-Wechselwirkungspotential gestatten die Beschreibung eben genannter physikalischer Größen und lassen sich in Relation zum Grüneisenparameter setzen. Der vermutete und empirisch bestätigte Zusammenhang zwischen den Seltenen Erdverbindungen, den elektronisch hochkorrelierten Systemen mit Valenzfluktuations- beziehungsweise Schweren Fermionen Charakter, mit ihren instabilen f-Schalen und ihren großen Volumenstriktionen führt auf den elektronischen Grüneisenparameter.

In einer Arbeit von Takke et al. [Takke81] wird für Seltene-Erd-Verbindungen der elektronische Grüneisenparameter in Relation zur spezifischen Wärme des elektronischen Systems  $C_V$  bei konstantem Volumen, zur thermischen Volumenausdehnung  $\beta$  und zum Bulkmodul  $c_B^0$  gesetzt, dass das Kompressionsmodul in Abwesenheit der 4f-Momente bei konstanter Temperatur darstellt:

$$\Omega = \frac{\Delta \beta c_B^0}{\Delta C_V} = -\frac{1}{T^*} \cdot \frac{\partial T^*}{\partial \epsilon_V}.$$

Bedingt durch die Wechselwirkung der f-Elektronen mit dem „Wirtsgitter“ lässt sich das Verhalten der Systeme unterhalb der Fluktuationstemperatur  $T^*$  durch einen Skalierungsansatz in der elektronischen Freien Energiedichte beschreiben [Thalmeier86]

$$F_c(T, H, V) = -k_B T N f\left(\frac{T}{T^*}, \frac{H}{H^*}\right).$$

$H^*$  markiert das kritische Feld, in dem der Übergang des Fermiflüssigkeitszustandes in den Zustand der lokalen Momente resultiert, verursacht durch das Aufbrechen der kohärenten Spinflipstreuung. Die Volumenabhängigkeit findet hiernach ihren Ausdruck in zwei elektronischen Grüneisenparametern (GP):

- dem thermischen GP 
$$\Omega_T = -\frac{1}{T^*} \left( \frac{\partial T^*}{\partial \epsilon_V} \right) = -\frac{\partial \ln T^*}{\partial \epsilon_V} \Leftrightarrow T^* = T_0^* e^{-\Omega_T \epsilon_V}$$

- dem magnetischen GP 
$$\Omega_H = -\frac{1}{H^*} \left( \frac{\partial H^*}{\partial \epsilon_V} \right) = -\frac{\partial \ln H^*}{\partial \epsilon_V} \Leftrightarrow H^* = H_0^* e^{-\Omega_H \epsilon_V}$$

mit dem Volumenstrain 
$$\epsilon_V = \sum_x \epsilon_{xx}.$$

Die für Kondosysteme charakteristischen Größen  $T^*$  und  $H^*$  vergrößern sich demnach bei einer Volumenverminderung - negativer *strain*  $\epsilon_V$ . Für Druck an Cersystemen konnte Schilling zeigen, dass für durchweg alle untersuchten Substanzen eine Erhöhung der Austauschkonstante und somit der Kondotemperatur eintrat [Shilling79]. Diese Aspekte berücksichtigend kann man den in Kapitel 1 angesprochenen Kondovolumenkollaps auch formal verstehen; denn dadurch erreicht das System eine Stabilisierung des Kondozustandes. Die in Kapitel 1 und 3 angesprochene Aufspaltung zwischen adiabatischen und isothermen elastischen Konstanten findet gleichfalls seinen Ausdruck über die Grüneisenkonstante in Kombination mit der spezifischen Wärme  $C$  [Yoshizawa86] [Thalmeier88]

$$c^a - c^t = \Omega^2 C T.$$

Ob das Phänomen der adiabatischen Schallausbreitung in den Systemen Schwerer Fermionen realisiert ist, wird entscheidend von der Wärmediffusion beeinflusst. Für den durch eine Deformation bedingte Temperaturgradient, definiert über

$$\Omega_{ij} = \left. \frac{\partial \ln T}{\partial \epsilon_{ij}} \right|_S$$

ist nun wichtig, auf welcher Zeitskala  $\tau_{\text{diff}}$  sich der Temperatursausgleich einstellt. Abgeschätzt werden kann dies über die Beziehung

$$v_s \cdot q \cdot \tau_{\text{diff}} = \omega \cdot \tau_{\text{diff}} = \frac{3}{\omega \cdot \tau_{\text{coll}}} \left( \frac{v_s}{v_f} \right)^2$$

$\tau_{\text{coll}}$ : mittlere Stoßzeit der Elektronen

$v_f$ : Fermigeschwindigkeit

$v_s$ : Schallgeschwindigkeit

$q$ : Wellenzahl des Schalls.

Für gewöhnliche Metalle resultiert ein Wert von  $\omega \cdot \tau_{\text{diff}} \ll 1$ . Für die sehr unbeweglichen Elektronen der Schwere Fermionen Systeme mit ihren hohen Massen kann man Werte von  $\omega \cdot \tau_{\text{diff}} \gg 1$  ableiten. Das die Beobachtung adiabatischer Schallausbreitung trotzdem in diesen Systemen als nicht 100% gesichert gelten kann, ist wohl dem Umstand zuzurechnen, dass sich der Fermisee aus schweren und leichten, das heißt unrenormalisierten, Ladungsträgern zusammensetzt, wie die Haas-van Alphen-Messungen bestätigen (siehe Kapitel 8), so dass ein Temperaturgleichgewicht auf die größere Beweglichkeit der leichten Elektronen zurückzuführen ist. Für elektronisch hochkorrelierte Systeme mit Schwere Fermionen Charakter sind  $\Omega_T$  und  $\Omega_H$  ungefähr äquivalent  $\Omega_T \approx \Omega_H$  [Thalmeier86] [Grewe91].

Eine Darstellung des Grüneisenparameters durch die durch  $T^*$  charakterisierte neue Energieskala  $E^*$  führt zu

$$\Omega = -\frac{d \ln E^*}{d \epsilon_V} = -\frac{d \ln E^*}{d \ln V}$$

und unter Verwendung des isothermen kubischen Kompressionsmoduls  $K$  zu

$$\Omega = -V \cdot \frac{\partial \ln E^*}{\partial P} \cdot \frac{\partial P}{\partial V} \Big|_T = K \frac{\partial \ln E^*}{\partial P} = K \Gamma.$$

Die Fluktuationstemperatur  $T^*$  hängt exponentiell vom Hybridisierungsterm ab und dieser ist wiederum volumenabhängig. Der  $\Gamma$ -Term ist somit die interessante Größe auf die in späteren Kapiteln Bezug genommen wird, wenn sich die Untersuchung der Druckabhängigkeit der physikalischen Größen in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  anschließt. Abschließend sei bemerkt, dass der Grüneisenparameter, im Gegensatz zu Grüneisens Annahme, auch negative Werte annehmen kann, wie in  $\text{CeAl}_3$  [Takke81].

Aus dem zuvor erwähnten Skalierungsansatz der Freien Energiedichte mit  $M(H/H_S)$ ,  $H_S$  ist der Skalierungsparameter, folgt aus der Elektron-Gitter-Kopplung  $\Omega_H = -\frac{\partial \ln H_S}{\partial \epsilon_V}$  für die isotherme longitudinale elastische Konstante [Thalmeier91] [Bruls90]

$$\Delta c_L = -\Omega_H^2 \mu_0 H^2 \Delta \chi(H). \quad (+)$$

Bei  $H_S$  handelt es sich nicht um das kritische Feld, bei dem der Schwere Fermionen Zustand aufgehoben wird, sondern, um hier etwas vorwegzugreifen, diese Relation findet in den zitierten Veröffentlichungen Verwendung zur Klärung des metamagnetischen Verhaltens von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  und der Skalierungsparameter repräsentiert den Wendepunkt in den Magnetisierungskurven.

## 5. Magnetostriktion

Mehrere Messungen dieser Arbeit untersuchen das magnetostriktive Verhalten von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , so das sich hier ein kleiner Beitrag über Magnetostriktion findet. Die aus einer Kopplung an das Kristallfeld resultierende Längenänderung ist aber explizit für dieses System letzten Endes nicht errechnet worden, da eine Beschreibung der Volumendilatation durch eine Maxwell-Relation gewährleistet war – siehe Kapitel 9 und 10.

Bei einigen Substanzen beobachtete man ein einsetzendes ausgeprägtes magnetostriktives Verhalten, wenn Seltene Erdelemente schwach hinzudotiert wurden und unschwer ließ sich dieses Verhalten auf den magnetischen Einfluss des f-Elektronensystems zurückführen – siehe zum Beispiel  $(\text{Y}_{1-x}\text{SE}_x)\text{Pd}_3$  [Nicholson78]. Die magnetischen Ionen im Kristallverbund kann man durch folgenden Hamiltonian repräsentieren [Lüthi80]:

$$\begin{aligned} H &= H_{\text{Ion}} + H_{\text{Gitter}} + H_{\text{Ion-Gitter}} \\ &= H_{\text{S.O.}} + H_{\text{Zeeman}} + H_{\text{CEF}} + H_{\text{ex}} + H_{\text{Gitter}} + H_{\text{Ion-Gitter}}. \end{aligned}$$

Der erste Term gibt die im Vergleich zu den d-Elektronensystemen stärkere Spin-Bahnkopplung wieder

$$H_{\text{S.O.}} = \lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}.$$

Der zweite Term die Zeemanaufspaltung – siehe Kapitel 11. Der dritte Term berücksichtigt den Kristallfeldeffekt, der nun wiederum im Vergleich zu den „d-Systemen“ schwächer ist. Genügt das Potential, das die 4f-Ladungsverteilung umgibt, der Laplace-Gleichung, so lässt sich das Kristallfeld durch Kugelflächenfunktionen entwickeln [Fulde79]:

$$V(\mathbf{r}, \theta, \phi) = \sum_l \sum_{m=-l}^l r^l a_l^m Y_l^m(\theta, \phi) = \sum_j \frac{e_k q_j}{|\mathbf{r}_k - \mathbf{R}_j|}.$$

Der Index l beschränkt die Multipolfelder für ein 4f-System auf die Ordnung  $\leq 6$ . Die Indizes k und j stehen stellvertretend für die Elektronen beziehungsweise die Ionen am Ort  $\mathbf{r}$  beziehungsweise  $\mathbf{R}$ . Aus rechentechnischen Gründen erfolgt meistens eine Transformation dieses Hamiltonians auf die sogenannten Stevens-Operatoren  $O_l^m$  [Stevens52], die sich analog zu den Drehimpulsoperatoren verhalten. Für ein tetragonales System resultiert demnach ein Hamiltonoperator der Form [Morin93]:

$$H_{\text{CEF}} = B_2^0 O_2^0 + B_4^0 O_4^0 + B_4^4 O_4^4 + B_6^0 O_6^0 + B_6^4 O_6^4.$$

Die Vorfaktoren  $B_l^m$  werden dabei empirisch bestimmt. Das Gitterpotential ist identisch der in Kapitel 3 vorgestellten Energiedichte. Der Hamiltonian  $H_{\text{ex}}$  wird zumeist durch den Heisenberg-Austausch definiert  $H_{\text{ex}} = J \cdot \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$ . Der Ion-Gitter-Term beinhaltet die magnetoelastische Kopplung, die den Einfluss der Multipolterme des Kristallfeldes auf das magnetische Moment des f-Elektrons aufgrund einer Verformung angibt. Die Stärke der Wechselwirkung wird durch die Kopplungskonstante  $G_i$  beziehungsweise  $V_i$  beschrieben, wobei die Parameter  $G_i$  an die Verzerrungen und die Parameter  $V_i$  an die Drehungen des Deformationstensors ankoppeln – siehe Kapitel 3 –

$$H_{\text{me}} + H_{\text{me}}^{\text{rot}} = \sum_{i=1}^6 G_i \varepsilon_i + \sum_{i=7}^9 V_i \varepsilon_i .$$

Eine Diagonalisierung des Gesamthamiltonians liefert die Energieeigenwerte  $E_j(\varepsilon_i)$ , die von den entsprechenden Verzerrungen abhängen, und über die Freie Energie

$$F = k_B T \ln \sum \exp(-E_j(\varepsilon_i)/k_B T)$$

werden die Magnetostriktionen der jeweiligen Richtung zugänglich

$$\varepsilon_i(H) \propto \left. \frac{\partial F}{\partial \varepsilon_i} \right|_H - \left. \frac{\partial F}{\partial \varepsilon_i} \right|_{H=0} .$$

## 6. Ultraschallaufbau

Dieses Kapitel soll die verwendeten Messtechniken näher erläutern. Der Ultraschall diene in dieser Arbeit einerseits zum Bestimmen der elastischen Konstanten, andererseits wurde ein modifizierter Aufbau benutzt, um die Magnetostriktion an  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  zu detektieren. Es erfolgt daher zuerst eine Darlegung eben erwähnter Messmethodik, bevor kurz auf die konventionellen Suszeptibilitäts- und Magnetisierungsmessverfahren eingegangen wird.

### 6.1 Das Messprinzip

Die Messung der elastischen Konstante wird zurückgeführt auf die Messung der Änderung der Schallfrequenz bedingt durch eine relative Abweichung der Schallgeschwindigkeit. Zur Verdeutlichung betrachte man die relative Änderung der elastischen Konstante

$$\frac{\Delta c}{c_0} = \frac{\rho(v^2 - v_0^2)}{\rho v_0^2} = 2 \frac{\Delta v}{v_0} + \left( \frac{\Delta v}{v_0} \right)^2,$$

die im Rahmen kleiner Änderungen durch die doppelte relative Schallgeschwindigkeitsänderung angenähert werden kann. Das genaue Ultraschallverfahren wird anschließend noch näher erläutert. Es sei nur soviel erwähnt, dass ein Sinussignal aufgesplittet wird in ein Referenz- und ein Probensignal. Der durch das Probensignal induzierte Schall, der sich in der Probe fortpflanzt, wird nach dem Durchlauf eine Phasenverschiebung gegenüber dem Referenzsignal aufweisen. Formal drückt sich das in der Gleichung

$$\phi = \frac{2\pi f}{v} L(2n + 1)$$

L: Probenlänge

v: Schallgeschwindigkeit

f: Schallfrequenz

n: diskrete Anzahl der Probendurchläufe bei mehrmaliger Reflexion des Schallechos

aus.

Die Beiträge der relativen Änderungen verursacht durch die einzelnen Komponenten werden ersichtlich nach der Bildung des totalen Differentials:

$$d\phi = \frac{\partial\phi}{\partial L} \Delta L + \frac{\partial\phi}{\partial f} \Delta f + \frac{\partial\phi}{\partial v} \Delta v$$

$$\Leftrightarrow \frac{d\phi}{\phi} = \frac{dL}{L} + \frac{df}{f} - \frac{dv}{v}.$$

Vernachlässigt man eine Probenkontraktion und hält die Phasenänderung auf null durch Nachregeln der Frequenz, wie es im nachfolgend dargelegten **Puls-Echo-Verfahren**

geschieht, so ergibt sich eingangs geschildertes Messprinzip  $\frac{1}{2} \frac{\Delta c}{c_0} = \frac{\Delta v}{v_0} = \frac{\Delta f}{f_0}$ .



## 6.2 Das Messverfahren der Puls-Echo-Methode

Die Beschreibung des Ultraschallaufbaus, mittels Homodyn-Verfahren, erfolgt anhand der Abbildung 6.2.

Das von einem Frequenzgenerator stammende Signal wird durch einen Leistungsteiler aufgespalten, wobei ein Anteil einem durch einen Pulser gesteuerten passiven Schalter zugeführt wird, der aus dem kontinuierlichen Sinussignal gepulste Wellenzüge von kurzer Dauer macht. Das Schalterelement benötigt eine Steuerspannung von  $\pm 1V$ . Die Pulslängen liegen im Bereich von 10tel Mikrosekunden. Die Pulsrate bei einigen Kilohertz und sorgt so für eine Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses. Nach Durchlaufen eines Leistungsverstärkers gelangen die Pulse an den Transducer und regen zur Schallemission an. Der zweite Transducer detektiert die ankommenden Schallechos. Nach der elektronischen Umwandlung passiert das Signal einen Vorverstärker, wird aufgespalten und beide Anteile Mischern zugeführt. Dort werden die des Weiteren parallel verlaufenden Signale mit der Referenz gemischt, das heißt multipliziert. Die Referenz, die nach dem Leistungsteiler abgegriffen wird, bedient nach einmaliger Verstärkung einerseits den Frequenzzähler und zum anderen einen Hybriden, aus dessen zwei Ausgängen das ursprüngliche Referenzsignal und ein um  $90^\circ$  phasenverschobenes erhalten wird. Beide Anteile werden auf die Mischer gegeben, wo sie „mathematisch“ mit den Probensignalen verarbeitet werden. Nach zwei Tiefpässen, die eine zeitliche Mittelung bewirken, folgen breitbandige DC-Verstärker, sogenannte Videoverstärker, bevor das Signal zum Boxcarintegrator gelangt. Mit den Boxcarintegratoren wird ein bestimmtes Echosignal nach zeitlicher Mittelung aufintegriert. Das  $0^\circ$ -Phasensignal wird nach seiner Verarbeitung im Boxcar durch ein Regelglied zur Frequenzmodulation des Sinusgenerators benutzt. Die Frequenzmodulation mit einem DC-Signal erzielt die gewünschte Frequenzverschiebung, wodurch die Phasenänderung zu null kompensiert wird. Das  $90^\circ$ -Phasensignal wird nach dem Boxcarausgang direkt an ein Voltmeter gespeist. Synchronisiert wird der gesamte Prozess durch ein vom Pulsgenerator gesendetes Triggersignal. Die vielen Verstärkerstufen sind bedingt durch die schlechte Impedanzanpassung zwischen den Ultraschallwandlern und der übrigen Elektronik. Das Oszilloskop dient zur visuellen Justage der Gatedelays und Gatebreiten, sowie der Beobachtung der Probenechos.

Alle Messgrößen und -parameter wie Magnetfeld und Temperatur werden von den Voltmetern über IEEE vom Rechner ausgelesen. Das hierzu verwendete Messprogramm wurde entwickelt von I. Kouroudis, und steuert in äußerst zuverlässiger Weise die doch von den einzelnen Herstellern unterschiedlich interpretierten IEEE-Standards.

Formal wird noch einmal kurz die Signalverarbeitung nach den Vorverstärkern skizziert.

Sei das Probensignal, das Ausgangssignal, gegeben durch

$$A = A_0 \cos(\omega t + \phi)$$

mit dem Phasenshift  $\phi$ , den es durch die Verzögerung in der Probe erhielt. Kennzeichnen ferner

$$B(0^\circ) = B_0 \cos(\omega t) \quad \text{und} \quad B(90^\circ) = B_0 \sin(\omega t)$$

das Eingangssignal, sowie das durch den Hybriden phasenverschobene Referenzsignal, so führt die Multiplikation in den Mischern zu den Ergebnissen

$$A \cdot B(0^\circ) = \frac{1}{2} A_0 B_0 [(1 + \cos(2\omega t) \cos \phi) - \sin(2\omega t) \sin \phi]$$

$$A \cdot B(90^\circ) = \frac{1}{2} A_0 B_0 [\sin(2\omega t) \cos \phi - (1 - \cos(2\omega t)) \sin \phi].$$

Die Tiefpässe filtern nun die hochfrequenten Anteile heraus, ganz analog einer zeitlichen Mittelung, und es verbleiben die Gleichspannungsanteile

$$\overline{A \cdot B}(0^\circ) = \frac{1}{2} A_0 B_0 \cos \phi$$

$$\overline{A \cdot B}(90^\circ) = \frac{1}{2} A_0 B_0 \sin \phi.$$

Bei einer Phasenregelung auf  $\phi = 0^\circ$  ist der Gleichspannungsanteil  $\overline{A \cdot B}(90^\circ)$  proportional zum Ausgangssignal  $A_0$ .

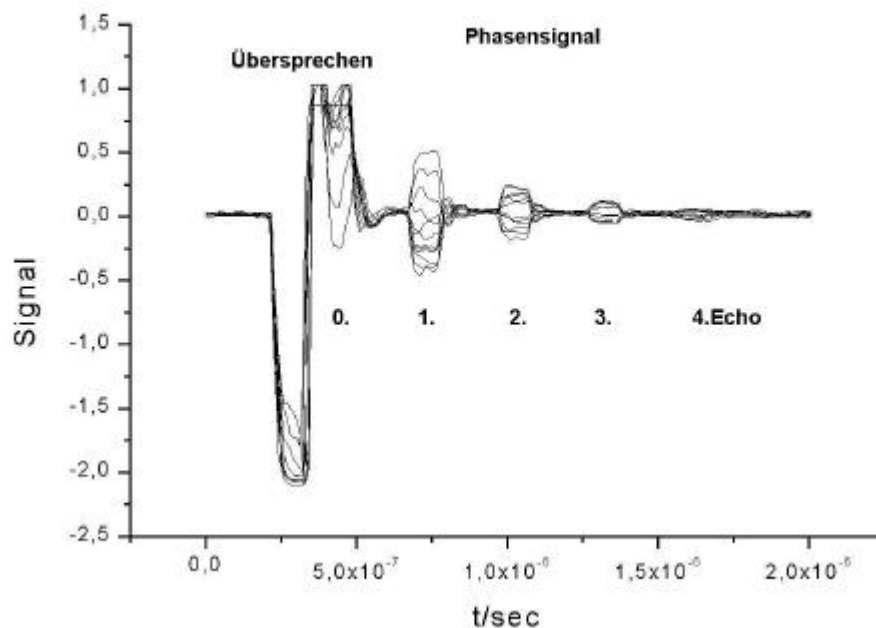


Abb.6.1: Echofolge mit überlagerter Frequenzmodulation. Das große Übersprechen ist bedingt durch einen Antenneneffekt, der aus den unabgeschirmten Zuleitungen, die direkt an der Probe anliegen, resultiert. Sie wirken wie ein elektromagnetischer Sender. Das Signal ist nach den Videoverstärkern abgegriffen worden [Choudry00]. Das 0.Echo wird auch als Transit bezeichnet.

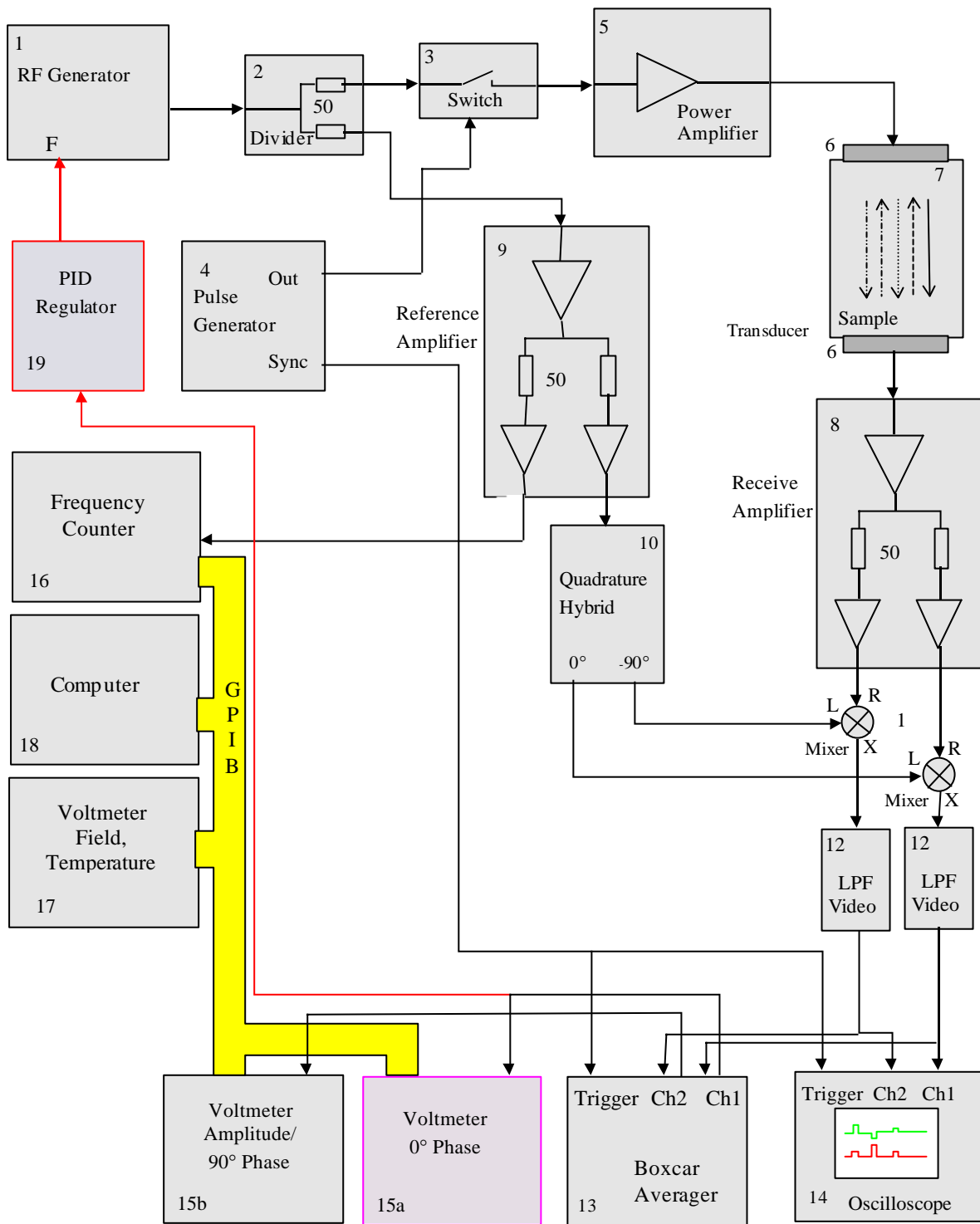


Abb.6.2:Der experimentelle Aufbau, wie er zur Bestimmung der elastischen Konstanten beziehungsweise der Schallgeschwindigkeit und deren Dämpfung benutzt wurde [Kouroudis99].

### 6.3 Bestimmung der absoluten Schallgeschwindigkeit

Als zuverlässigstes Verfahren hat sich die Phasendrehmethode etabliert, die gegenüber einer direkten Laufzeitbestimmung am Oszilloskop den Vorteil der größeren Genauigkeit besitzt. Bei der Phasendrehmethode wird manuell eine Verstimmung der Frequenz verursacht – der Frequenzgenerator muss hierzu natürlich von der Regelung entkoppelt sein -, sodass der Phasengang ein Vielfaches von  $\pi$  beträgt. Die Schallgeschwindigkeit errechnet sich dann nach

$$v = 2\pi L_0 (2n + 1) \frac{\Delta f}{\pi m} \quad \text{mit} \quad \phi = m\pi.$$

Die geringe Genauigkeit von ungefähr 5%, die bei der direkten Methode gelingt, kann so durch die Phasendrehmethode auf 1% gesteigert werden. Wobei noch geringere Abweichungen durch Messungen an höheren Echos erzielt werden können, da systematische Fehler verursacht durch die elektronische Apparatur reduziert werden können.

Das Auflösungsvermögen der relativen Änderung der elastischen Konstanten liegt bei dem Homodyn-Verfahren in der Größenordnung von  $10^{-6}$ .

### 6.4 Die Probenpräparation

Die für das Gelingen eines Ultraschallexperimentes unabdingbaren planparallelen Flächen müssen zuvor durch Schneiden und Polieren hergestellt werden. Daraufhin lassen sich die piezoelektrischen Schallwandler, die Transducer, mit dem entsprechenden Kontaktmittel, dem Bond, anbringen. Während dieser Arbeit fanden durchweg Lithiumniobatwandler mit einer Resonanzfrequenz von 6MHz und longitudinaler Modenpolarisation Verwendung. Das Bondmaterial war Thiokol LP 32. Befestigt wurden die Proben auf einem Sockel aus Patex-Stabilit®. Bei großen thermischen Ausdehnungen der Proben geht jedoch meistens die Haftkraft verloren, und die Probe platzt ab. Durch adäquat geformte Klebstoffgebilde kann dem aber entgegengewirkt werden. Die Probe auf ihrem Stabilit-Sitz befindet sich auf einem Messingwinkel, der auf einer Schiene befestigt ist. Diese Schiene ermöglicht die Änderung der Probenposition zum Beispiel bei Messungen im Magnetfeld. Die elektronischen Leitungen sind koaxial bis wenige Millimeter vor der Probe. Überbrückt wird die verbleibende Distanz zu den Transducern bei herkömmlichen Ultraschallaufbauten durch  $20\mu\text{m}$  dicke, nicht isolierte Goldfäden. Bei diesen Standardaufbauten befindet sich wenig Metall in der unmittelbaren Umgebung der Probe, sodass ein Kurzschluss zwischen den Goldzuleitungen und dem Metall, aufgrund thermischer Bewegung oder unachtsamen Einbaus, ausgeschlossen werden kann. Dieser Sachverhalt war bei den Ultraschallexperimenten unter Druck nicht gegeben. Hier eigneten sich  $20\mu\text{m}$  dünne, isolierte, lötbare Kupferdrähte. Die Enden können mit zirka  $300\text{-}350^\circ\text{C}$  heißem Lötzinn abisoliert werden, besitzen allerdings dann den Nachteil erhöhter Brüchigkeit durch das benetzte Lot, weswegen die Kupferhaare an beiden Enden in heißes Flussmittel der Firma *Kager-Verfahrenstechnik* getaucht und anschließend gewässert wurden. Die Kontaktierung der Zuleitungen erfolgte mit Leitsilber.

## 6.5 Magnetostruktionsaufbau

Ein Kritikpunkt am Verfahren der Messung der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung ist sicherlich der unterdrückte Term der relativen Längenänderung. Ist doch von vornherein nicht ersichtlich in welcher Größenordnung die thermische Ausdehnung oder Magnetostriktion liegt. Zwar ist bekannt, dass viele metallische Proben eine Magnetostriktion  $\Delta l/l$  von  $10^{-6}$  besitzen, jedoch können im Einzelfall erhebliche Abweichungen existieren. So untersucht man zum Beispiel an dem Hochtemperatursupraleiter  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , im folgenden kurz YBaCuO genannt, die auffallend große Längenänderung in der Shubnikov-Phase und auch das elektronisch hochkorrelierte System  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  zeigt eine thermische Ausdehnung und Magnetostriktion von einigen Promille. Ebenso sind die Elemente Dysprosium, Holmium, Terbium und Erbium durch ihre relativen Längenänderungen im Magnetfeld von ungefähr einem Prozent bekannt geworden, dessen Phänomen den Namen *giant magnetostriction* erhielt [Legvold63] [Rhyne65]. Nach der Grüneisenschen Ausdehnungsregel besitzen viele Elemente sogar eine thermische Volumenausdehnung  $\Delta V/V$  zwischen dem absoluten Nullpunkt und ihrem Schmelzpunkt von 0.07 [Franke69]. Um Aussagen über die Zuverlässigkeit der erzielten Resultate geben zu können sind sicherlich ergänzende Messungen der Längenänderung von Nöten. Ein von George Bruls entwickeltes Verfahren zur Magnetostruktionsmessung soll nun hier vorgestellt werden. Mit dieser Methode wurden sämtliche Experimente zur Ausdehnungsbestimmung durchgeführt. Der Grundgedanke des Messprinzips ist folgender: Man nehme ein Medium, in dem sich Schall ausbreitet und bringe zwei Transducer planparallel in definierter Distanz in dieses Medium hinein. Stabilisiert man nun die Temperatur, wird die Schallgeschwindigkeit einen bestimmten Wert annehmen, und bei festgehaltenem Abstand der Transducer wird der Schall eine gewisse Zeit benötigen um von einem Wandler zum anderen zu gelangen. Vergrößert man nun den Abstand zwischen den Transducern, so wird die sich ergebende Phasenänderung bei konstanter Temperatur allein durch die Längenänderung begründet sein. Wertet man die Echos über das Homodynverfahren aus, indem man die Phasenänderung zu null kompensiert, ergibt sich folgender Sachverhalt

$$0 = \frac{d\phi}{\phi} = \frac{dL}{L} + \frac{df}{f} - \frac{dv}{v}.$$

Da die Temperatur stabilisiert wird, nihilisiert man Änderungen in der Schallgeschwindigkeit. Eine Verschiebung der Transducer würde nun eine Frequenzänderung bedingen, die sich schreibt als

$$\frac{df}{f} = -\frac{dL}{L}.$$

Somit ist die relative Frequenzänderung identisch dem Negativen der relativen Längenänderung. Um Magnetostruktionsmessungen untersuchen zu können, ist es zudem wichtig, dass sich besagtes Medium obendrein durch keinerlei magnetische Effekte auszeichnet. Nun ist es von Vorteil, das flüssige Helium diese Eigenschaften besitzt, da es eh in der Kryogenik als Kühlflüssigkeit Verwendung findet. Zudem zeigt es im superfluiden Zustand unter 2.2K eine hervorragende Wärmeleitfähigkeit, die das Vorhandensein von Temperaturgradienten nahezu ausschließt. Diese Tatsache ist wesentlich, denn schaut man sich einmal die temperaturabhängige Schallgeschwindigkeit in Helium an – siehe Abbildung 6.3, so ist die starke Änderung um die superfluide Übergangstemperatur zu berücksichtigen. Die relative Änderung beträgt von 2.2K bis 1.4K ungefähr 8% und mündet zu tieferen Temperaturen in eine Sättigung. Da im superfluiden Zustand gemessen werden sollte wurde der Arbeitspunkt

bei der tiefstmöglichen erreichbaren Temperatur fixiert, entsprechend der geringsten temperaturbedingten Änderung, also um 1.4K.

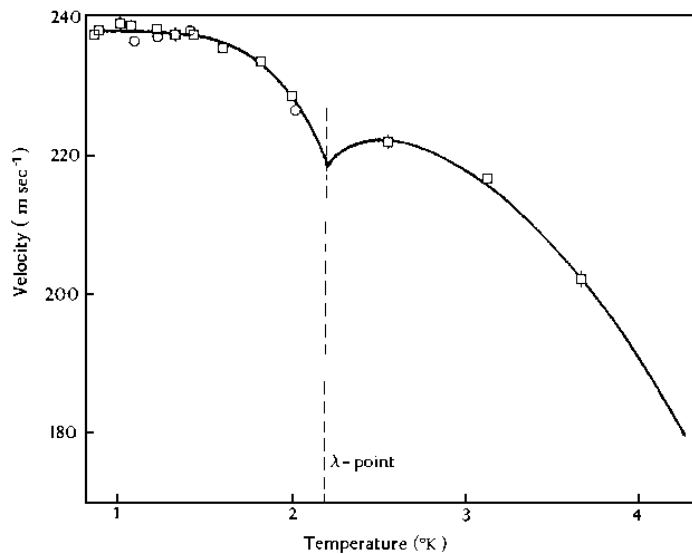


Abb.6.3: Die absolute Schallgeschwindigkeit in Helium unterhalb von 4K nach [Chase53] [Wilks67].

Um die Genauigkeit der Messungen weiter zu erhöhen bedurfte es der bereits erwähnten Temperaturstabilisierung. Als Sensoren eignen sich hierzu nur Kapazitätsthermometer, die nicht wie Widerstandsthermometer einen temperaturabhängigen Magnetowiderstand aufweisen, der ein unkompliziertes Regeln von vornherein ausschließt. Die Kapazität wurde mit einer Kapazitätsmessbrücke der Firma *Andeen-Hagerling* ausgelesen und die Daten von einem von I. Aviani entwickelten Programm zur Temperaturstabilisierung verarbeitet, das den Heizstrom, der von einer digitalen Stromquelle der Firma *Keithley* an den Heizer gespeist wurde, steuerte.

Die Lithiumniobattransducer wurden zur Realisierung dieser Messmethode an 1 bis 2mm dicke Glasfaserplättchen von Platinen mit dem Zweikomponentenkleber UHU® befestigt und mit einer Feder an die planparallelen Flächen der Probe geklammert. Bei der Materialwahl der Klammern ist entscheidend die Eigenschaft, bis zu sehr geringen Temperaturen elastisch zu bleiben. CuBe besitzt diesen Vorzug, sodass die Klammern entweder aus CuBe-Blech oder CuBe-Draht von jeweils unterschiedlicher Stärke gefertigt wurden.

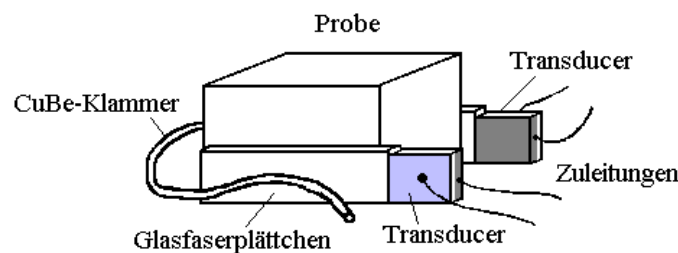


Abb.6.4: Aufbau zur Magnetostruktionsmessung. Gezeigt sind die Ultraschallwandler, die von einer CuBe-Feder an der Probe fixiert werden.

Das Experimentieren bei 1.4K erfordert das Pumpen am Heliumflüssigkeitsreservoir, in dem sich der Probenstab befindet. Demnach ist die Temperaturstabilisierung ein kompliziertes Zusammenspiel zwischen Dampfdruck, Heizstrom und der Zeitkonstante des Regelmechanismus und nicht immer gelingt einem das gewünschte Ergebnis. Unter optimalen Versuchsbedingungen gewährleistete das von I. Aviani geschriebene Programm eine Temperaturstabilisierung auf  $(5\pm 0.5)10^{-4}K$  genau, doch um sich experimentell größere Zuverlässigkeit zu gewährleisten wurde von G. Bruls das gekoppelte System entwickelt. Bei diesem Aufbau wird die zu untersuchende Probe mit einer zweiten passiven Probe, der sogenannten *Dummy*-Probe, die eine vernachlässigbare Magnetostriktion zeigt, gekoppelt, indem für beide Proben der gleiche Sendetransducer verwendet wird. Dies ist in der Abbildung 6.5 schematisch skizziert

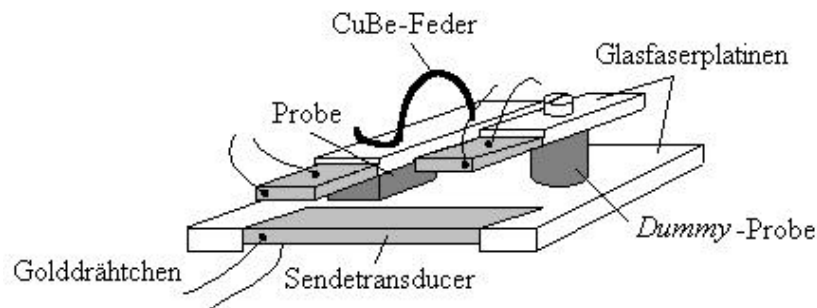


Abb.6.5: Der Magnetostruktionsaufbau mit Probe und einer *Dummy*-Probe aus Kupfer. Charakteristisch ist der gemeinsame Sendetransducer.

Formal erläutert sich das anhand des totalen Differentials. Für die zu untersuchende Probe gilt

$$\frac{d\phi_P}{\phi} = \frac{dL_P}{L} + \frac{df_P}{f} - \frac{dv_P}{v}$$

und entsprechend für die *Dummy*-Probe

$$\frac{d\phi_D}{\phi} = \frac{dL_D}{L} + \frac{df_D}{f} - \frac{dv_D}{v} = \frac{df_D}{f} - \frac{dv_D}{v}.$$

Dabei ist der Index im Nenner, wie in den kommenden Zeilen, der besseren Lesbarkeit wegen unterdrückt worden. Die Änderung von  $dL_D$  verschwindet eben wegen der vorausgesetzten Passivität der *Dummy*-Probe. Wird mittels des Homodynverfahrens das Probensignal geregelt, so gilt ja  $d\phi_P=0$ , und es verbleibt

$$\frac{df_P}{f} = \frac{dv_P}{v} - \frac{dL_P}{L}.$$

Die Kopplung der Sendetransducer bedeutet die Identität von

$$\frac{df_P}{f} = \frac{df_D}{f} = \frac{d\phi_D}{\phi} + \frac{dv_D}{v},$$

und Gleichsetzen resultiert in

$$\frac{d\phi_D}{\phi} = \underbrace{\left( \frac{dv_P}{v} - \frac{dv_D}{v} \right)}_{=0} - \frac{dL_P}{L} = -\frac{dL_P}{L}.$$

Da das schallübertragende Medium Helium ist, sind  $v_D$  und  $v_P$  gleich, und der Klammerausdruck verschwindet. Man erkennt, dass die relative Phasenänderung mit der relativen Längenänderung der Probe korreliert ist. Außerdem gehen Temperaturschwankungen, die sich auf die Schallgeschwindigkeit auswirken nicht ein, da sich durch die Kopplung die Beiträge kompensieren.

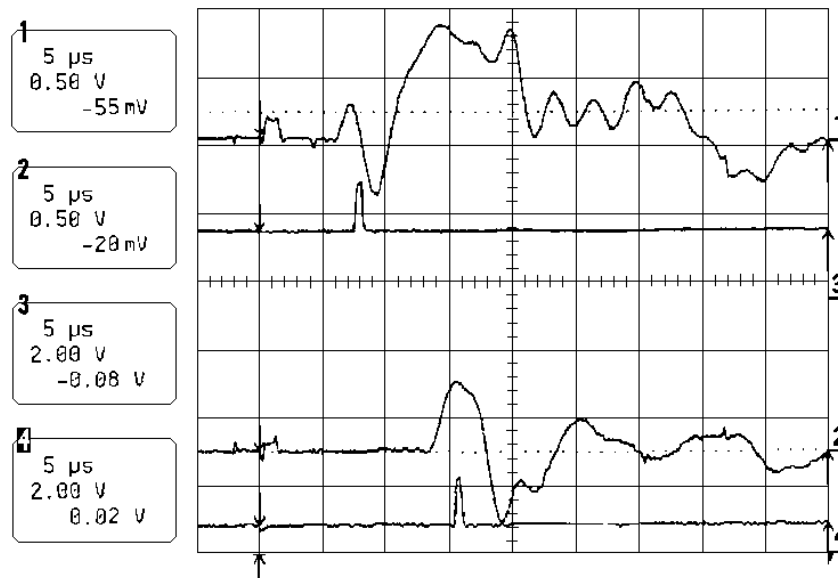


Abb.6.6: Gezeigt sind die Echofolgen der Probe (1) und des Dummies (2). Eine Laufzeitbestimmung führt zu einer Probenlänge von ungefähr 1.9mm, und einer Dummy-Probenlänge von zirka 3.6mm [Bruls98]. Die Kurven (3) und (4) zeigen die positionierten Boxcargates. Das Triggersignal wird durch die Pfeile markiert.

In Abbildung 6.6 sind zwei Echofolgen eines gekoppelten Systems gezeigt. Die ziemlich hohe Streuung des Schalls lässt die Echos nicht in diskreten Abständen erscheinen und für Echos höherer Ordnung stark durchmischen. Für eine Messung auf dem Transitsignal ist dies aber ohne Relevanz und die später gezeigten Eichkurven sprechen für die Zuverlässigkeit der Messmethode. Wie effizient das *Dummy*-Verfahren ist, wird deutlich anhand einer Messung, die an dem elektronisch hochkorrelierten System  $\text{CeRu}_2$  in der supraleitenden Phase von G. Bruls vorgenommen wurde und in Abbildung 6.7 einzusehen ist. Auf das System  $\text{CeRu}_2$  soll hier nicht eingegangen werden, da es bei der Präsentation der experimentellen Ergebnisse im Wesentlichen um eine Visualisierung der Wirksamkeit des gekoppelten Systems geht. Es wurde das Heliumbad absichtlich bei einer Temperatur von 1.6K bei laufender Messung mit zwei Heizpulsen erwärmt, einmal bei zwei Tesla, das andere Mal bei vier Tesla, wie deutlich an dem Verlauf der Temperaturkurve zu sehen ist. In dem Probensignal spiegelt sich dieser Effekt eklatant wider. In dem Phasensignal der *Dummy*probe hingegen sind die Temperaturschwankungen unterdrückt.



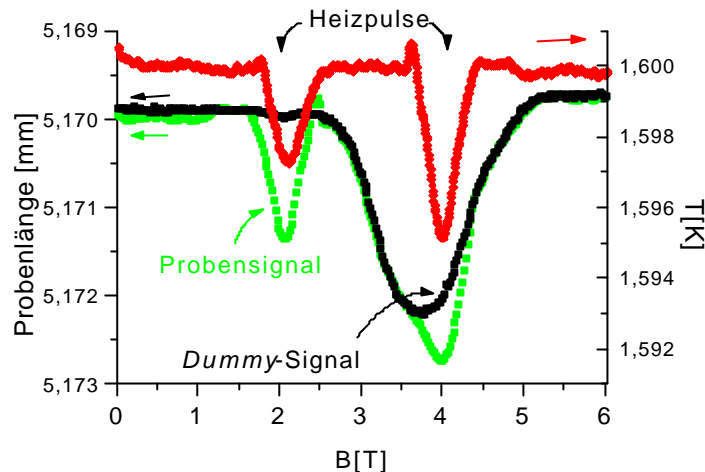


Abb.6.7: Darstellung wie zuverlässig durch das gekoppelte System Temperaturschwankungen eliminiert werden können [Bruls98]. Die Temperaturkurve ist rot eingetragen. Geregelt wurde auf dem Probensignal.

Um experimentell Aussagen über die Phasenänderung des *Dummysignals* bei gleichzeitiger Regelung des Probensignals zu gewinnen, muss man das zuvor geschilderte Homodynverfahren leicht modifizieren. Es genügt, den Hybriden aus dem Referenzweig zu entfernen und zwei identische 0°-phasenverschobene Signale den Mischern zuzuführen. Schematisch ist das abgewandelte Homodynverfahren in Abbildung 6.15 gezeigt.

Der Ausgang des nicht geregelten *Boxcarsignals* muss aber noch geeicht werden, da die Phasenänderung beim frequenzgeregelten Verfahren eine periodische Funktion der Frequenz darstellt, und sich daher dieser funktionale Charakter in der Längenänderung niederschlägt. Die Eichung geschieht, indem man bei durchtrennter Regelungsschleife die *Boxcar*ausgänge bei gleichzeitiger Verstimmung der Generatorfrequenz aufzeichnet. Die harmonische Funktion des unregulierten Phasensignals ist beispielhaft in Abbildung 6.11 zu sehen. Für kleine Änderungen gestaltet sich die Auswertung der Kalibrierung recht einfach. Der Arbeitspunkt bewegt sich dann meistens auf der steilen Flanke der harmonischen Funktion, die durch einen Sinus angenähert werden kann. Die Vereinfachung wird dadurch erzielt, dass man diese Flanke durch eine Geradengleichung anfittet. Das weitere Vorgehen ist wie folgt: Die Messdaten werden mit dem  $\phi_0$ -Wert multipliziert, der funktional mit dem  $f_0$ -Wert zusammenhängt, die zu Beginn einer jeden Messung automatisch eingelesen werden, sie kennzeichnen den Ausgangspunkt einer Messung. Dann wird von der angefitteten Umkehrfunktion die Steigung ermittelt und mit den Absolutwerten multipliziert. Anschließend noch durch  $f_0$  geteilt

$$\frac{d\phi}{\phi_0} \cdot \frac{\phi_0}{f_0} \cdot \frac{df}{d\phi} = \frac{df}{f_0}$$

Etwas komplizierter wird das Auswerteverfahren bei sehr großen Längenänderungen. Man ist dann gezwungen, mit der inversen Funktion zu arbeiten, hat hierbei aber zu berücksichtigen, dass die Umkehrfunktion der Harmonischen nicht eindeutig ist und muss die Kalibrierung abschnittsweise durchführen. Neben dieser Arbeit sind Magnetostruktionsmessungen an dem Hochtemperatursupraleiter YBaCuO, gezüchtet von A.Erb, entstanden, die hier exemplarisch angeführt werden. Einzig und allein aus der Tatsache, dass die beobachtete Längenänderung

sich hervorragend zur Demonstration des Auswerteverfahrens eignet und nicht um einen thematischen Bezug herzustellen, wird diese Substanz hier erwähnt. Die vorgestellten Experimente wurden bei einer Temperatur von 1.4K in der Konfiguration B<sub>LC</sub> gemacht. Die c-Achse ist hierbei die Richtung senkrecht zu den Cu-O-Ebenen. In den Abbildungen 6.8 und 6.9 ist das Proben- und das *Dummy*signal vergleichsweise in zwei Diagrammen mit unterschiedlicher Achseneinteilung geplottet. Die YBaCuO-Probendaten sind bereits invertiert, womit die Vorzeichenumkehr der relativen Frequenzänderung beachtet wurde. Es ist auf dem Probensignal geregelt worden. Das Probensignal zeigt den aus der Literatur bekannten schmetterlingsflügelartigen Verlauf im supraleitenden Zustand [Braden90] [Tremolet88], das *Dummy*phasensignal hingegen, dass durch die implementierte harmonische Funktion geänderte Kurvenverhalten. Der besseren Unterscheidung wegen, wird im folgenden für das Phasensignal der *Dummy*probe  $\phi_D$  die Variable A für (Boxcar-)Ausgang verwendet. Das Datenpaar  $(f_0/A_0)$  kennzeichnet den Arbeitspunkt zu Beginn der Messung. In der sich anschließenden Abbildung 6.10 sind die relativen *Dummy*-Rohdaten mit dem Wert  $A_0$  multipliziert worden zur Erhaltung der Absolutwerte, und der nächstfolgende Graph in Abbildung 6.11 zeigt die Eichung, das heißt, den unregelmäßigen Boxcarausgang bei einer Frequenzverstimmung um die Messfrequenz. Beim Vergleich der beiden Abbildungen 6.10 und 6.11 fällt auf, dass das *Dummy*signal zweimal über das Maximum der Harmonischen bei  $f = 6.46\text{MHz}$  und  $A = 6.57\text{Skt}$  läuft, nämlich bei  $B = 1\text{T}$  in der Feld-rauf-Kurve und bei  $B = 9\text{T}$  in der Feld-runter-Kurve. Das für die Kalibrierung interessante Intervall beschränkt sich somit auf den Bereich  $6.435\text{MHz} < f < f_0 = 6.487\text{MHz}$  und wurde mit der Funktion

$$A(f) = a_1 \sin(a_2 f + a_3) + a_4$$

mit den entsprechenden einzelnen Parametern

$$\begin{aligned} a_1 &= -6.9000 \text{ Skt} \\ a_2 &= -89.6000 \text{ MHz}^{-1} \\ a_3 &= -0.1930 \\ a_4 &= 0.0073 \text{ Skt} \end{aligned}$$

angefittet. Die Umkehrfunktion wird demgemäß durch

$$A(f)^{-1} = \frac{1}{a_2} \arcsin\left(\frac{A(f) - a_4}{a_1}\right) - \frac{a_3}{a_2}$$

repräsentiert. In Abbildung 6.12 ist der Versuch unternommen worden die relativen Längenänderungen der oben angesprochenen Magnetfeldwerte in der Eichkurve zu markieren. Zusätzlich ist neben dem Ausgangspunkt von  $B = 0\text{T}$  der Umkehrpunkt bei  $B = 14\text{T}$  eingetragen. Die Verknüpfung der verschiedenen Darstellungen soll durch die gepunkteten Linien angedeutet werden. Die Funktionswerte der inversen Funktion ohne den additiven Term  $-a_3/a_2$  sind im Intervall  $(A(f)^{-1} + a_3/a_2) \in [-0.0016\text{MHz}; 0.0016\text{MHz}]$  definiert, und für das Wachsen der Probenlänge, wie es auch durch das geregelte Signal bestätigt wird, muss der Periodizität Rechnung getragen werden. Dies geschieht durch eine Reskalierung der Daten unterhalb von  $B = 1\text{T}$  bei der Feld-rauf-Kurve beziehungsweise oberhalb von  $B = 9\text{T}$  in der Feld-runter-Kurve durch die Subtraktion von

$$2 \cdot \left| \text{Max} \left[ A(f)^{-1} + a_3/a_2 \right] \right| - \arcsin \left[ (A(f) - a_4) / a_1 \right] / a_2.$$

Die Umkehrfunktion ohne additivem Zusatzterm ist mit ihrer periodischen Fortsetzung in der Abbildung 6.13 geplottet. In den Graphen der Abbildung 6.14 sind die durch  $f_0$  dividierten kalibrierten Kurven, nun mit Berücksichtigung des additiven Zusatzterms, eingetragen und den Probensignaldaten gegenübergestellt. Abschließend sei erwähnt, dass eine Messung der Magnetostriktion in der Konfiguration  $B||c$  daran scheiterte, dass die Probe im Feld in die Konfiguration  $B\perp c$  flippte. Ursache hierfür ist die hohe Anisotropie der oxydischen Hochtemperatursupraleiter, die sich in den unteren kritischen Feldern  $B_{c1}^{ab}$  und  $B_{c1}^c$  niederschlägt.  $B_{c1}^{ab}$  ist das kritische Feld in der Konfiguration  $B||ab$ , wobei  $ab$  die  $CuO_2$ -Ebene bezeichnet.  $B_{c1}^c$  ist das entsprechende kritische Feld mit  $B||c$ . Die Anisotropie bewirkt nun das  $B_{c1}^{ab} \ll B_{c1}^c$  ist [Cyrot92], daher ist es für die Vortexlinien energetisch günstiger sich in den Ebenen zu pinnen.

Praktisch kann man schon zu Beginn einer jeden Messung einen geeigneten  $f_0$ -Startwert aussuchen, zum Beispiel einen, der um die Nullstellen der harmonischen Funktion liegt, und simplifiziert so die Auswertung, da man sich dann zumeist im angenähert linearen Bereich der trigonometrischen Funktion bewegt, oder man variiert die Länge der *Dummy*probe, bei zu erwartenden großen Änderungen in der Dilatation.

Das Phasenregelverfahren erlaubt ja nun auch die Phase des *Dummysignals* konstant zu halten und das Probensignal aufzuzeichnen, das heißt  $d\phi_D=0$ . Eine analoge Rechnung für die Probendilatation führt zu dem Ergebnis

$$\frac{d\phi_P}{\phi} = \frac{dL_P}{L}.$$

Man beachte den auftretenden Vorzeichenwechsel gegenüber der Regelung auf dem Probensignal.

Das Auflösungsvermögen der Magnetostruktionsmessungen wird durch die untere Schranke des Homodyn-Verfahrens von  $\Delta l/l=10^{-6}$  bestimmt. Der zusätzlich limitierende Faktor, der diese Grenze heraufsetzen kann, sind Temperaturschwankungen, wenn mit dem ungekoppelten System gemessen wird.

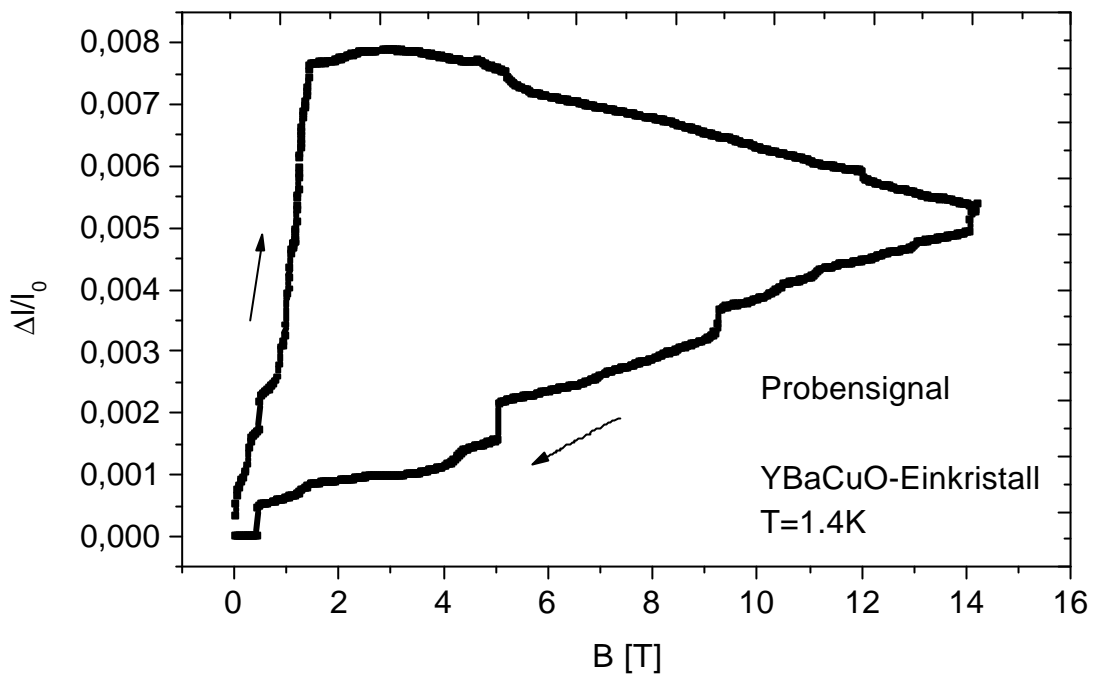


Abb.6.8: Die Magnetostraktion eines YBaCuO-Kristalls mit Regelung auf dem Probensignal.

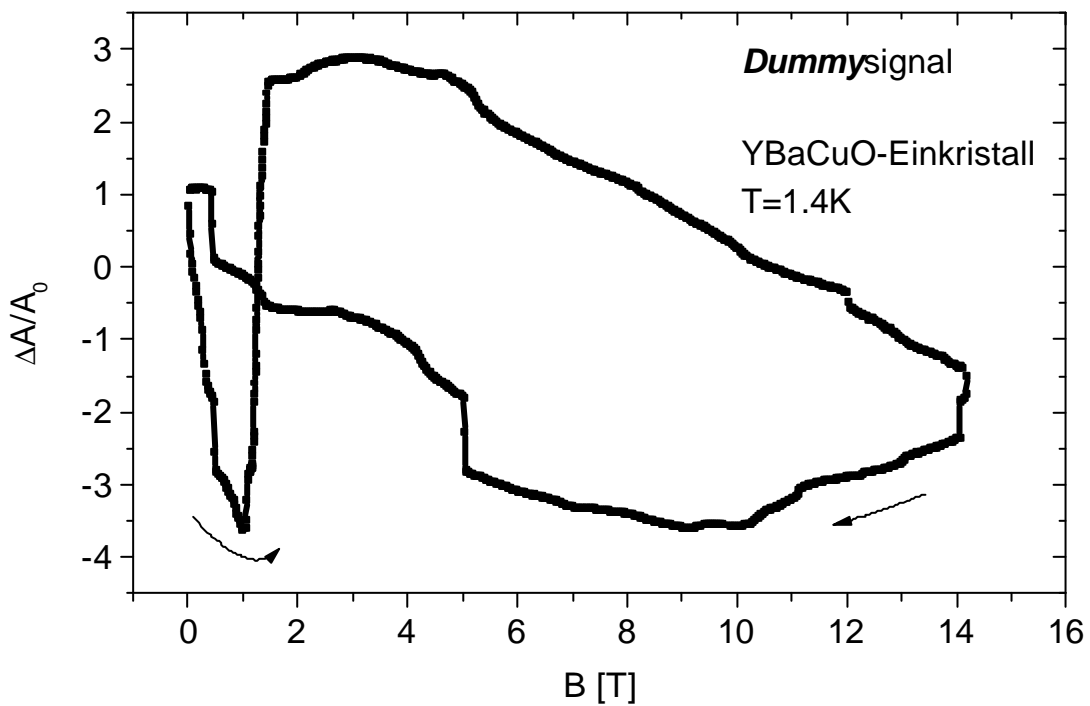


Abb.6.9: Das parallel zum in Abbildung 6.8 gemessenen Probensignal aufgezeichnete Dummysignal.

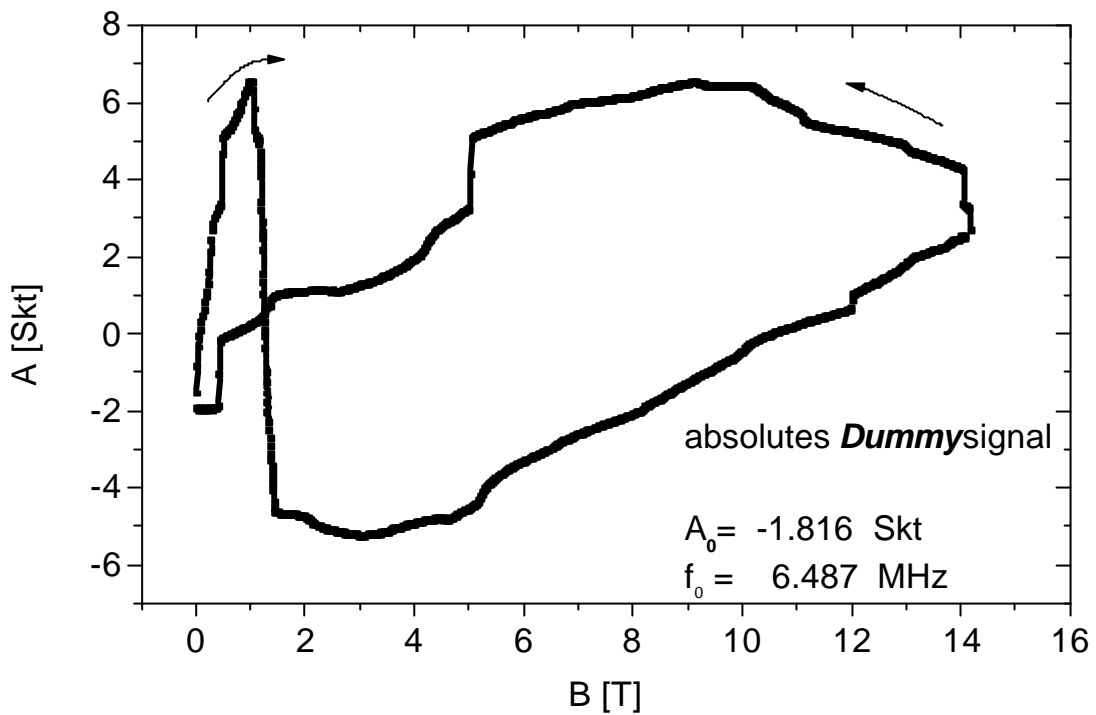


Abb.6.10: Das Dummy-Signal multipliziert mit dem Anfangswert  $A_0$ .

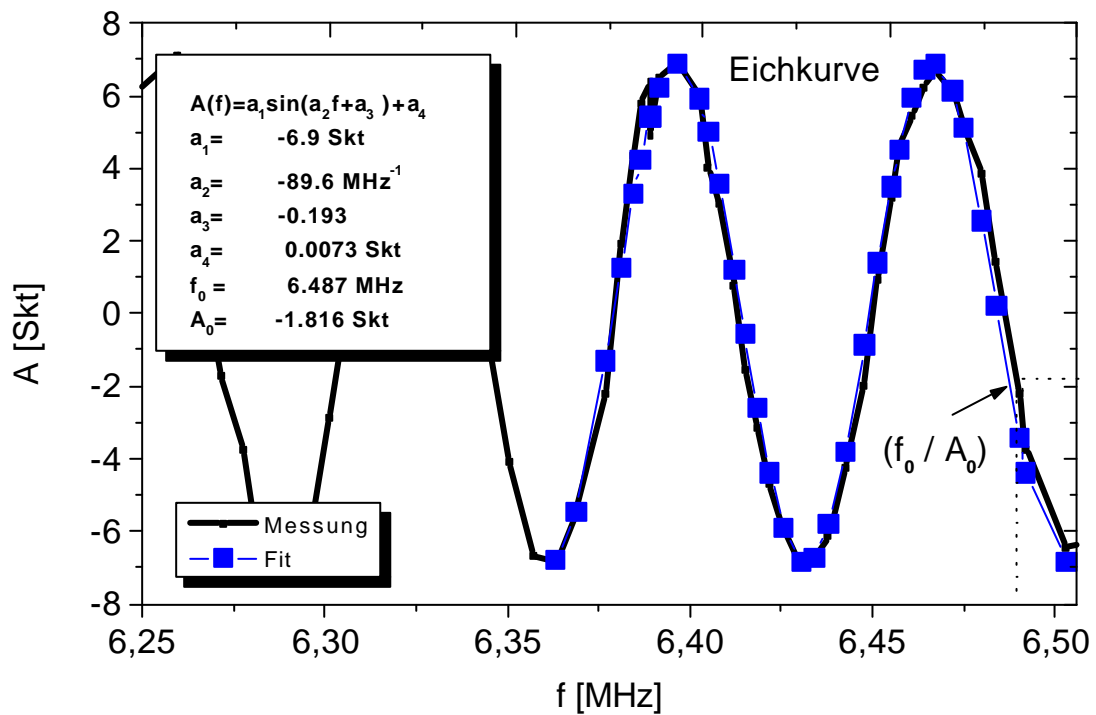


Abb.6.11: Der zum Dummysignal gehörende geeichte Boxcarausgang. Der Startwert der Messung wird durch das Wertepaar  $(f_0/A_0)$  repräsentiert.

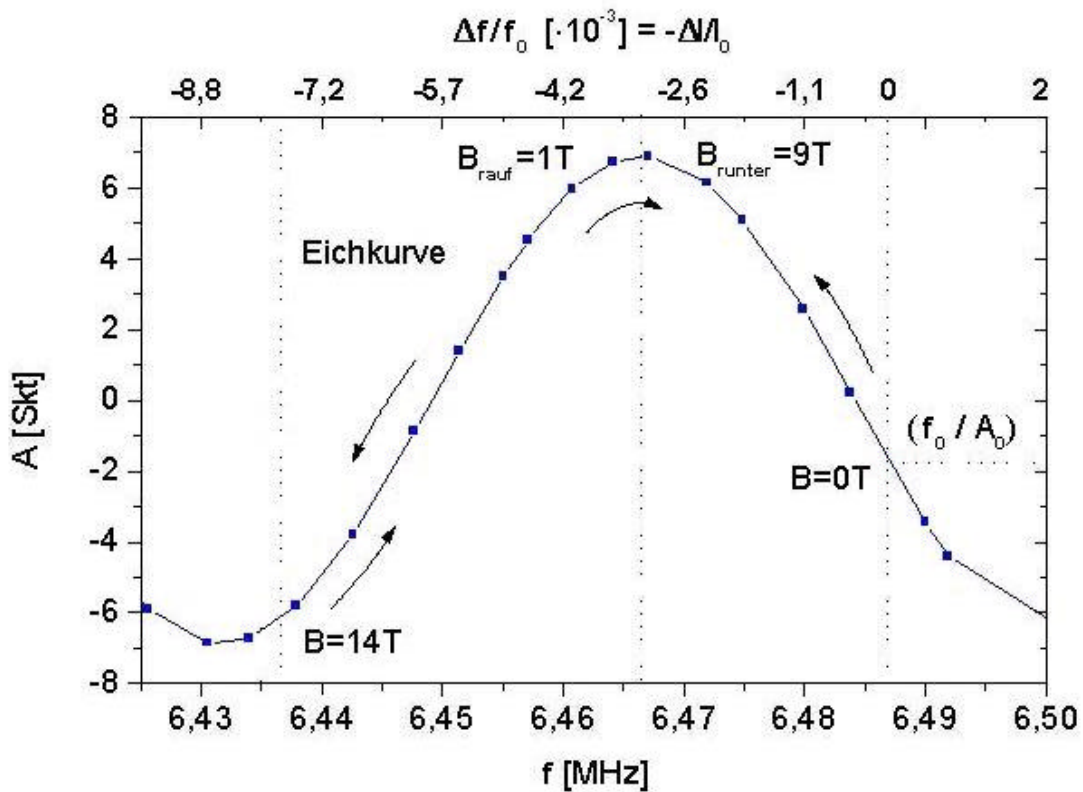


Abb.6.12: Die Eichkurve aus Abbildung 6.11. Die gepunkteten Geraden illustrieren Eckpunkte aus der Abbildung 6.10. Zusätzlich ist an der oberen Abszisse die zur gemessenen Frequenzänderung zugehörige relative Längenänderung der Probe aufgetragen.

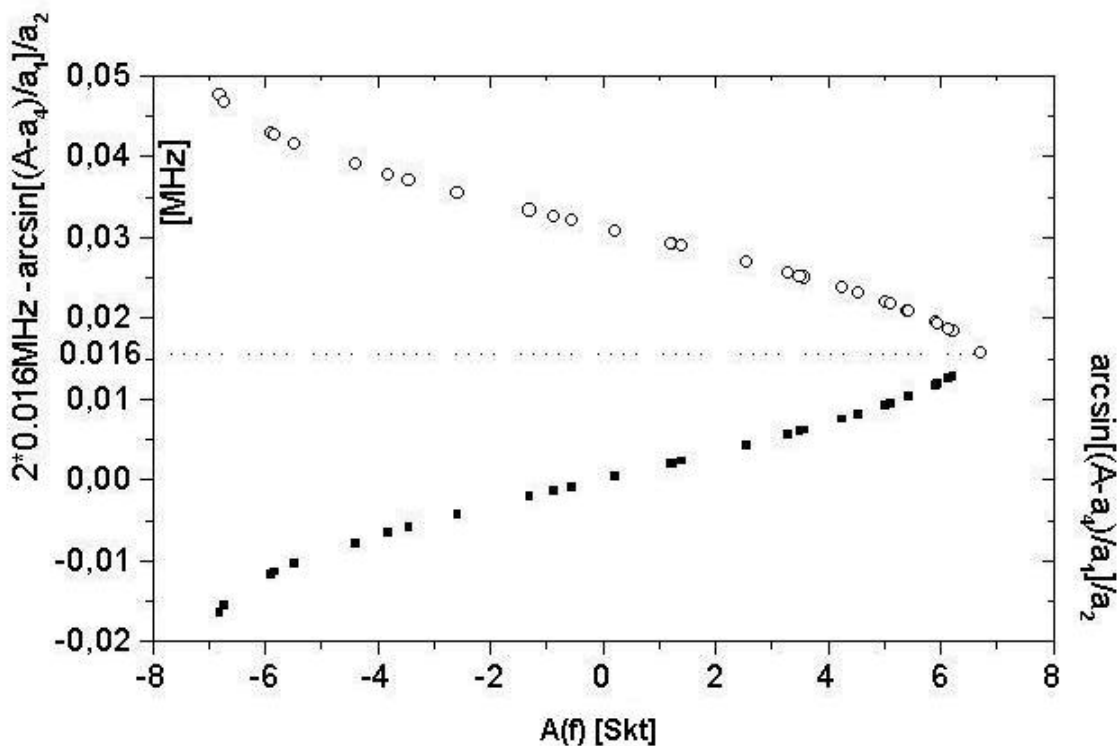


Abb.6.13: Die abschnittsweise definierte Umkehrfunktion zur Eichung aus Abbildung 6.11. Die rechte Ordinatenbeschriftung bezieht sich auf den unteren Abschnitt, die linke Ordinatenbeschriftung entsprechend auf den oberen.

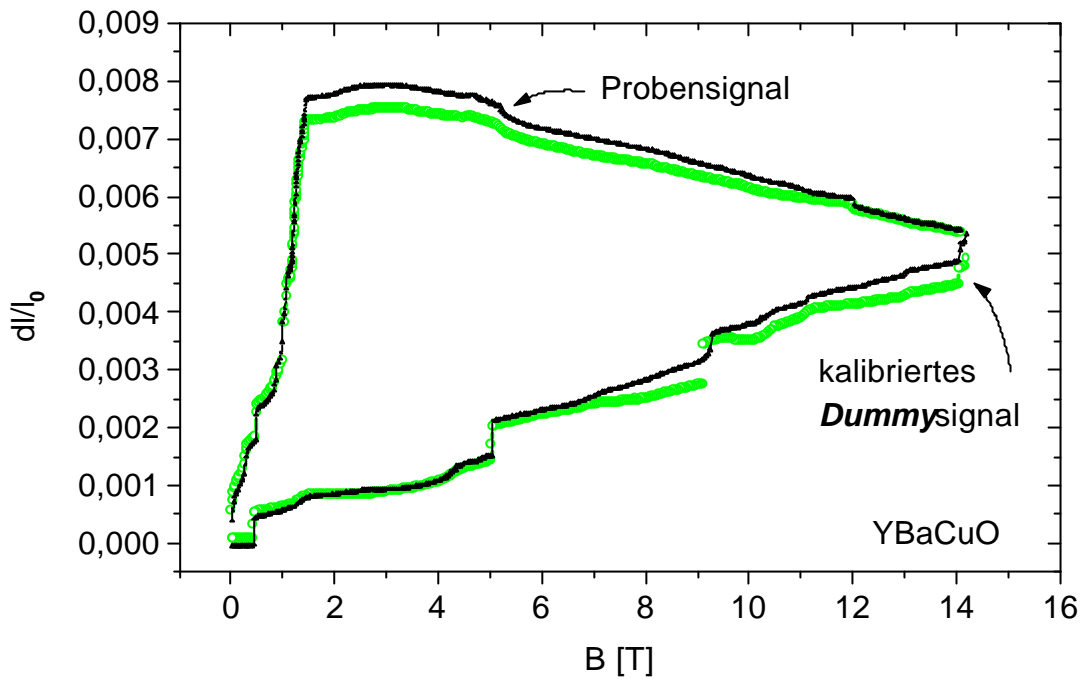


Abb.6.14: Das kalibrierte Dummysignal ist zum Vergleich dem Probensignal gegenübergestellt.

Das kalibrierte Dummy-Signal verläuft im Ganzen gesehen unterhalb der Kurve des geregelten Probensignals. Stellenweise ist eine Abweichung von bis zu einigen Prozent realisiert. Ein Grund für die stärkere Abweichung liegt in dem Auswerteverfahren. Bei der Wahl der Transducer sind die Resonanzfrequenzen entsprechend passend zu wählen. Durch nicht identische Resonanzfrequenzen stellt die Eichkurve in Abbildung 6.11 keine typische harmonische Funktion dar, sondern erfährt eine Amplitudenmodulation, bedingt durch eine Schwebung. Dies gilt es normal zu berücksichtigen.

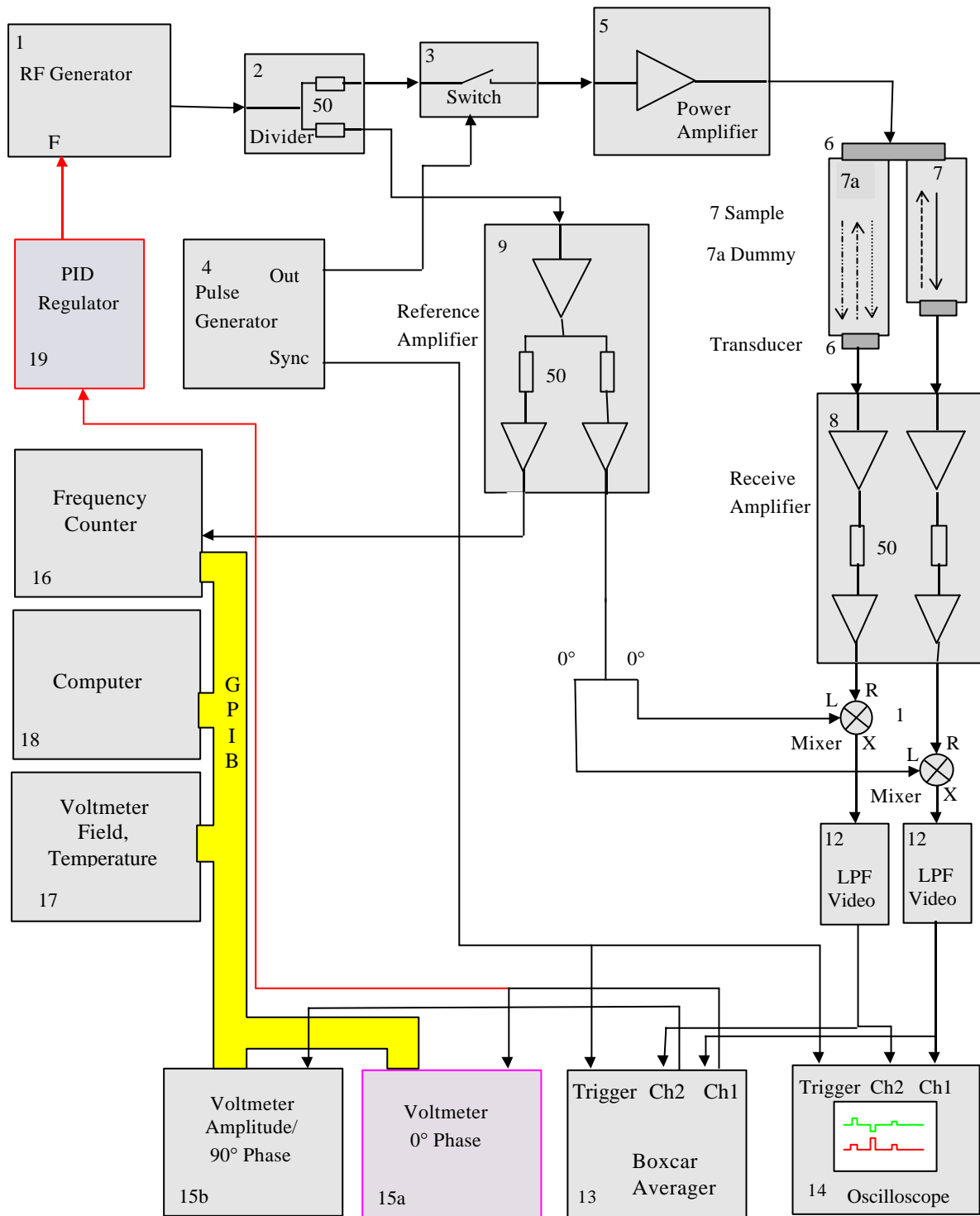


Abb.6.15:Die Magnetostruktionsmessmethode basierend auf dem Homodyn-Verfahren (siehe Abbildung 6.2). Die Dilatation ist hier für das gekoppelte System veranschaulicht.



## 6.6 Der Suszeptibilitätsaufbau

Von den beiden anderen thermodynamischen Größen, die zur Untersuchung des metamagnetischen Verhaltens in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  gemessen wurden, wird ein kurzer Überblick über den apparativen Aufbau gegeben.

Kernstück der Suszeptibilitätsapparatur bildet eine Induktionsmessbrücke der Firma *Barras Provence*, die eigentlich eine Quadriga elektronischer Baugruppen ist. So beinhaltet sie einen Frequenzgenerator in Kombination mit einer Konstantwechselstromquelle zur Feldmodulation der Primärspule, eine Abgleicheinheit, die zur Regulierung des verstimmtten, das heißt nicht homogen gewickelten Gradiometers, der aus einer Aufnehmer- und einer Kompensationsspule besteht, dient und letzten Endes den Zwei-Phasen-*lock-in*-Verstärker. Die Modulationsfrequenz ist fest auf 122Hz eingestellt, und der Spulenstrom ist grob einstellbar in den Bereichen 10mA, 1mA, 100 $\mu$ A, 10 $\mu$ A, 1 $\mu$ A und feiner verstimmtbar durch entsprechende Dämpfungsglieder. Das durch die Feldmodulation induzierte Suszeptibilitätssignal wird über die Abgleicheinheit dem *lock-in*-Verstärker zugeführt. Die Kompensation der nicht baugleichen Aufnehmerspulen erfolgt durch eine Grobeinstellung in den Bereichen 1000 $\mu$ H, 100 $\mu$ H, 10 $\mu$ H, 1 $\mu$ H und 0.1 $\mu$ H mit unterteilter diskreter Feinabstimmung und ist somit zur Messung kleiner Induktivitäten geeignet. Der Zwei-Phasen-*lock-in*-Verstärker, arbeitet nicht wie herkömmliche *lock-in*-Verstärker nach dem Prinzip der Quadratur sondern mit einer Phasennullregelung. Die Suszeptibilität wird elektronisch als komplexe Größe verarbeitet. Man hat daher ein zur Modulationsfrequenz  $0^\circ$  phasenverschobenes „in phase“-Signal, das am *Barras*brückenausgang „Phase“ entnommen werden kann und dem Realteil entspricht und einen um  $90^\circ$  phasenverschobenen Imaginärteil, der am Ausgang „Quadratur“ anliegt. Zu Beginn einer jeden Messung muss der Imaginäranteil kompensiert werden, sodass möglichst das gesamte detektierte Signal als Phasensignal, Realteil, vorliegt. Dies geschieht durch eine Verstimmung des internen Koordinatensystems mittels einer Phasendrehung. Es sei angemerkt, dass die Ausgänge zwar proportional dem Real- beziehungsweise Imaginärteil sind, dass die Proportionalitätskonstanten aber unterschiedlich stark gewichtet sind. Sollte eventuell ein Phasengang während der Messung auftreten, so ist es anschließend nicht ohne weiteres möglich aus dem „Phase“- und „Quadratur“-Signal diesen Effekt mathematisch herauszutransformieren.

Das Spulensystem bestand aus einer Aufnehmerspule und einer gegengewickelten Kompensationsspule. Es handelte sich hierbei aus Platzgründen nicht um ein herkömmliches Gradiometer erster Ordnung, bei dem die in Reihe geschalteten Spulenhälften in einem gewissen Abstand axial voneinander verschoben sind, bei zugrundegelegter Zylindersymmetrie, sondern um einen Aufbau, in dem die Kompensationsspule radial versetzt wurde. Die innere Aufnehmerspule mit einem Innendurchmesser von 5mm besaß, um eine möglichst große Empfindlichkeit zu erzielen, 1022 Windungen gewickelt aus 20 $\mu$ m Kupferlackdraht. Anschließend folgte eine Klebeschicht der Dicke 0.5mm aus Zweikomponentenepoxidharzkleber und dann die Kompensationsspule, die idealer Weise aufgrund ihres größeren Querschnitts im Verhältnis entsprechend weniger Windungen benötigt, um das von außen angelegte Magnetfeld herauszufiltern. Das als Dipol angenäherte magnetische Moment der Probe sollte dann in der inneren Spulenhälfte ein wesentlich größeres Signal induzieren, als in der äußeren, sodass eine Nettospannung ungleich null resultiert. Aufgrund des extern möglichen Abgleiches mittels der Suszeptibilitätsmessbrücke, musste keine besondere Sorgfalt auf eine ideale Kompensation der Spulenhälften gelegt werden. Dennoch erwies es sich, dass in den Experimenten ein Hintergrund auftrat, der nicht erklärt werden konnte. Ob es sich hierbei um ein nicht einwandfreies Funktionieren der Messbrücke handelt, bleibt zu untersuchen. Die Messungen, bei denen ein Hintergrund die

Messdaten verfälschte, wurden mit nach dem Feld abgeleiteten Magnetisierungsdaten, die keinen Offset aufwiesen, renormiert. So konnte der Hintergrund hinreichend eliminiert werden.

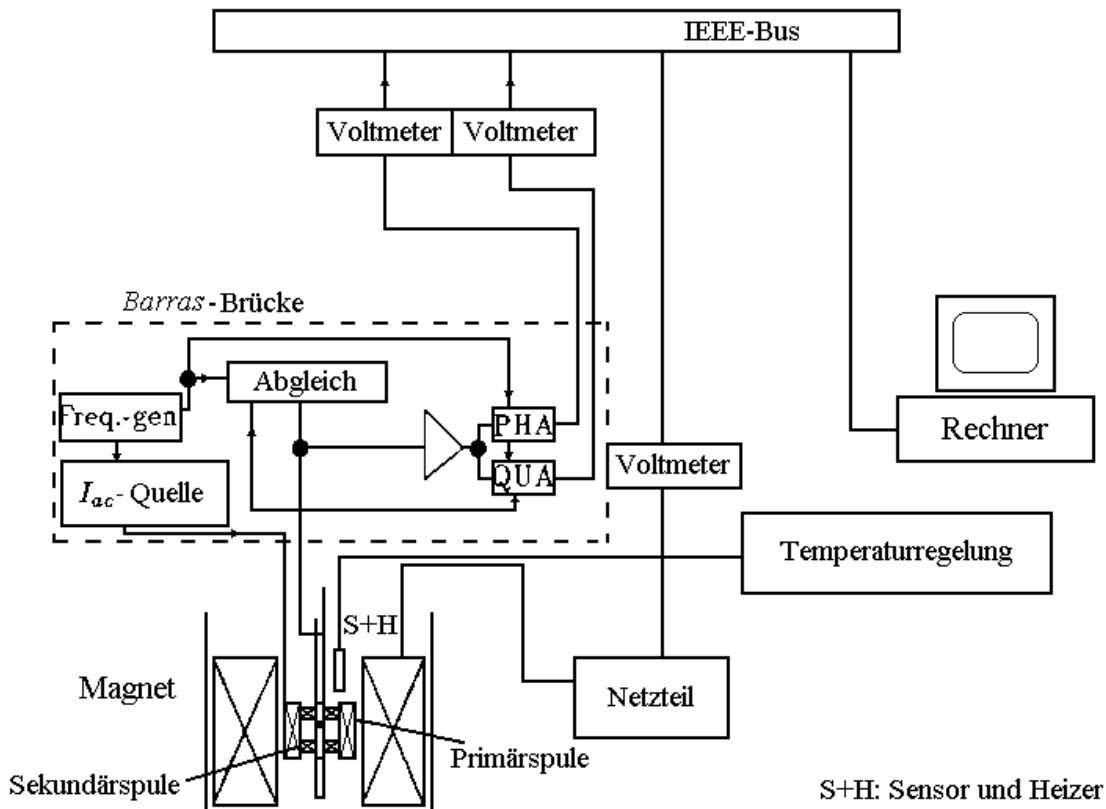


Abb.6.16: Schematisch ist der apparative Aufbau und die Messelektronik gezeigt. Die Komponenten innerhalb des gestrichelten Rechtecks bilden die Suszeptibilitätsmessbrücke.

## 6.7 Der Magnetisierungsaufbau

Der Magnetisierungsaufbau entspricht dem des von Foner entwickelten Typs eines *vibrating sample magnetometer*. Die Probe wird periodisch in einem Gradiometer erster Ordnung mit einer Hubfrequenz von wenigen Hertz durch die Aufnehmerspulen geführt. Die Modulation der Probenposition bei äußerem Magnetfeld induziert in den Spulen eine Spannung, die der negativen zeitlichen Änderung des Flusses proportional ist. Der Fluss ist wiederum proportional zum Magnetischen Moment der Probe. Die für den Hub verantwortliche Motorsteuerung wird durch die interne Referenz des *lock-in* betrieben, der das von der Sekundärspule detektierte Signal demoduliert – siehe Abbildung 6.17.

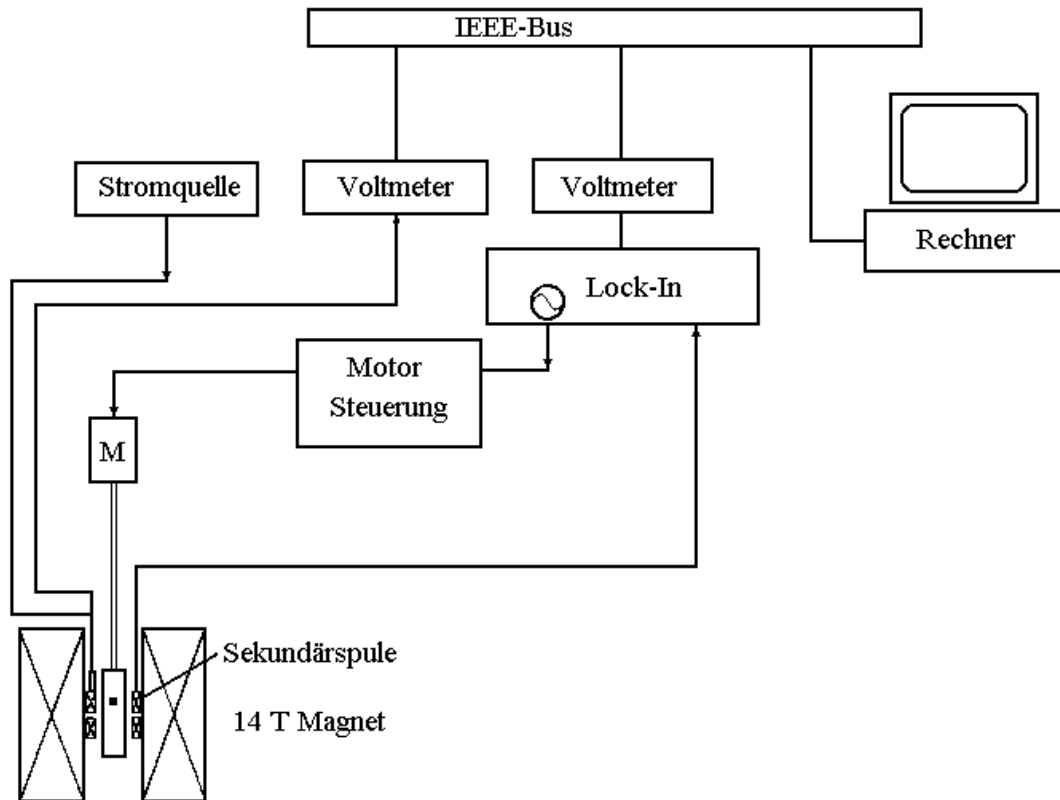


Abb.6.17: Die Elektronik zur Messung der Magnetisierung.

## 6.8 Kryogenik und Tieftemperaturequipment

Sämtliche Experimente betreffend  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , die in dieser Arbeit vorgestellt werden, sind in einem Dewarsystem mit VTI (*variable temperature insert*) und integriertem 16-Tesla-Supraleitungsmagneten der Firma *Oxford* ausgeführt worden. Dabei kann eine Aussteuerung des supraleitenden Magneten bis 14 Tesla im Normalbetrieb erfolgen, das heißt, das Kühlmittel  $\text{He}^4$  hat eine Temperatur von 4.2K. Die 16 Tesla sind hingegen nur durch ein Abkühlen der Heliumtemperatur auf unter 2.2K zugänglich, dem Eintritt in die Superfluidität. Erreicht wird dies durch das Zuschalten der sogenannten  $\lambda$ -Schleife. Dieser Betriebsmodus wurde nicht ausgenutzt, da er ein erhöhtes Risiko des Quenchens des Magneten, des Überganges in den normalleitenden Zustand, beinhaltet, und zudem der um zwei Tesla erweiterte Feldbereich keine zusätzlichen Resultate erbracht hätte. Der Heliumgasdruck des VTI wird über ein Nadelventil gedrosselt, das den Heliumdurchsatz einer Kapillare, die das Heliumreservoir des 16-Tesla-Magneten mit dem evakuierten Probenraum kurzschließt, regelt.

Neben dem bereits erwähnten Kapazitätsthermometer wurde ein Carbonsglas thermometer zur absoluten Temperaturbestimmung in den Probenstab eingebaut.

## 7. Die Messzelle

Kernstück des Probenstabes zur Untersuchung des metamagnetischen Verhaltens bildete die Messzelle, mit der die Probe eingeklemmt wurde. Es wird daher hier nur dieses eine wichtige Bauteil vorgestellt, zusammen mit einer Überlegung, die die gewählte Konstruktion zur uniaxialen Klemmvorrichtung verdeutlichen soll.

### 7.1 Uniaxialer Druck

In den letzten beiden Jahrzehnten sind uniaxiale Druckmessungen populärer geworden. Bieten sie doch im Gegensatz zu hydrostatischen Drücken ein Konzept der Struktur oder dem Mechanismus eines zu analysierenden physikalischen Problems bei einigen Forschungsgebieten, wie zum Beispiel den Transporteigenschaften von Halbleitern, näher zu kommen. Wenn hydrostatischer Druck die Symmetrieeigenschaften eines Kristalls nicht zu ändern vermag, so lassen sich keine weiteren Informationen gewinnen. Uniaxialer Druck bietet nun ein Werkzeug, das in denkbar einfacher Weise eine Symmetrieentartung aufheben kann. So einfach die Idee ist, so schwierig ist ihre reale Umsetzung. Hat man bei hydrostatischen Drücken die Möglichkeit an Proben hohe Drücke bis GPa anzulegen, ohne die Probe zu beschädigen, kann bei wesentlich kleineren uniaxialen Drücken die Probe zerbrechen. Das hat seine Ursache zumeist im Apparativen. Sind die Stempelflächen nicht exakt parallel zu den Probenflächen und ist die Oberflächenrauigkeit derart, dass eine Reibung Scherkräfte bewirkt, vermögen diese Spannungen den Kristall zu spalten oder zu zerbröseln. Auch während dieser Arbeit sind die verwendeten Proben über kurz oder lang dem Experimentieren unter uniaxialem Druck zum Opfer gefallen. Viel Sorgfalt wurde daher bei der Probenpräparation auf das Polieren gelegt. Die Parallelität sollte so exakt wie möglich und die Oberflächenkörnung so gering wie möglich gewährt sein. Hinzu kommt, dass die zum Druck senkrechten Flächen die gleichen Anforderungen an die Ausrichtung erfüllen müssen und somit keine Verkippung aufweisen dürfen. Bei geneigten Seiten ist das Schermodul nicht mehr zu vernachlässigen. Besteht die beste Umsetzung für uniaxiale Drücke bei einem hohen Probenlänge – zu – Probenbreite – Verhältnis, ist dies jedoch unter Umständen experimentell oder kristallzüchtungsbedingt nicht immer zu realisieren. Die hier in dieser Arbeit verwendeten  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Proben waren einerseits Einkristalle von P. Lejay und mit den Maßen von ca.  $2 \times 4 \times 3 \text{ mm}^3$  (Länge a-Achse  $\times$  Länge b-Achse  $\times$  Länge c-Achse) von einem eher ungünstigen Länge-zu-Breite-Verhältnis, andererseits von Y. Onuki. Die Onuki-Probe wies ein etwas günstigeres Verhältnis bei den Maßen von ca.  $1.5 \times 1.5 \times 2.5 \text{ mm}^3$  auf. Der Einfluss der ungünstigen Probengeometrien lässt sich verringern, wenn man die Reibung durch das Einbringen eines weichen Metalls zwischen Stempel- und Probenoberfläche herabsetzt. Geeignet sind hierzu Metalle wie Gold, Zinn, Indium oder Blei. Erwähnt werden sollte, dass die Proben von Lejay eine wesentlich größere Neigung zum Spalten entlang der a-b-Ebene besaßen, als die Onuki-Probe. Diese Tatsache machte sich unter Umständen schon beim Polieren bemerkbar. Allerdings spalteten die Einkristalle so glatt, dass ein weiteres Polieren nicht mehr von Nöten war, und schon der hervorragende optische Glanz der Spaltflächen für eine ideale Parallelität und die geringste Oberflächenrauigkeit garantierten. Bei den Druckexperimenten zeigten diese Proben auch eine überraschend hohe Lebensdauer, insofern, als dass sie das mehrmalige Reproduzieren eines Experimentes gestatteten, wiesen aber dann mit ihren Maßen von  $2 \times 4 \times 0.5 \text{ mm}^3$  ein denkbar schlechtes Länge-zu-Breite-Verhältnis auf.

Für die Realisierung der Idee, das Verhalten von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  unter uniaxialem Druck in der metamagnetischen Region zu studieren, wurde eine Zylindermesszelle aus CuBe gefertigt. Das Material ist durch seine hohe Festigkeit und Elastizität bis hinab zu einem Kelvin

hervorragend geeignet. Für die Suszeptibilitätsmessungen sind ebenfalls dessen unmagnetische Eigenschaften vorteilhaft. Allerdings zeigt es eine im Vergleich zum reinen Kupfer 100fach geringere Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  bei tiefen Temperaturen mit  $\lambda=2\text{W/Km}$  [Gröger81].

Das Tempern zur Härtung des Materials erging für 3 Stunden in einem auf  $325^\circ\text{C}$  vorgeheizten Ofen unter Luftatmosphäre. Anschließend wurden die Werkstücke in kaltem Wasser abgeschreckt, wobei das Material eine bis zu 3mal höhere Vickershärte und 5mal größere Zugfestigkeit erhält [DKI].

## 7.2 Die Idee

Um den Sinn und die Funktionsweise der gebauten Messzelle besser verstehen zu können, muss hier erneut ein kleiner Vorgriff auf spätere Kapitel erfolgen, die sich mit den physikalischen Eigenschaften der Substanz  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  befassen. Dort finden sich in der Abbildung 8.8 die relativen Volumenänderungen, die zum einen über die Temperatur und zum anderen über das Magnetfeld gemessen wurden. Die Probe sollte in der Messzelle von Zimmertemperatur auf die Basistemperatur von  $1.4\text{K}$  heruntergekühlt werden, wobei sie unterhalb von  $70\text{K}$  eine relative Kontraktion von zirka 1.6 Promille erfährt. Fährt man nun das Magnetfeld bei  $1.4\text{K}$  von 0 auf  $12\text{T}$ , beobachtet man eine relative Volumenexpansion von ungefähr 1.9 Promille [Lacerda90]. Das Interesse galt daher der Untersuchung der Reaktion von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , wenn man den für die Probenexpansion verantwortlichen internen Zug, das heißt, den von der Probe entwickelten Zug entlang der c-Achse, durch einen externen Druck jederzeit kompensiert. Dabei sollte der externe Druck wiederum selbst von der Probe erzeugt werden. Die Eigenart der Messzelle wäre somit, dass man mit ihr nur passiv uniaxialen Druck ausüben kann. Dies sollte wie folgt geschehen: Ist die Probe bei der Basistemperatur in dem Zustand des geschrumpften Volumens, so führt man einen Stempel auf die Probe, der in der dortigen Position arretiert wird. Die Verankerung dieses Stempels besorgt ein Feingewinde. Bei einer Erhöhung des Magnetfeldes sorgt die Magnetostriktion dafür, dass der Stempel mit einem kontinuierlich anwachsenden Druck – siehe Abbildung 10.4 – belastet wird. Diesem Druck, bei  $14\text{T}$  liegt er in der Größe um  $2\text{kbar}$ , muss der Stempel standhalten.

- Kurz gesagt: Es sollte das Volumen der Probe konstant gehalten werden, indem man den Ausdehnungsfreiheitsgrad entlang einer Kristallrichtung unterbindet.

## 7.3 Die Konstruktion

Die Messzelle mit einer Wandstärke um  $7\text{mm}$  führt hierzu jeweils an der Kopf- und Fußseite ein etwa  $17\text{mm}$  langes  $\text{M9}\times 0.5\text{er}$  beziehungsweise  $15\text{mm}$  langes  $\text{M10}\times 0.5\text{er}$  Gewinde. Einerseits zur Höhenverstellung des Sockels, auf dem die Probe plaziert wird und andererseits, wie eben geschildert, zur Arretierung des Stempels. Von oben wurde eine  $1\text{-}2\text{mm}$  dicke  $\text{CuBe}$ -Scheibe mit seitlichen Zapfen auf die Probe gelegt. Diese Zapfen wandern in Nuten, die in die Messzelleninnenwände eingefräst wurden und zur vertikalen Führung des Scheibchens dienen.

Die bevorzugte Bauweise mit dem Halbkugelgelenk erklärt sich aus dem experimentellen Prozedere: Der Stempel musste während der Messung bei einer Temperatur von  $1.4\text{K}$  angezogen werden, und war zu diesem Zweck an einem starren massiven VA-Rohr mit Madenschrauben fixiert. Eine Quetschdurchführung isolierte den Experimentierraum vom Atmosphärendruck. Bedingt durch die Länge des Rohres von über einem Meter, ergab sich durch das verzogene Material ein seitlicher Schlag beim Drehen. Um die Druckrichtung an der Probe nicht durch diesen seitlichen Schlag zu verfälschen, wurde die Feingewindeführung kurz vor dem Probensitz eingearbeitet, und dafür gesorgt, dass der geführte Teller wenig Spiel

hat, um ein Verkippen zu vermeiden. Die Führung musste aber noch soviel Toleranz aufweisen, dass ein problemloses Verschieben des Tellers gewährleistet war. Die Halbkugel wurde als Zwischenglied eingesetzt, damit bei eventuell vorhandenem Restschlag des oberen Stempels der Teller nicht punktuell belastet wird und möglicherweise verkeilt. Zur Vorspannung wurde zentrisch in den oberen Teil des Stempels eine Vertiefung von wenigen Millimetern zur Aufnahme einer CuBe-Feder gebohrt.

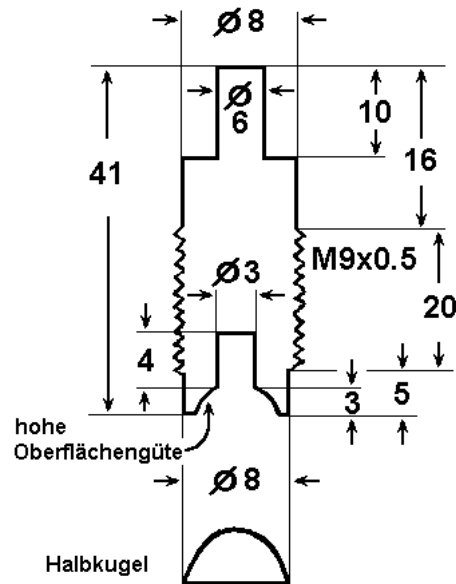


Abb.7.1: Der obere Stempel, der bei 1K auf die Probe geführt wurde. Die Vertiefung mit einem Durchmesser von 3mm diente zur Aufnahme einer CuBe-Feder, die eine Vorspannung zur Probenfixierung ermöglichte.

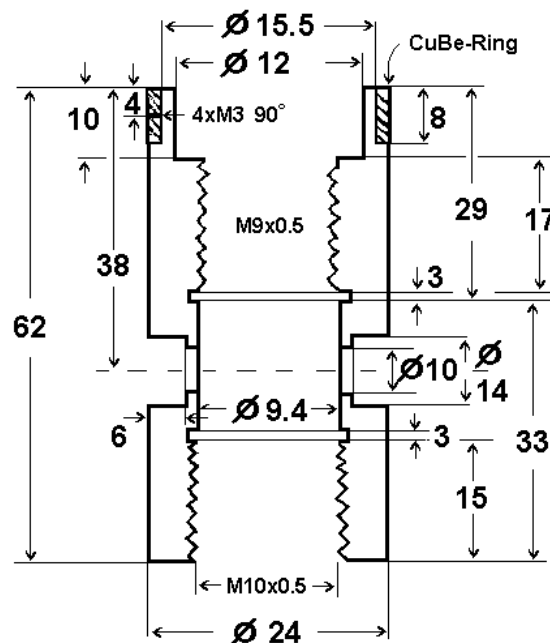


Abb.7.2: Die Messzelle: Die seitlichen Fenster mit einem Durchmesser von 10mm gewährten einen guten Probenzugang zum Befestigen der Ultraschallwandler sowie der elektrischen Zuleitungen.

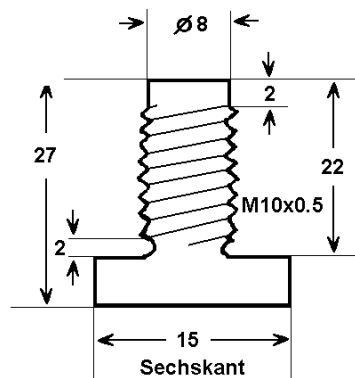


Abb.7.3: Der durch ein Feingewinde höhenverstellbare untere Stempel.

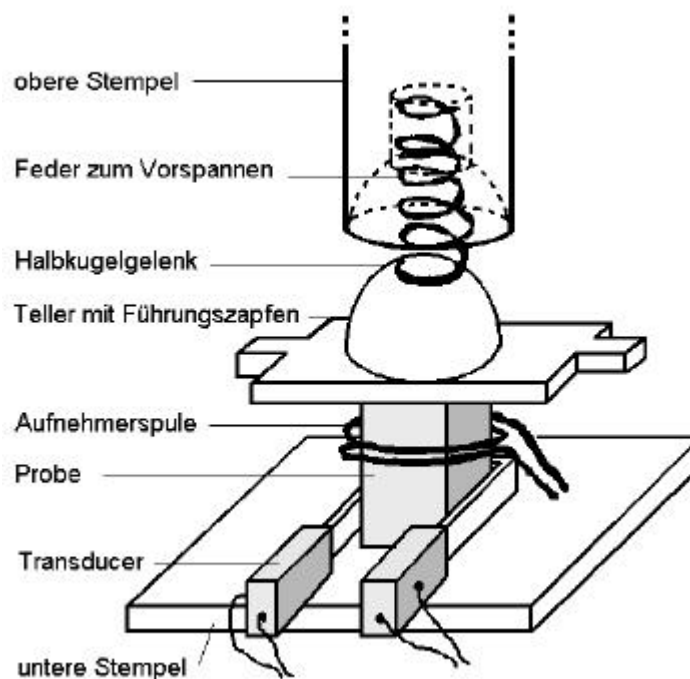


Abb.7.4: Sehr schematisch ist hier der Einbau einer Probe in die Klemmvorrichtung der Messzelle skizziert. Die Transducerhalterung, sowie der sich um die Probe windende Draht, sollen die Magnetostruktions- und Suszeptibilitätsmessung andeuten. Die Probe befindet sich im leicht vorgespannten Zustand. Der Teller direkt oberhalb der Probe zeigt die Führungszapfen, die in seitlichen, in der Messzelle eingefrästen, Nuten laufen, damit beim Andrehen des oberen Stempels die Probe nicht verdreht wird. Der untere Stempel, auf dem die Probe ruht, hatte im verwendeten Aufbau eine runde Geometrie (siehe Abbildung 7.3), das ist hier aber ohne Belang.

## 8. CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> und seine physikalischen Eigenschaften

Eine Einführung in die physikalischen Eigenschaften dieser Verbindung soll als Fundament für die hier in dieser Arbeit vorgestellten Messungen der Magnetostriktion, des Ultraschalls und der Suszeptibilität an diesem hochkorrelierten System mit Schwere-Fermionen-Charakter dienen. Neben den allgemeinen physikalischen Transport- und thermodynamischen Größen erfolgt auch eine Darstellung aller der bis dato in der Literatur veröffentlichten Druckexperimente, die im Hinblick auf Verständnis und Komplettierung in Relation zu der hiesigen Arbeit erwähnt und behandelt werden sollten.

### 8.1 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>

Die Kristallstruktur ist tetragonal mit  $D_{4h}^{17}$ -Symmetrie und besitzt das allen Kondogittern gemeinsame Inversionszentrum, hier eines von zwei Ceratomen der Elementarzelle [Ballestracci78]. Die a-Achse der Basisebene beträgt 4.1Å und die c-Achse 9.78Å [Severing89]. Das Cer hat eine 4f<sup>1</sup>-Konfiguration und liegt somit in einer dreifach positiven Ionenladung vor.

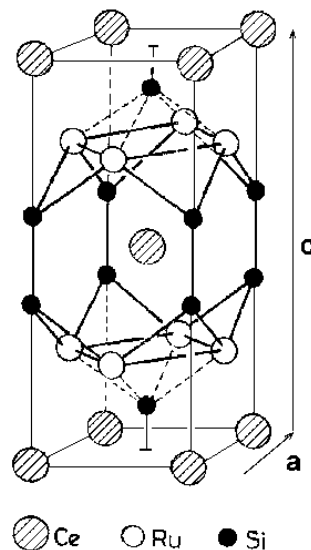


Abb.8.1: Die Einheitszelle von CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. Die Gitterparameter betragen 4.1Å entlang a und 9.78Å entlang der c-Richtung.

Die 14fache Entartung des 4f<sup>1</sup>-Zustandes wird durch die Spin-Bahnkopplung und die Aufspaltung im Kristallfeld aufgehoben. Die Aufspaltung des nach der Hundschen Regel energetisch niedrigeren  $j = \frac{5}{2}$ -Zustandes in drei Dubletts veranschaulicht das folgende Termschema.

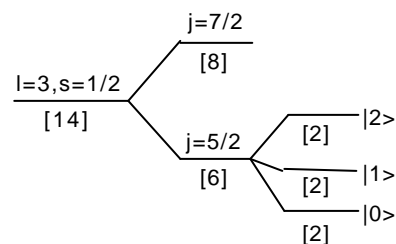


Abb.8.2 Das Termschema des 4f<sup>1</sup>-Zustandes durch die Einbettung in ein Kristallfeld mit  $D_{4h}^{17}$ -Symmetrie.



Die Ziffern unter den Niveaus kennzeichnen den Entartungsgrad. Der Grundzustand des Systems lässt sich dann aufgrund der tetragonalen Kristallsymmetrie unter Verwendung der reduzierten Diracnotation durch die Funktion

$$|0\rangle_{\pm} = \pm a_1 \left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle \mp a_2 \left| \mp \frac{3}{2} \right\rangle$$

darstellen, wobei nur die  $j_z$ -Komponente in den Ketts berücksichtigt wurde. Die beiden anderen Dublettzustände sind demgemäß

$$|1\rangle_{\pm} = \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle$$

und

$$|2\rangle_{\pm} = \pm a_2 \left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle \pm a_1 \left| \mp \frac{3}{2} \right\rangle$$

mit der Normierungsbedingung  $a_1^2 + a_2^2 = 1$  [Matsuhira97] [Lacerda89].

Experimentell wurden die Normierungsfaktoren für den Grundzustand aus den Koeffizienten der linearen thermischen Expansion zu  $a_1 = 0.96$  und  $a_2 = 0.28$  bestimmt [Lacerda89] [Lehmann87].

Die Term aufspaltung zwischen dem ersten und dem zweiten Niveau, resultierend aus Daten der spezifischen Wärme, beträgt ca. 220K und zwischen dem ersten und dritten ungefähr 1000K [Besnus85]. Die oberen beiden Dublettzustände besitzen bei Temperaturen unterhalb von 5K, wie sie den Bedingungen hiesiger Arbeit entsprechen, keine physikalische Relevanz.

Die bei externem Magnetfeld beobachtbare Kopplung zwischen Feld und magnetischem Moment der f-Elektronen führt zu dem Zeemanterm

$$\langle 0 | H_Z | 0 \rangle = \langle 0 | -g_j \mu_B B m_j | 0 \rangle = -g_j \mu_B B \sigma \left( \frac{5}{2} a_1^2 - \frac{3}{2} a_2^2 \right).$$

$\sigma$  nimmt die Werte  $\pm 1$  an und erhielt diesbezüglich den Namen Pseudospin des Dubletts.

Als Anzeichen des Schwere Fermionen Verhaltens kann ein Maximum in spezifischen Wärmemessungen von Besnus et al. [Besnus85] interpretiert werden. Es handelt sich hierbei um eine neben der Schottky-Anomalie bei 84K, die die Popularisierung des 220K entfernten Dublettniveaus repräsentiert, beobachtete zweite Anomalie bei  $T_M=11K$ , die theoretisch durch ein  $S=1/2$ -Kondo-Modell erklärt wird. Dem entspricht, wie exakte Rechnungen über einen Bethe-Ansatz nach Melnicov [Melnicov82] [Desgranges82] zeigten, eine Kondotemperatur von  $T_K = 24.4K$ . Die Übereinstimmung ist jedoch nicht sehr zufriedenstellend und die Ergebnisse können auch durch magnetische Korrelationen beschrieben werden. Die experimentellen Daten entsprechen einer spezifischen Wärme, die auf den Einfluss des f-Elektronencharakters zurückgeführt werden kann, das heißt, sie sind das Resultat nach Subtraktion des Gitter- und Elektronenbeitrages, den Besnus et al. aus Messungen an dem homologen Matrixsystem  $LaRu_2Si_2$  gewannen. Der Sommerfeldkoeffizient der spezifischen Wärme beträgt unterhalb von 2K  $\gamma = 310 \text{ mJ/molK}^2$ . Dieses Ergebnis ist aber durch vergleichbare Messungen von anderen Forschergruppen nach oben hin korrigiert worden und bewegt sich im allgemeinen im Intervall zwischen  $\gamma = 350 \text{ mJ/molK}^2$  und  $\gamma = 385 \text{ mJ/molK}^2$  [Thompson85] [Aoki98] [Fisher91]. Die Übereinstimmung zwischen diesen experimentellen Resultaten und dem theoretisch approximierten Wert von  $\gamma = RT/3T_K(24.4K) = 356 \text{ mJ/molK}^2$  [Besnus85] ist hinreichend.

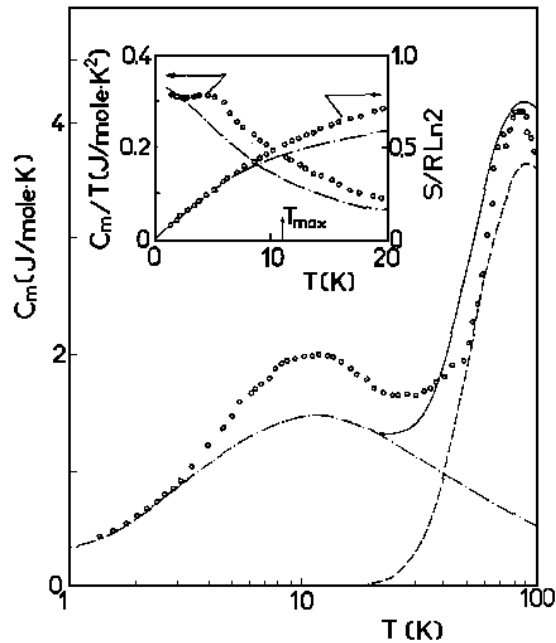


Abb.8.3: Die spezifische Wärmemessung von Besnus. Die gestrichelte Kurve repräsentiert eine Schottky-Rechnung. Die punktgestrichelte Kurve beinhaltet das  $S=1/2$ -Kondomodell.

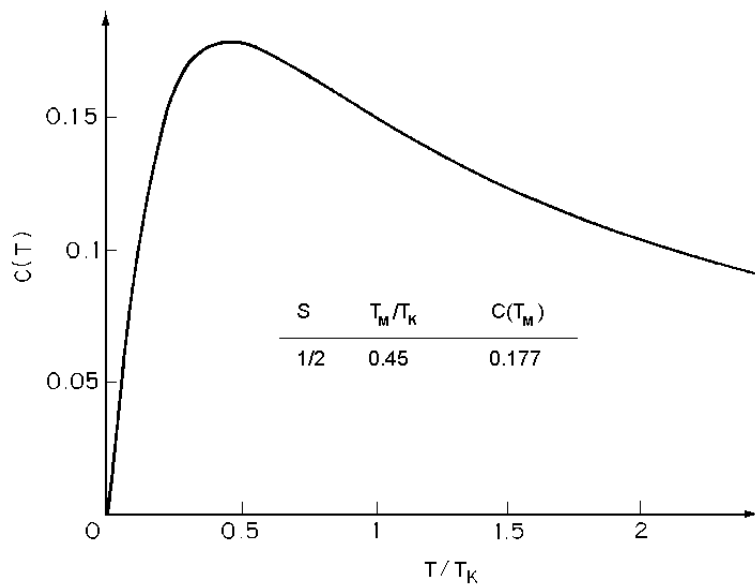


Abb.8.4: Die spezifische Wärme für eine  $S=1/2$ -Kondo-Verunreinigung aus [Tsvelick83].  $T_M$  charakterisiert das Maximum der spezifischen Wärme, die hier in dimensionslosen Einheiten dargestellt ist.

Transportmessungen, durchgeführt von Onuki et al. [Onuki92], belegen das Fehlen eines Kondomaximums. Dies ist für Schweres Fermionen Verhalten eher atypisch, findet sich aber auch noch bei Verbindungen auf Uranbasis wie  $UPt_3$  und  $URu_2Si_2$ . Jedoch bildet sich bei etwa 25K mit Stromrichtung entlang der c-Achse eine deutliche Schulter aus. Dieses Verhalten konnte auch von Besnus et al. [Besnus85] bestätigt werden. Hampel hat aus Spektromettermessungen im fernen und mittleren Infrarot die Abwesenheit der Widerstandsanomalie, die normalerweise auf die einsetzende Kondospinflipstreuung verweist, und dessen Temperatur  $T_K$  den Eintritt in das Kondoregime markiert, darauf zurückgeführt, dass die magnetischen Streuprozesse, im Gegensatz zum üblichen Schwere Fermionen Verhalten, in einem größeren Temperaturbereich existieren [Hampel 93], in Analogie zur Auslegung experimenteller Befunde an  $URu_2Si_2$  von Bonn et al. [Bonn88]. Nimmt man den Widerstandsabfall aber als Indiz hierfür, so ergibt sich eine zufriedenstellende

Übereinstimmung im Vergleich zu den zuvor aufgeführten Daten der spezifischen Wärme unter Zuhilfenahme des theoretischen Kalküls  $T_M = T_K \cdot 0.45$  (siehe Abb.8.4), obwohl dieses mittels Bethe-Ansatz erzielte Resultat streng genommen nur für den Ein-Ionen-Kondoeffekt unter Vernachlässigung der eigentlich relevanten magnetischen RKKY-Wechselwirkungen Gültigkeit besitzt, erfährt es doch eine Bestätigung durch Neutronenstreudaten, auf die des Weiteren noch kurz eingegangen wird.

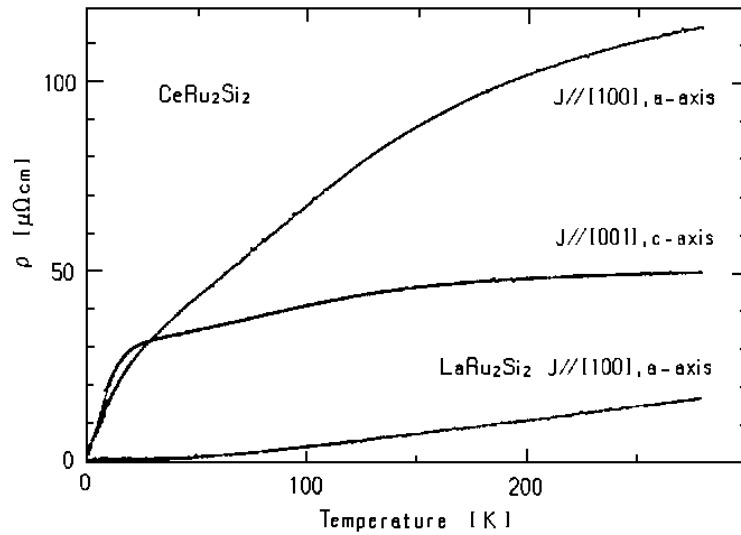


Abb.8.5: Der temperaturabhängige elektrische Widerstand für die verschiedenen kristallinen Richtungen und die homologe Matrix  $LaRu_2Si_2$ . Die Daten entstammen der Referenz [Onuki92].

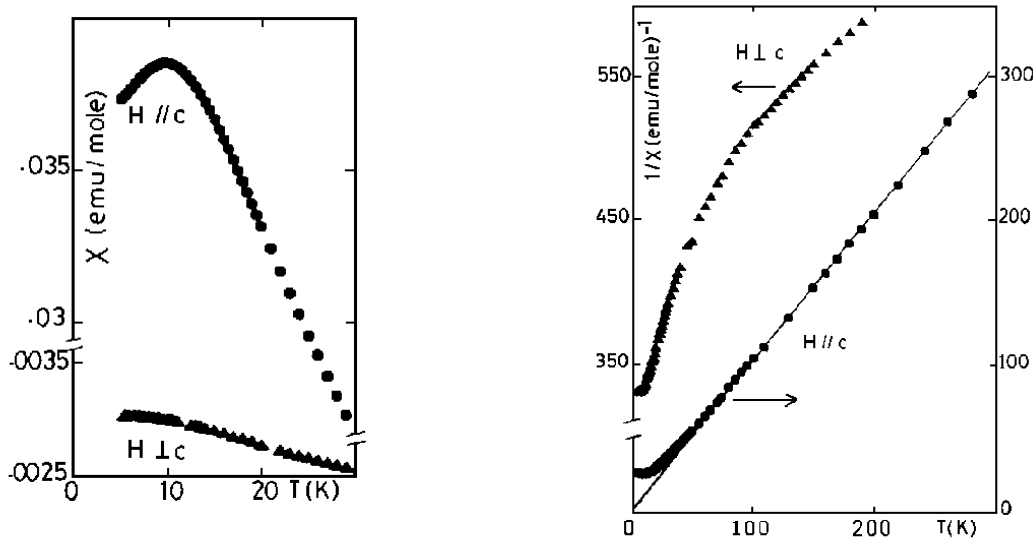


Abb.8.6(links): Die Suszeptibilitäten nach [Haen87] für beide Kristallrichtungen. Die große Anisotropie wird durch eine unterschiedliche Achseneinteilung verdeutlicht.  
Abb.8.6(rechts): Die Daten der inversen Suszeptibilität ebenfalls nach [Haen87].

Hingegen zeigen gleichfalls auf Haen et al. [Haen87] zurückgehende Messungen der Suszeptibilität in der Konfiguration  $B||c$  bei 10K ein schwaches Maximum, das als ein Indiz für die Kondosingulettformierung gewertet wird. Der Grundzustand ist unmagnetisch. Die magnetische Anisotropie bei 10K beträgt  $\chi_{||}/\chi_{\perp} = 15$ . Aus der inversen Suszeptibilität resultieren oberhalb von 70K die Curietemperaturen  $\Theta_{||} \approx 0K$  und  $\Theta_{\perp} \approx 450K$ . Unterhalb von 70K beginnen die Curietemperaturen abzuweichen,  $\Theta_{\perp}$  fällt auf 100K und  $\Theta_{||}$  steigt leicht an, was als das Einsetzen von antiferromagnetischen Korrelationen gewertet wird.

Magnetisierungsmessungen von verschiedenen Forschungsgruppen belegen einen stufenähnlichen Verlauf, geprägt von einem Wendepunkt bei ungefähr  $B=7.8T$ , der gemeinhin mit dem Namen metamagnetischer Übergang bezeichnet wird. Beispielhaft sind in dieser Arbeit die Messungen von Lacerda et al. [Lacerda89] aufgenommen, da diese mitunter den größten Feldbereich umspannen. Die Lage des Wendepunktes ist bis 1K schwach temperaturabhängig, zeigt aber oberhalb von 1K eine einsetzende starke Verschiebung zu höheren Feldern – siehe B-T-Diagramm in Abbildung 8.14.- und fixiert sich bei einer Magnetisierung von  $M \approx 0.75\mu_B/\text{Cer}$ . Es ist lediglich ein mit zunehmender Temperatur flacher werdender Kurvenverlauf zu beobachten. Die Sättigung wird bei

$$M = g_J \mu_B \left( \frac{5}{2} a_1^2 - \frac{3}{2} a_2^2 \right) \approx 1.875 \mu_B / \text{Cer} \text{ erwartet.}$$

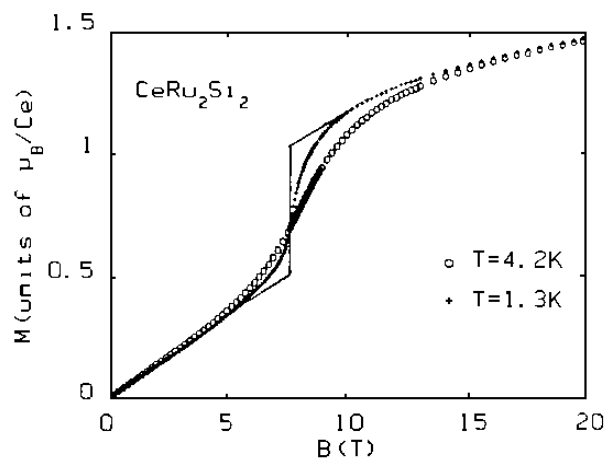


Abb.8.7: Die Magnetisierung für die Konfiguration  $B||c$  zu verschiedenen Temperaturen. Die eckige Kurve gibt idealisiert den Sprung des magnetischen Momentes eines Cerions beim Durchqueren des metamagnetischen Überganges an [Lacerda89] [Weber91].

Inspiziert von de Haas-van Alphen-Experimenten [Aoki93], die bei vorausgesetzter richtiger Interpretation einen Phasenübergang erster Ordnung prognostizierten, untersuchte Sakakibara et al. [Sakakibara95] bei tiefen Temperaturen das magnetische Verhalten  $M(B||c)$  mittels eines Faraday-Pendelmagnetometers in einem Gradientenfeld von  $dB/dz=3T/m$ . Die differentiellen Suszeptibilitäten zeigen  $\lambda$ -anomalieähnliches Verhalten und sollten unterhalb einer kritischen Temperatur den 1. Ordnungsphasenübergang in Form einer Singularität widerspiegeln. Das es sich bei dem metamagnetischen Übergang nicht um einen Phasenübergang 1.Ordnung handelt, dafür sprechen die Resultate. Es wurde keine Hysterese hinab bis zu einer Temperatur von 90mK gefunden, ebenso sättigt die differentielle Suszeptibilität bei einem Wert von  $dM/dB = 1.88\mu_B/\text{TCe}$ , das heißt, die Steigung am Wendepunkt bleibt finit.

Untersuchungen der relativen Volumenänderung gemessen über die Temperatur von Lacerda et al. [Lacerda90] zeigen ein ungewöhnlich großes Probenschumpfen unterhalb der Kondotemperatur

von ungefähr  $\Delta V/V = 1 \cdot 10^{-3}$ . Ist die Kontraktion des Volumens gemessen über die Temperatur schon groß, so setzt eine stärkere Volumenexpansion ein, wenn man in der Konfiguration  $B \parallel c$  bei 1.3K das Magnetfeld erhöht. Am kritischen Feld  $B_M$  tritt schlagartig eine relative Volumenänderung von  $\Delta V/V = 0.6 \cdot 10^{-3}$  auf, und in dem Bereich von 0T-12T entspricht die gesamte Änderung  $\Delta V/V = 1.9 \cdot 10^{-3}$ . Die Volumenänderung wird nur noch geringfügig schärfer, stagniert aber im Wesentlichen beim weiteren Abkühlen bis hinab zu 120mK [Paulsen90a]. Eine umgekehrte Betrachtungsweise dieses physikalischen Prozesses, das heißt von hohen Magnetfeldern und kontinuierlicher Reduktion der Feldstärke ausgehend, hat die plötzliche, verhältnismäßig große Volumenverminderung bei  $B_M$  die Wissenschaftler von einem Kondovolumenkollaps sprechen lassen. Dass das System hierbei aber bei Feldstärken oberhalb von  $B_M$  die „Kondophase“ nicht verlässt, dafür sprechen eben zitierte de Haas-van Alphen-Messungen, die weiter unten diskutiert werden. Es handelt sich um erste Aspekte, die eine mutmaßliche Stabilisierung des Kondoregimes aufgrund einer Volumenverminderung und einer damit einher gehenden Verstärkung der Hybridisierung befürworten, jedoch nicht den Eintritt in, beziehungsweise Austritt aus, dem „Kondozustand“ markieren, wie man aufgrund eines Vergleiches der großen Volumenänderungen über die Temperatur und über das Magnetfeld vermuten könnte.

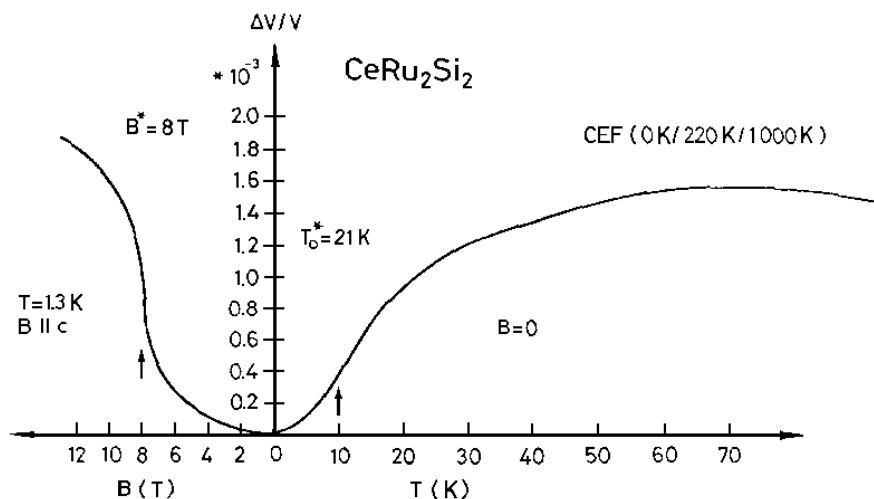


Abb.8.8: Die relative Volumenänderung angegeben über  $B$  und über  $T$  [Weber91]. Die Daten entstammen der Referenz [Lacerda90].

Interessant waren spezifische Wärmemessungen bei konstanter Temperatur über das geswepte (kontinuierlich hochgefahrenere) magnetische Feld, erstmals durchgeführt von Y. Aoki et al. [Aoki98] mittels einer speziell hierzu konstruierten Apparatur. Zuvor war man auf Deduktionen von Experimenten der Magnetisierung gemessen über die Temperatur angewiesen, die entsprechend der Maxwell-Relation

$$\frac{\partial M}{\partial T^2} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\partial \gamma(B)}{\partial B}$$

ausgewertet wurden, beziehungsweise auf spezifische Wärmemessungen, aufgenommen über die Temperatur bei konstantem Magnetfeld, und beide Verfahren lieferten ein einfaches Maximum der spezifischen Wärme bei  $B_M$ , das sich mit zunehmender Temperatur verbreiterte [Paulsen90] [Meulen91] [Sakakibara95]. Hingegen zeugen die Daten von Aoki et al. von einer Doppelpeakstruktur, die um  $B_M$  zentriert ist. Erklärt wird das Phänomen durch ein Zeeman-Splitting des Quasiteilchenbandes mit erhöhter Zustandsdichte an der Fermikante, der Kondo-Anomalie. Es

bilden sich zwei Bänder entsprechend der Spineinstellung. Der Zeemanshift, das heißt, die Energieabsenkung des *spinup*-Bandes führt zum Kreuzen mit dem Fermilevel und somit zum beobachteten metamagnetischen Übergang. Es fanden sich wiederum keinerlei Anzeichen einer Hysterese, was verständlich wird aus Sicht des hier zugrunde gelegten Hybridisierungsbandbildes. Eine fundierte Begründung sowie korrektere Behandlung als durch das vereinfachte *rigid-band*-Modell, wie durch Aoki et al. geschehen, soll im Kapitel [11] erfolgen.

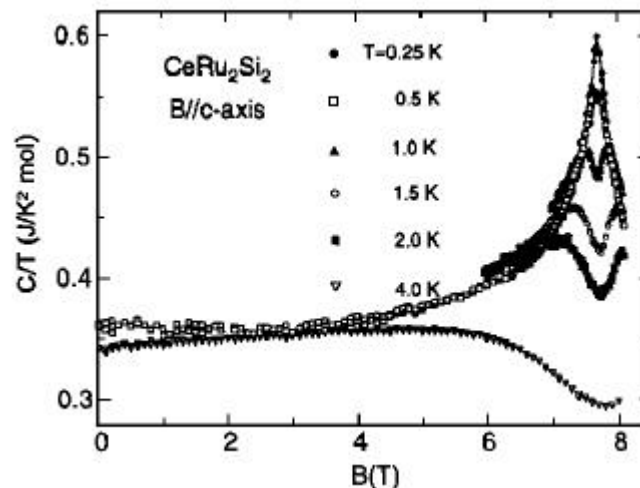


Abb.8.9: Die spezifische Wärme in Form  $C/T$  über  $B$  aufgetragen. Deutlich erkennt man bei 1K die Ausbildung einer Doppelpeakstruktur, die mit zunehmender Temperatur auseinanderläuft. Die eigenen Daten konnten mit dem angesetzten vereinfachten Modell jedoch nur qualitativ erklärt werden [Aoki98].

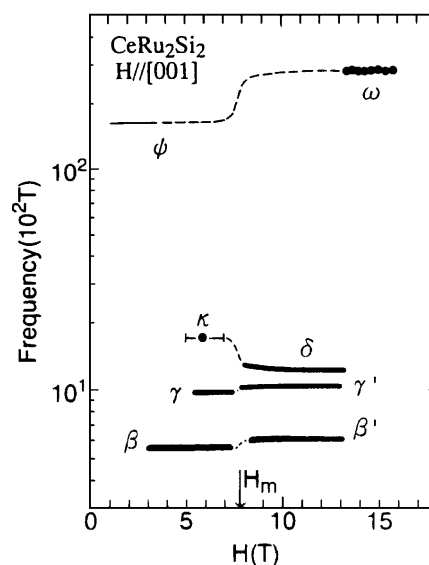


Abb.8.10: Eingezeichnet sind die Feldabhängigkeiten für die diversen de Haas-van Alphen-Frequenzen. Die  $\mathbf{k}$ - und  $\mathbf{f}$ -Oszillationen sind zum ersten Mal in diesem Experiment beobachtet worden. Die mit den schweren Massen verknüpften  $\mathbf{f}$ -Oszillationen sind jedoch nur in der  $[100]$ -Richtung vermessen worden. Entlang  $[001]$  gelang dies nicht, daher ist in der Abbildung die Lage der Frequenz durch einen Strich angedeutet, der das Resultat einer Bandstrukturrechnung ist [Aoki93]. Die gestrichelten Linien entbehren theoretischer Rechnungen. Bis auf die Frequenzen  $\mathbf{k}$  und  $\mathbf{d}$  werden die anderen Frequenzen Löcherbewegungen zugeschrieben.

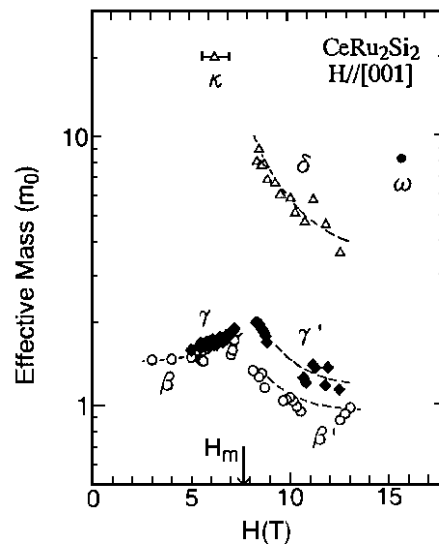


Abb.8.11: Die Abbildung veranschaulicht die Feldabhängigkeit für die effektiven Massen der einzelnen Oszillationen. Für die leichteren Massen ist die Massenzunahme um den metamagnetischen Übergang klar zu erkennen, jedoch können die gefundenen Massen die starke Renormierung des Sommerfeldkoeffizienten nicht erklären.

Eine interessante Analyse erfuhren die Haas-van-Alphen-Messungen von H. Aoki et al. [Aoki93]. Die unter einem Kelvin in  $H||c$ -Konfiguration entdeckten Frequenzen wurden unterhalb des metamagnetischen Überganges einem itineranten f-Elektronensystem zugeschrieben. Wohingegen die Frequenzänderung oberhalb von  $H_M$  eine gute Beschreibung durch ein lokalisiertes f-Elektronenmodell erhält, bei der die beobachteten Oszillationen Elektronen- und Löcherbewegungen zugeordnet werden können. Obwohl solche Bandrechnungen für das System  $CeRu_2Si_2$  nicht existieren, führte die Ähnlichkeit zu dem homologen System  $LaRu_2Si_2$  [Yamagami93] zu dieser Interpretation. Die effektiven Loch- beziehungsweise Elektronenmassen der Bänder wachsen in der Nähe des kritischen Feldes deutlich an, in Analogie zu den Daten

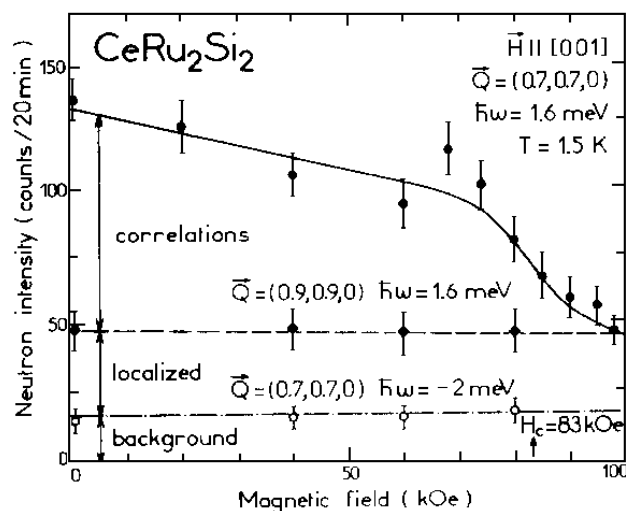


Abb.8.12: Neutronenstreudaten in der Nähe des antiferromagnetischen Bragg-Peaks. Der starke Anteil, der in der Nähe von  $H_C$  zusammenbricht, wird den intersite-Korrelationen zugeschrieben, der feldunabhängige Term den intrasite-Korrelationen [Rossat-Mignod88].

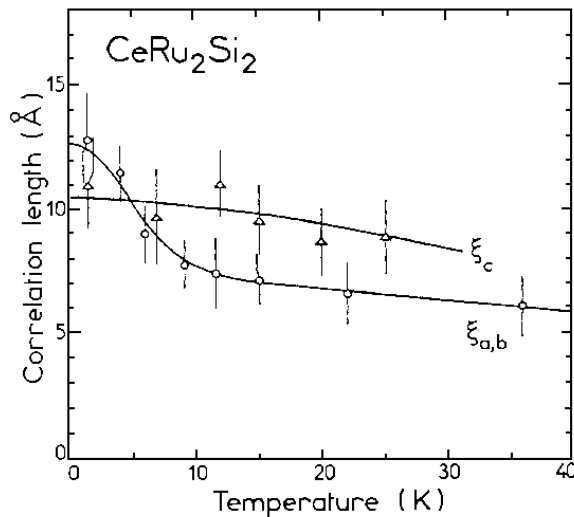


Abb.8.13: Dargestellt sind die gemessenen Temperaturabhängigkeiten der Korrelationslängen innerhalb ( $\xi_{ab}$ ) und zwischen den Basisebenen ( $\xi_c$ ). Letztere zeigt ein nahezu konstantes Temperaturverhalten. Das Sättigen bei 1.5K bei niedrigen Werten schließt eine langreichweitige Ordnung aus [Regnault90].

der spezifischen Wärme. Neutronenstreuexperimente von Rossat-Mignod und L.P. Regnault [Rossat-Mignod88] [Regnault90], deren Ergebnisse in Abbildung 8.12 und 8.13 einzusehen sind, zeigen neben dem Hintergrund zwei Beiträge: Einen magnetfeld- und q-unabhängigen, gedeutet als *single-beziehungsweise intra-site*-Korrelationen und einem Beitrag, der die *intersite*-Korrelationen widerspiegeln soll, der in der Nähe des antiferromagnetischen Bragg-Peaks  $Q=(0.7,0.7,0)$  liegt. Diese Fluktuationen sind auf einer Längenskala von wenigen Ångström korreliert, und anisotrop bezüglich der Kristallrichtungen. Signifikant ist das Zusammenbrechen dieser Korrelationen, wenn das System den metamagnetischen Übergang passiert. Die *single-site*-Korrelationen, die den Kondostreuungen zugerechnet werden, zeigen unterhalb von 20K inelastisches Neutronenstreuverhalten, und ab 20K bildet sich ein quasielastischer Peak, der bis zu einer Temperatur von 70K verfolgt werden kann [Regnault88]. Die Halbwertsbreite zeigt dabei das aus der Ein-Ionen-Kondotheorie geforderte  $\sqrt{T}$ -Verhalten [Glötze74]. Aus dem Lorentzkurvenfit der detektierten quasielastischen *Peaks* konnte per FWHM-Analyse eine Kondotemperatur von  $T^* = 23K$  bestimmt werden [Rossat-Mignod88].

Die Kohärenztemperatur, die den Eintritt in die Fermiflüssigkeit signalisiert, ist über den quadratischen Widerstandsabfall zugänglich. Erste Messungen von Haen et al. und Djerbi et al. ergaben eine Kohärenztemperatur von 1K [Haen87] [Djerbi86]. Neuere Messungen korrigieren diese Grenze nach unten. So manifestiert sich der kohärente Zustand unterhalb von 0.5K nach Sakakibara [Sakakibara95], und Kambe findet ein  $T_{Koh}$  von 0.3K [Kambe95].

Über Ultraschall ist ein komplettes B-T-Diagramm erschlossen worden [Weber91], in das sich die zuvor berichteten Messergebnisse einfügen – Abbildung 8.14. Einige der B-T-Linien können aufgrund der von Y.Aoki durchgeführten spezifischen Wärmeexperimente in Relation zueinander gesetzt werden. Es sind dies die Linien a,b und c. Sie können mit Hilfe der von Aoki gefundenen Doppelpeakstruktur den spinaufgespaltenen Bändern zugeordnet werden. Die Linie a rekonstruiert das Wandern der Zustandsdichte des *upspin*-Bandes in der B-T-Ebene. Entsprechend beschreibt die Linie c das Verhalten des *downspin*-Bandes. Die Linie b wird durch das sich auftuende Minimum der zu höheren Temperaturen auseinanderlaufenden Zustandsdichten charakterisiert. Die Linie e existiert ab  $T=12K$  und resultiert aus dem leichten *softening* der  $c_{11}$ - sowie  $c_{33}$ -Mode. Dieses Verhalten setzt sich bei höheren Feldern entlang der Linie f fort. Die Anomalie in der elastischen



Konstante, die sich entlang der Linie b etabliert, ähnlich dem Minimum in  $1/2(c_{11} + c_{12} + 2c_{66})$  in Abbildung 10.17, welches mit dem metamagnetischen Übergang korreliert ist, schmilzt zu höheren Temperaturen aus, ist aber dennoch eindeutig zu verfolgen. Das kritische Feld wächst bis zur Nähe der Kondotemperatur an. Bei zirka 21K wandert das Minimum wieder zu kleineren Feldern entlang der Linie d. Sie mündet bei 70K in die Abszisse und scheint den Bereich einzugrenzen, in dem antiferromagnetische Fluktuationen beobachtet wurden.

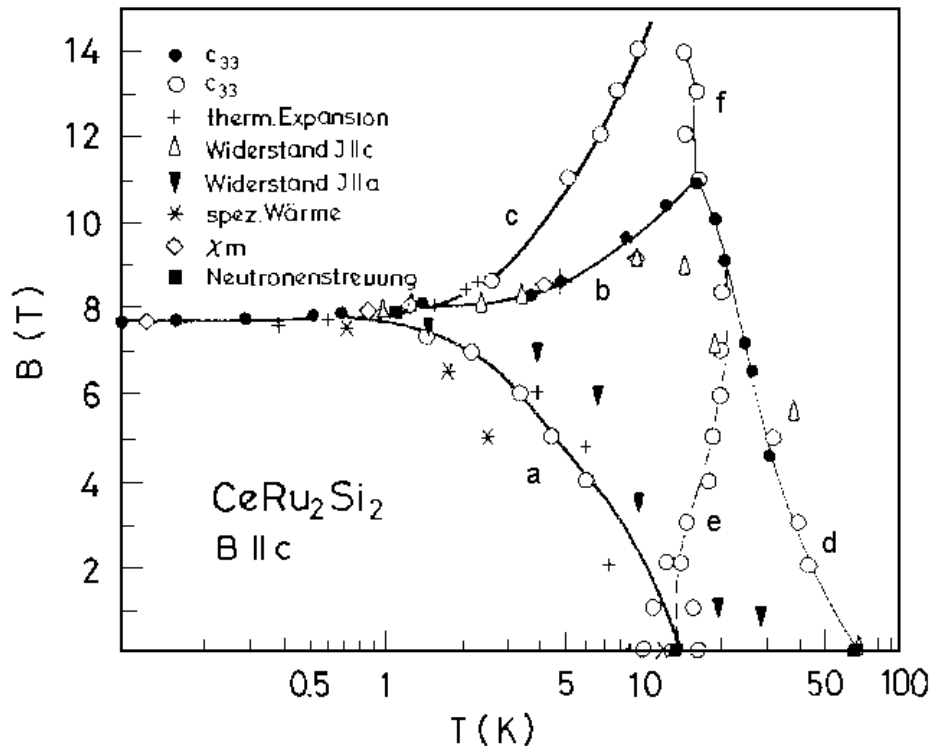


Abb.8.14: Das B-T-Diagramm für die Konfiguration B||c [Weber91]. Die schwarzen Kreise sind Ultraschallmessungen für T=konst. und die offenen Kreise repräsentieren die gleiche Mode gemessen in der Konfiguration B=konst. [Weber91]. Die thermischen Expansionsdaten entstammen der Referenz [Lacerda90] und sind wie die spezifischen Wärmedaten aus [Fisher91] in der Konfiguration B=konst. erzielt worden. Der Magnetowiderstand ist aus [Djerbi89] und die Neutronenstreudaten aus der Veröffentlichung von [Rossat-Mignod88].

## 8.2 Druckmessungen

Eine der ersten Druckmessungen wurde von Thompson et al. [Thompson95] durchgeführt. Es waren Widerstandsmessungen unter hydrostatischem Druck im Temperaturbereich von 1.5K-300K. Man beobachtete eine Druckunabhängigkeit der Restwiderstände  $\rho(T=1.5K)$ . Die bei niedrigem Druck lineare Temperaturabhängigkeit unterhalb von 15K wird ab 6.5kbar quadratisch und gehorcht im unteren Temperaturintervall dem Gesetz  $\rho(T)=\rho(0)+AT^2$ . Zu hohen Temperaturen manifestiert sich eine geringe Temperaturabhängigkeit, d.h. ein nahezu konstantes Verhalten. Eine eingehendere Analyse des Koeffizienten A lieferte die druckabhängigen Ergebnisse:

$$A = 0.042\mu\Omega \text{ cm} / \text{K}^2 \text{ bei } P = 6.5 \text{ kbar}$$

$$A = 0.005\mu\Omega \text{ cm} / \text{K}^2 \text{ bei } P = 17 \text{ kbar},$$

wodurch ein Anstieg der Kondotemperatur mit zunehmendem Druck deduziert wurde.

## 8.2.1 Das Skalierungsverhalten

Zu bestätigen schienen dies die Suszeptibilitätsmessungen unter hydrostatischem Druck in der Konfiguration B||c von Mignot et al. [Mignot88], die eine Verschiebung des Maximums in der Suszeptibilität von 10K bei P=0kbar zu 20K bei 4kbar aufweisen. Gleichzeitig nimmt der Maximalwert von zirka  $36 \cdot 10^{-3}$  emu/mol auf ungefähr  $18 \cdot 10^{-3}$  emu/mol ab. Es ist wichtig festzuhalten, dass hier das Verhalten von CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> unter Druck einem einfachen Skalierungsgesetz folgt:

$$\chi/\chi_0(P) = \Psi\left[T/T_s(P)\right] \text{ mit } \chi_0 = \chi(T \rightarrow 0)$$

und dem Skalierungsparameter  $T_s(P)$ , wobei gilt  $T_s(P) \propto \chi_0(P)^{-1}$ .

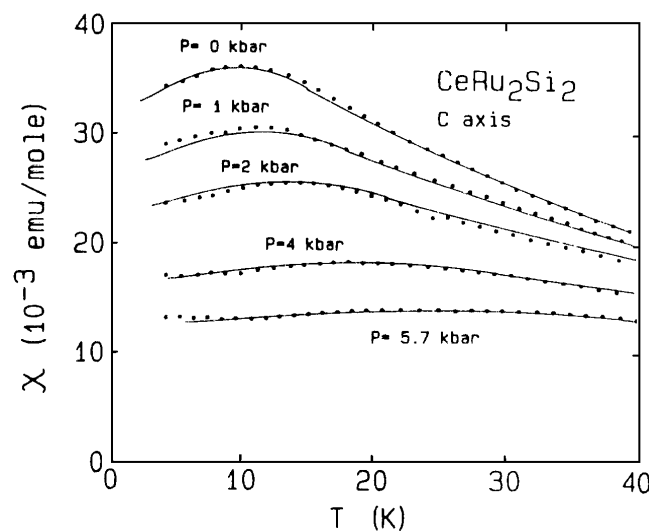


Abb.8.15: Die Suszeptibilitäten bei unterschiedlichen Drücken nach [Mignot88]. Die durchgezogenen Kurven entsprechen den Ergebnissen aus der Skalierungshypothese.

1988 hat Puech das Verhalten der Magnetisierung unter hydrostatischem Druck durch eine Skalierung beschrieben, die für tiefe Temperaturen mit nur einem Parameter arbeitet [Puech88]

$$M(H,P)/\mu_B = \Phi(H/H_s(P)).$$

Die Funktion  $M(H,P)$  gibt den Verlauf des magnetischen Momentes unter Druck und im Magnetfeld an, und die dimensionslose Funktion  $\Phi$  ist eine ungerade und druckunabhängige Funktion des Argumentes  $H/H_s(P)$ .  $H_s(P)$  kann hierbei für einen speziellen Druck willkürlich gewählt werden und diktiert über die Relation

$$H_s(P) = H_s(0)\chi_0(0)/\chi_0(P)$$

die Parameter für die unterschiedlichen Drücke. Dieser Ansatz im Zusammenhang mit der Definition von  $\Gamma = -d\ln H_s/dP$  bildet die Grundlage mit der die Nulldruckdaten der Magnetisierung in die Kurven für die unterschiedlichen Drücke transformiert werden können. Eine Reihe untersuchter physikalischer Größen, wie zum Beispiel der Koeffizient A des elektrischen Widerstandes, der sich für die Quasiteilchen-Quasiteilchen-Streuung verantwortlich zeichnet, das Maximum in den

Magnetostruktionskurven  $H_M$ , oder die Temperatur  $T_{Max}$  an der sich das Maximum der Suszeptibilitäten unter verschiedenen Drücken fixiert, zeigen entsprechend ihrer Relation untereinander äquivalentes Verhalten unter Druck - siehe Abbildung 8.19. Die Verknüpfung kann durch die Beziehung

$$\Gamma = \frac{\partial \ln E^*}{\partial P} \approx 171 \text{ Mbar}^{-1}$$

ausgedrückt werden. Es scheint demnach eine für den Kondozustand allgemeingültige druckabhängige Energieskala zu existieren.

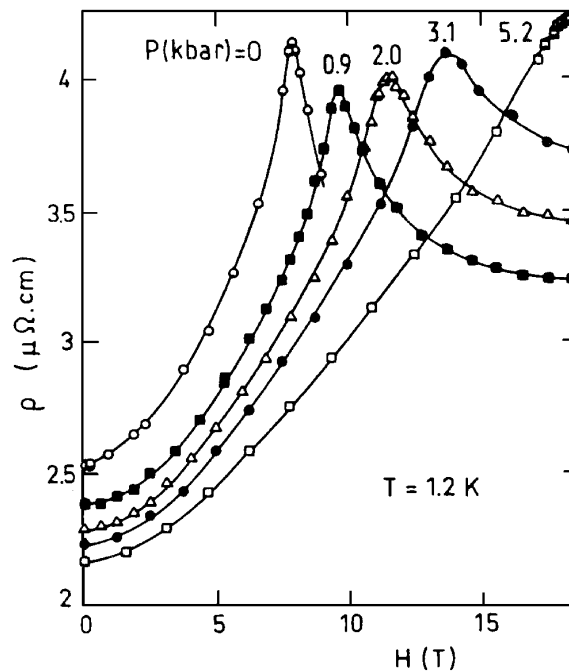


Abb.8.16: Der Magnetowiderstand bei einer Temperatur von 1.2K für unterschiedliche Drücke in der Konfiguration  $H||c$  und  $i \perp c$  [Mignot88].

Bezug nehmend auf erste Untersuchungen von Puech et al. verbesserten Matsuhira et al. [Matsuhira99] [Matsuhira97] elf Jahre später den experimentellen Aufbau zur Magnetostruktions( $\lambda$ )- und Magnetisierungs(M)messung, indem sie eine simultane Datenaufnahme beider Messgrößen in ihrem *setup* realisierten. Diese Methode sollte vordergründig die Gültigkeit des Skalierungsansatzes

$$M / \mu_B = \Phi [H / H_s(P)]$$

zu tieferen Temperaturen bestätigen. Der im Prinzip kapazitive Messaufbau gestattete nur die Erfassung der Größen  $M(H||c)$  und  $\lambda_{||} = d(\delta l || H||c) / l$ .  $\lambda_{\perp}$  entfiel somit und wurde durch die Annahme  $\lambda_{||} / \lambda_{\perp} \approx 3$  angenähert, wodurch eine Volumenmagnetostruktion von  $\delta V / V = 1.67 \lambda_{||}$  resultierte. Die Untersuchungen von Matsuhira weisen auf eine weitere Beziehung zwischen dem Verhältnis der Skalierungsparameter bei Druck und Nulldruck hin, wie in Abbildung 8.17 verdeutlicht. Demnach gilt

$$H_s(P) / H_s(P = 0) = \exp(\Gamma P).$$

In dieser Beziehung wird  $\Gamma$  als druckunabhängig angesehen. Auf dieses Skalierungsverhalten wird in den Kapiteln 9 sowie 10, das sich mit der Auswertung der eigenen Messdaten befasst,

zurückgegriffen werden. Es sei nur soviel erwähnt, dass diese Skalierungsthese kombiniert mit einer Maxwell-Relation eine nahezu identische Transformation der Volumenmagnetostruktions- auf die Magnetisierungsdaten gestattete. Der Fitparameter  $\Gamma$  wurde bei der exakteren Messung festgelegt mit  $200\text{Mbar}^{-1}$  und lag somit nicht unweit von dem des zuvor von Mignot et al. ermittelten Wertes von  $\Gamma=171\text{Mbar}^{-1}$ . Das erste ungenauere Experiment lieferte noch einen Wert von  $\Gamma=167\text{Mbar}^{-1}$ . Wichtiger jedoch waren die theoretischen Ableitungen betreffend die Bedeutung der Elektron-Gitter-Wechselwirkung. Die Maxwellrelation erlaubte die Bestimmung der Magnetisierung unter den thermodynamischen Zwangsbedingungen. Neben dem Verhalten bei konstantem Druck wurde ebenfalls das Verhalten bei konstantem Volumen deduziert. Wodurch die eklatante Frage der Rolle der Gitterdeformation auf den metamagnetischen Übergang indirekt dargestellt wurde. Der metamagnetische Übergang ist unter der Zwangsbedingung des konstanten Volumens immer noch vorhanden. Er schiebt jedoch zu einem höheren Feld von  $B=9.5\text{T}$  und ist stärker verbreitert im Vergleich zu den „konstant-P“-Kurven. Die Rechnungen basieren auf einer Kompressibilität von  $\kappa=0.82\text{Mbar}^{-1}$  [Haen93] und der deduzierte Grüneisenparameter beträgt somit für die exaktere Messung mit  $\Gamma=200\text{Mbar}^{-1}$   $\Omega=244$ . Es existiert somit ein theoretisches Indiz, das auf einen ursächlich intrinsischen Effekt hindeutet, der nicht durch eine starke Elektron-Gitter-Kopplung bedingt durch die Volumenstriktion gesteuert wird, wie es in Arbeiten von F.J. Ohkawa favorisiert wird [Ohkawa89] – siehe Kapitel 11.

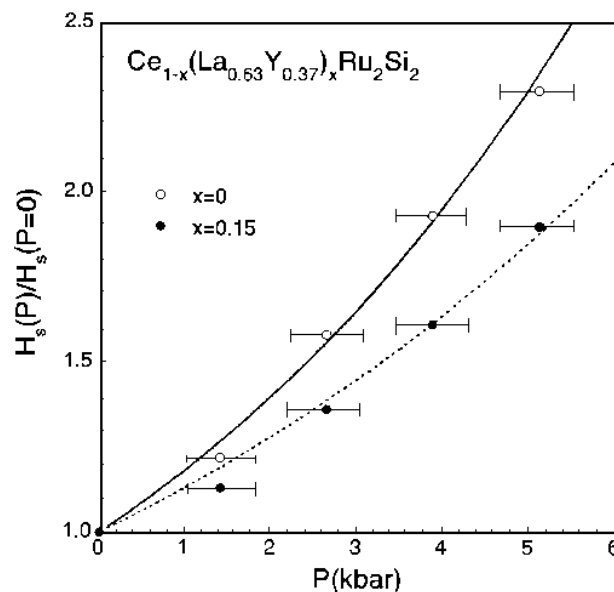


Abb.8.17: Funktionale Abhängigkeit der relativen Skalierungsparameter für  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (durchgezogene Linie) und einer mit Yttrium und Lanthan dotierten Probe unter dem Gesichtspunkt, dass das Einheitszellenvolumen der  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Struktur durch die Dotierung nicht verändert wurde (siehe Kapitel 8.3). Es gilt  $H_S(P)/H_S(P=0)=\exp(\mathbf{G} P)$  mit  $\mathbf{G} =167\text{Mbar}^{-1}$  für  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  und  $\mathbf{G} =123\text{Mbar}^{-1}$  für die dotierte Substanz [Matsuhira97].

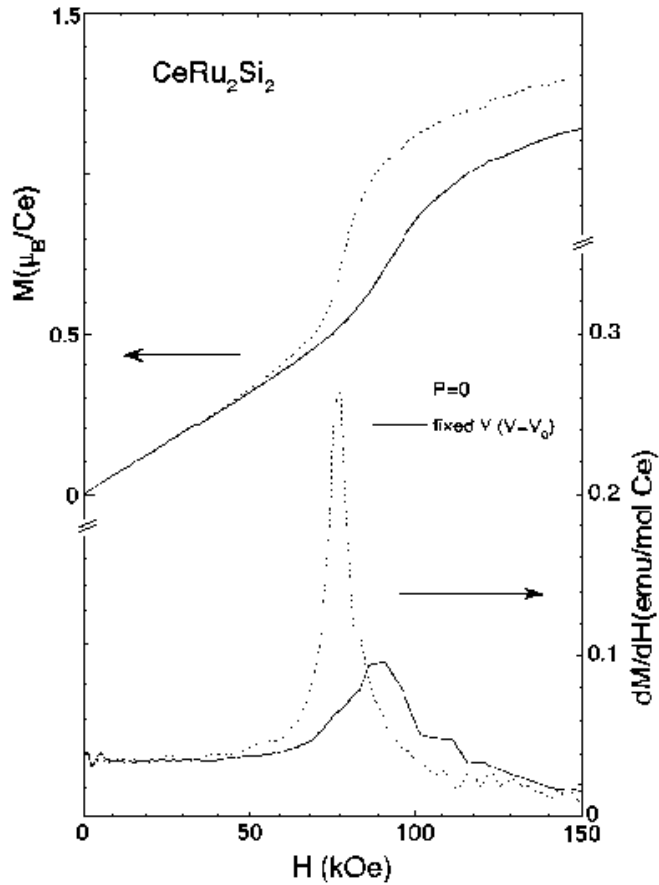


Abb.8.18: Dargestellt ist der Vergleich der Kurve bei konstantem Druck (gepunktet) und der Kurve bei konstantem Volumen für  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  die theoretisch aus einer Skalierungsthese unter Berücksichtigung der Maxwellrelation abgeleitet wurde [Matsuhira97].

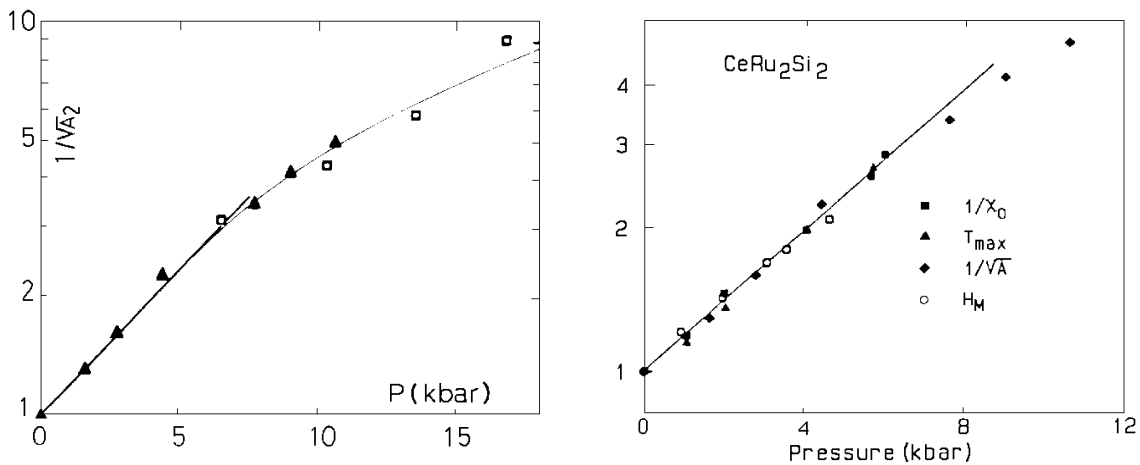


Abb.8.19: (links) Die Entwicklung des Koeffizienten A des elektrischen Widerstandes [Djerbi89]. Die Daten sind im oberen Druckbereich durch die Ergebnisse von Thompson erweitert worden [Thompson85]. (rechts) Aufgetragen ist die Druckabhängigkeit einiger relevanter Größen für Kondosysteme nach [Mignot88]. Es resultiert ein  $G$  von  $171\text{Mbar}^{-1}$ .

Vergegenwärtigt man sich die Abbildungen in 8.19, so fällt die Abweichung des Grüneisenparameters  $\Omega(P) = -1/2 \delta \ln A / \delta \ln V$  vom linearen Verlauf bei zirka 6kbar auf. Das System scheint den Schwere-Fermionen-Zustand zu verlassen. In der Tat wird dieses Abweichen dahingehend interpretiert, das  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  die Tendenz zeigt, in den zwischenvalenten Zustand zu wechseln [Djerbi89] [Haen95]. Diese Deutung basiert auf der Beobachtung der Hallkonstante, die in Analogie zu den Ergebnissen an dem zwischenvalent geprägten System  $\text{CeSn}_3$  steht [Cattaneo86]. Die Kondotemperatur in dieser Substanz beträgt  $T_K \approx 200\text{K}$  und der Sommerfeldkoeffizient der spezifischen Wärme ist  $\gamma = 72.8 \text{mJ/molK}^2$  [Suzuki87] [Gschneider85]. Der Grüneisenparameter von  $\Omega = 10$  ist typisch für Systeme mit gemischtvalentem Charakter [Niksch85]. Unter diesem Gesichtspunkt sind die Resultate von Thompson interessant, realisiert man sich noch einmal den elektrischen Widerstand unter Druck. Das System weicht ja ab 6kbar vom Schwere Fermionen Verhalten ab und driftet in einen valenzfluktuationsartigen Zustand, und erstaunlicherweise findet Thompson ab 6.5kbar bis zu dem maximal von ihm angewandten Druck von 16.8kbar einen quadratischen Anstieg im Widerstandsverhalten. Simultan mit dem Druck steigt die Kondotemperatur, doch auch die Kohärenztemperatur zeigte einen monotonen Anstieg den Thompson durch die Gesetzmäßigkeit  $T_{\text{Koh}} = 0.25T^*$  beschreibt.

Hier zeigt sich einmal mehr die enge Verwandtschaft zwischen den elektronisch hochkorrelierten Systemen beider Darbietungsformen, wobei das oft verwendete Kriterium, dass sich stark valenzfluktuiierende Systeme von den stark gekoppelten Kondosystemen oft dadurch unterscheiden, dass dieser kohärente Zustand in ihnen nicht existiert, vorausgesetzt man manifestiert das Fermiflüssigkeitsregime durch das Vorhandensein des Koeffizienten A des quadratischen Widerstandsabfalls, aufgeweicht werden muss und bestätigt, dass eine Klassifizierung im starren Sinne nicht möglich ist.

### 8.3 Dotierungen

In diesem Absatz möchte ich zwei Messreihen vorstellen, die sich mit dem dotierten  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -System befassen. Es sind dies die Messungen von Matsuhira et al. und die von Haen et al. [Matsuhira97] [Haen95]. In der erstgenannten Arbeit wurde der Versuch unternommen, den Einfluss von *intrasite*- beziehungsweise *intersite*-Effekten auf den metamagnetischen Übergang zu analysieren. Hierzu musste die Konzentration der Cerionen variiert werden. Dies geschah durch eine gleichzeitige Substitution mittels Lanthan- und Yttriumionen, dies deswegen, da der große Grüneisenparameter von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  als eklatant für die Physik des Kondozustandes erachtet wurde, unter besonderem Augenmerk, dass das Volumen von  $(4.1\text{\AA})^2 \times 9.78\text{\AA}$  durch die Dotierung nicht verändert wurde.  $\text{La}^{3+}$  mit seinem größeren Ionenradius im Vergleich zu  $\text{Ce}^{3+}$  bewirkt ja einen negativen chemischen Druck, wohingegen  $\text{Y}^{3+}$  durch seinen kleineren Ionenradius einen positiven chemischen Druck verursacht. Das System  $\text{La}_{0.63}\text{Y}_{0.37}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  sollte unter der Annahme, dass Vegards Gesetz Gültigkeit besitzt, dieses empirische Gesetz stellt ja die Gitterkonstante eines ternären dotierten Systems  $\text{AB}_{1-x}\text{C}_x$  in linearen Zusammenhang zur Konzentration x, vermehrt der reinen  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Substanz beigemischt werden. So wurde die intermetallische Legierung  $\text{Ce}_{1-x}(\text{La}_{0.63}\text{Y}_{0.37})_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  für verschiedene Konzentrationen in Feldern bis 15T auf ihr magnetisches Verhalten untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 8.20 gezeigt. Der metamagnetische Übergang schmilzt mit zunehmender Fremdkonzentration aus. Das Maximum wird stark „gedämpft“ und schiebt leicht zu geringeren Feldern. Durch die zunehmende Dotierung beeinflusst man die *intersite*- Fluktuationen, die, betrachtet man die Resultate, eine dominante Auswirkung auf

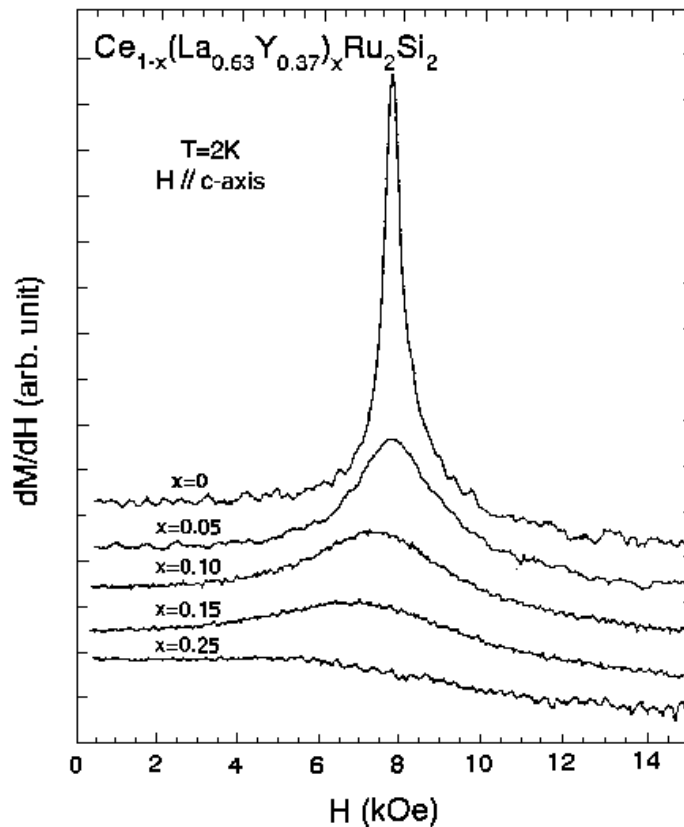


Abb.8.20: Die differenzierte Magnetisierung, die aus Pulsfeldmessungen an  $Ce_{1-x}(La_{0.63}Y_{0.37})_xRu_2Si_2$  für verschiedene Konzentrationen gemessen wurde [Matsuhira97].

den zu untersuchenden Effekt haben. Hydrostatische Druckexperimente an einem dieser Dotierungssysteme mit der Konzentration  $x=0.15$  zeigen ein ähnliches Verhalten der Skalierungsgrößen  $H_S(P)$ , wie das reine ternäre System. Es sind dies die in Abbildung 8.17 präsentierten Ergebnisse. Das bei der Legierungsreihe  $Ce_{1-x}(La_{0.63}Y_{0.37})_xRu_2Si_2$  konstant gehaltene Einheitszellenvolumen wird jedoch durch einen abgeschwächten Grüneisenparameter von  $\Omega \approx 130$  charakterisiert.

Mit der zweiten Legierungsreihe wurde positiver chemischer Druck in die tetragonale  $D_{4h}$ -Struktur hineindotiert, wobei Cerionen sukzessiv durch Yttriumionen substituiert wurden. Die Physik dieser dotierten Systeme ist zuvor schon von Besnus et al. untersucht worden [Besnus87]. Er fand eine Abnahme der Kondotemperatur mit stärkerer La-Dotierung, das heißt negativem chemischen Druck, sowie eine Zunahme der Kondotemperatur mit zunehmender Y-Dotierung – siehe Abbildung 8.21. Im Bereich 30%La  $\rightarrow$  Ce  $\rightarrow$  10%Y skaliert die Kondotemperatur entsprechend der Grüneisenrelation. Für größere Y-Dotierung geht die Kondotemperatur in eine Sättigung bei zirka  $T_K=200K$ , analog dem beobachteten Sättigungsverhalten der den Kondozustand beschreibenden relevanten Parameter, abgebildet in 8.19. Zugleich fällt der Sommerfeldkoeffizient der spezifischen Wärme auf ungefähr  $\gamma=40mJ/molK^2$ . Mit abnehmender Y-Dotierung und zunehmender La-Dotierung manifestiert sich ein Übergang von einem valenzfluktuierenden System zu einem starken Kondoregime. Insofern sind die Ergebnisse äquivalent zu denen, die von Schilling an Cersystemen gefunden wurden – siehe Kapitel 4, wobei eine Kondotemperaturerhöhung unter Druck eintrat. Fundiert werden diese Experimente von Modellrechnungen von Newns et al., die eine hohe Kondotemperatur mit einer hohen Grundzustandsentartung verknüpfen, wodurch eine kleine mittlere Besetzung des f-Niveaus resultiert mit allerdings  $n_f \ll 1$  [Newns84].

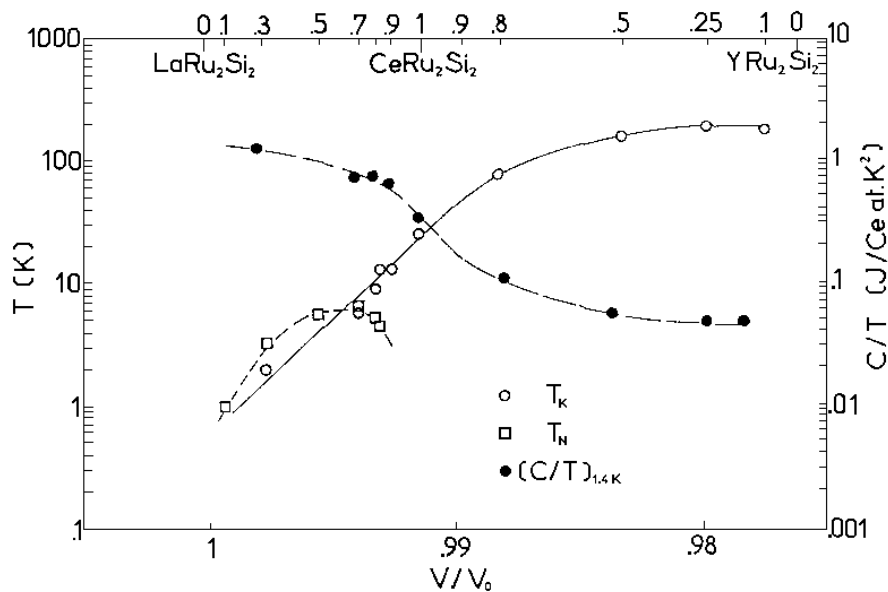


Abb.8.21: Die Grafik zeigt die Kondo ( $T_K$ )- und Néel ( $T_N$ )-Temperaturen, sowie den Sommerfeldkoeffizienten für 1.4K in den Lanthan- und Yttrium-dotierten Systemen. Die untere x-Achse ist auf  $V_0 = V_{\text{LaRu}_2\text{Si}_2}$  bezogen [Besnus87].

Die neueren Messungen analysierten das magnetische Verhalten dieser Legierungen unter Druck, bedingt durch die Varianz des Fremdions. In Abbildung 8.22 sind wieder die Ergebnisse gezeigt. Das magnetische Signal am metamagnetischen Übergang wird unter positivem chemischen Druck reduziert und das kritische Feld wandert zu höheren Feldern, wobei es wieder stark verbreitert wird. Mittels der Volumenänderung bei vermehrter Y-Dotierung kann der thermische sowie magnetische Grüneisenparameter bestimmt werden, indem einerseits die Kondotemperatur in Abhängigkeit von der Konzentration und dem Volumen, andererseits das kritische Feld in Abhängigkeit von der Dotierung und dem Volumen aufgetragen wird. So geschehen in Abbildung 8.23. Die Auswertung ergibt zwar das eben geschilderte Resultat, dass sich der thermische Grüneisenparameter in den gewohnten Grenzen von  $\Omega_T \approx 175-195$  bewegt, der magnetische Grüneisenparameter jedoch Werte von  $\Omega_H \approx 235-270$  annimmt. Der Druck scheint die „Entartung“ dieser beiden Größen aufzuheben.

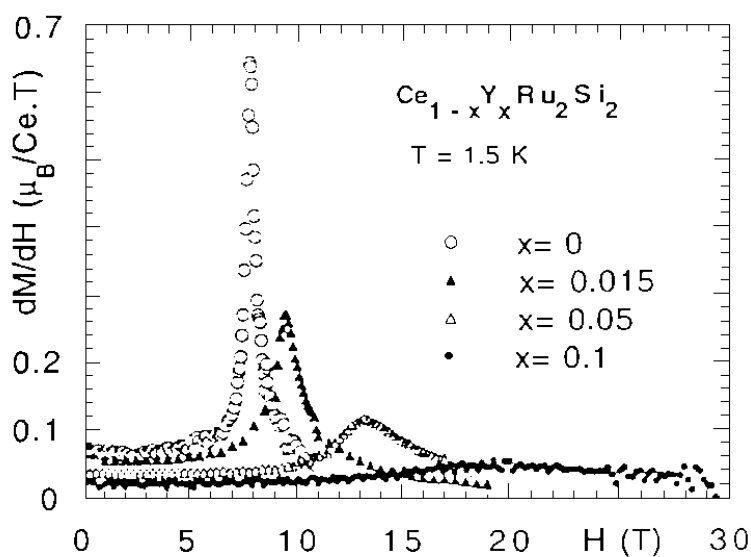


Abb.8.22: Die abgeleiteten Magnetisierungsdaten zu den betreffenden Konzentrationen [Haen95].



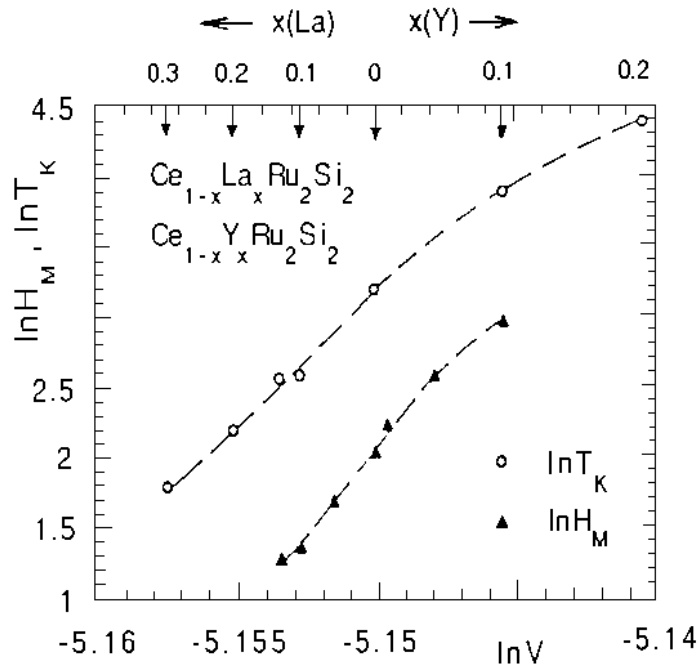


Abb.8.23: Darstellung der Abhängigkeit des kritischen Feldes und der Kondotemperatur von der Legierung und dem Volumen zur Ermittlung des Grüneisenparameters [Haen95]. Die Kondotemperaturen entstammen der Referenz [Besnus87].

Anliegen dieser Arbeit ist nun gewesen, ein Experiment zu entwickeln, bei der die Zwangsbedingung des konstanten Volumens realisiert werden sollte, um zur Klärung der Natur dieses magnetischen Phänomens beizutragen.

#### 8.4 Elastische Konstanten und diverse deduzierte Resultate

In Kapitel 3 wurde dargelegt, wie das Poissonverhältnis und die Kompressibilität über die elastischen Konstanten berechnet werden können. Eine Bestimmung der absoluten Werte ist von Weber [Weber91] für nahezu alle Moden vorgenommen worden. Lediglich die elastische Konstante  $c_{13}$  ist nicht gemessen worden, kann aber unter Berücksichtigung der Magnetostruktionsbedingung für verschiedene Fälle für  $T=0K$  kalkuliert werden. Die Resultate sind nachstehend tabelliert.

Mode	0K
$c_{11}$	$20.3 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$
$c_{33}$	$10.85 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$
$c_{44}$	$7.75 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$
$c_{66}$	$8.18 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$
$1/2(c_{11} - c_{12})$	$8.38 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$
$c_{12}$	$3.54 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$

## hydrostatischer Druck

$\epsilon_1 = \epsilon_3$		
$c_{13}$	$11.56 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	
$c_B$	$11.64 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	$(\kappa = 0.86 \text{ Mbar}^{-1})$
$v_{13}$	-1	
$2.4 \cdot \epsilon_1 = \epsilon_3$		
$c_{13}$	$11.34 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	
$c_B$	$8.18 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	$(\kappa = 1.22 \text{ Mbar}^{-1})$
$v_{13}$	-0.42	

## uniaxialer Druck

$2.4 \cdot \epsilon_1 = \epsilon_3$		
$c_{13}$	$9.91 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	
$c_B$	$15.4 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	$(\kappa = 0.64 \text{ Mbar}^{-1})$
$v_{13}$	-0.42	
$\epsilon_1 = \epsilon_3$		
$c_{13}$	$23.84 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	
$c_B$	$38.4 \cdot 10^{11} \text{ erg / cm}^3$	$(\kappa = 0.27 \text{ Mbar}^{-1})$
$v_{13}$	-1	

Der Fall der anisotropen Ausdehnung nimmt Bezug auf die eigenen Messergebnisse, die in Kapitel 10 vorgestellt werden.

## 9. Skalierungsthese

Die Skalierungsthese ermöglicht einem die Transformation der Magnetisierungskurven auf die Magnetostruktionskurven. Ebenso, und das ist der eigentlich bedeutende Punkt, wurde das Verhalten der Magnetisierung unter der Zwangsbedingung des konstanten Volumens mit dem phänomenologischen Modell theoretisch prognostiziert. Die Abhandlung folgt dem in Referenz [Matsuhira97] verwendeten Skalierungsverfahren. Es stellt die Grundlage der Interpretation der hier vorgestellten Messungen dar.

Die von Mignot [Mignot88] und Puech [Puech88] vorgestellte Skalierung der Magnetisierung unter Druck – siehe 8.2.1 - mit

$$m/\mu_B = \Phi[B/B_s(P)] \quad \text{mit} \quad \Gamma = \partial \ln B_s / \partial P$$

ist Ausgangspunkt. Die Ableitung eben dieser Formel nach dem Druck liefert

$$\left. \frac{\partial m}{\partial P} \right|_{B,T} = -\Gamma B \left. \frac{\partial m}{\partial B} \right|_{P,T}.$$

Diesen Ausdruck kann man unter Zuhilfenahme eines thermodynamischen Potentials  $\Xi(T, P, H)$  umschreiben, das von den intensiven Größen Temperatur, Druck und der magnetischen Feldstärke abhängt. Das Differential von  $\Xi$  schreibt sich

$$d\Xi = -SdT + VdP - \mu_0 VMdH = -SdT + VdP - mdB,$$

wobei im letzten Schritt die magnetische Feldstärke durch die magnetische Induktion und die Magnetisierung  $M$  entsprechend durch das magnetische Moment charakterisiert durch  $m$  ersetzt wurde. Es findet sich über das Differential  $\Xi$  die Maxwell-Relation [Stumpf76]

$$\left. \frac{\partial V(T, P, B)}{\partial B} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial m(T, P, B)}{\partial P} \right|_{B,T},$$

und obige differentielle Druckabhängigkeit des magnetischen Momentes lässt sich ersetzen durch die Volumenänderung bei externem Feld

$$\left. \frac{\partial V}{\partial B} \right|_{P,T} = \Gamma B \left. \frac{\partial m}{\partial B} \right|_{P,T}.$$

Die interessierende Volumenänderung der Probe errechnet sich somit über das Integral

$$\Delta V(B) = V(B) - V(0) = \int_0^B \Gamma B' \left. \frac{\partial m}{\partial B'} \right|_{P,T} dB'. \quad (*)$$

Hiermit kann aus den Magnetisierungsdaten bei bekanntem Parameter  $\Gamma$  die Magnetostruktion bestimmt werden für den Fall, dass kein äußerer Druck anliegt ( $P=0$ kbar). Die von Matsuhira bei Druckexperimenten gefundene Relation des Verhaltens des Skalierungsparameters  $B_s$  unter Druck

$$B_s(P)/B_s(P=0) = \exp(\Gamma P),$$

siehe Abbildung 8.17 erlaubte einen weiteren Ansatz, in dem das magnetische Moment die Form

$$m(B, P) = m(b) = m(B \cdot B_s(0)/B_s(P)) = m(Be^{\Gamma P}) \quad \text{mit} \quad b = Be^{\Gamma P}$$

annimmt.  $B$  reskaliert die  $x$ -Achse und beinhaltet die eigentliche Verschiebung. Bei den hier behandelten Drücken wird  $\Gamma$  als druckunabhängig angesehen. Die Verknüpfung der Suszeptibilität bei beliebigem Druck erhält man aus den Nulldrucksuszeptibilitätsdaten über

$$\left. \frac{\partial m}{\partial B} \right|_P = e^{\Gamma P} \left. \frac{\partial m_0}{\partial b} \right|_{P=0}.$$

$m_0$  ist das magnetische Moment bei einem Druck von  $P=0$ kbar. Jetzt gewinnt man Zugriff auf die Volumendilatation bei verschiedenen Drücken, indem man die reskalierten Suszeptibilitäten bei den Feldern  $b$  in das Integral von  $\Delta V$  einsetzt

$$\Delta V_B(B, P) = \Gamma e^{-\Gamma P} \int_0^b b' \frac{\partial m_0}{\partial b'} db' = e^{-\Gamma P} \Delta V_B(b, 0).$$

Unter der Berücksichtigung der isotropen Kompressibilität  $\kappa$  ist die Volumenänderung durch den Ausdruck

$$V(B, P) - V_0 = -P\kappa V_0 + e^{-\Gamma P} \Delta V_B(b, 0)$$

bestimmt.  $V_0$  ist das Volumen bei Feld  $B=0$ T und dem Druck  $P=0$ kbar. Unter der Bedingung, dass das Volumen konstant gehalten wird  $V(B, P) - V_0 = 0$  und das  $\Gamma P \ll 1$ , das sicherlich gegeben ist, wodurch die Taylorentwicklung der Exponentialfunktion nach dem zweiten Term abgebrochen werden kann, findet sich ein Ausdruck für den Druck, der benötigt wird, um während eines Feldsweepes eine Magnetostriktion zu unterbinden

$$P(b) = \frac{\Delta V_B(b, 0)/V_0}{\kappa + \Gamma \Delta V_B(b, 0)/V_0}. \quad (**)$$

Die Magnetisierung beziehungsweise Suszeptibilität bei konstantem Volumen errechnet sich durch Einsetzen von  $P(b)$  in

$$m(B, P) = m_0(b) = m_0(Be^{\Gamma P(b)}) \quad (***)$$

einerseits

$$\text{oder} \quad \left. \frac{\partial m}{\partial B} \right|_P = e^{\Gamma P(b)} \left. \frac{\partial m_0}{\partial b} \right|_{P=0} \quad (***) \quad \text{andererseits.}$$

Die Auswertung der eigenen Messungen orientiert sich nun an dieser Skalierung. Im Vertrauen auf ihre Gültigkeit, wie sie in der Literatur für unterschiedliche Proben durch wiederholte Messungen bestätigt wurde, werden die eigenen Magnetisierungsdaten zur Berechnung der relativen Volumenänderung herangezogen, um den Parameter  $\Gamma$  beziehungsweise den damit verknüpften Grüneisenparameter  $\Omega$ , der bei den jeweiligen veröffentlichten Auswertungen differierte, zu bestimmen, indem die so theoretisch ermittelten Magnetostriktionsdaten den eigenen Dilatationsmessungen angepasst werden. Mit dem aus

diesem Verfahren extrahierten Grüneisenparameter wird dann die Berechnung der Magnetisierung und der Suszeptibilität bei konstantem Volumen ausgeführt, wobei letztere wiederum mit den eigenen Messungen verglichen wird.

## 10. Experimente

Neben der Präsentation der eigenen Resultate sind hier ebenfalls die theoretischen Verläufe eingetragen, die sich an der in Kapitel 9 vorgestellten Skalierungsthese orientieren. Die Magnetisierungs- und Suszeptibilitätsdaten erfahren dabei eine Ergänzung durch zusätzlich durchgeführte Ultraschall- und Magnetostruktionsmessungen.

### 10.1 Magnetisierung, Suszeptibilität, Dilatation

Im Einzelnen sollen nun die charakteristischen Merkmale im Vergleich der physikalischen Größen, die theoretisch beziehungsweise experimentell ermittelt wurden, eingehend diskutiert werden. Abbildung 10.1 zeigt eine Magnetisierungsmessung an einer  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Probe von Onuki in Einheiten des magnetischen Momentes in  $\mu_B/\text{Ce}$ . Der Wendepunkt des metamagnetischen Verlaufes befindet sich bei dem kritischen Feld  $B_{\text{kr}}=7.7\text{T}$ . Im selben Diagramm ist die dazugehörige Suszeptibilität abgebildet und in den Einheiten  $\mu_B/(\text{TCe})$  umgerechnet und skaliert entsprechend die rechte Ordinate. Abbildung 10.2 beinhaltet nun die Magnetostruktionsmessungen mit den Dilatationen gemessen entlang der kristallographischen Achsen  $a$  und  $c$  in der Konfiguration  $B\parallel c$ , sowie die hieraus ermittelte Volumenänderung. Alle Messungen wurden an einem von Lejay gezüchteten Kristall ausgeführt, der nahezu identisches magnetisches Verhalten im Vergleich zur Onuki-Probe aufwies. Der metamagnetische Wendepunkt befindet sich jedoch gemessen an den Magnetisierungsdaten leicht verschoben bei  $B_{\text{kr}}=7.5\text{T}$ . Diese geringe Diskrepanz zwischen dem kritischen Feld, das aus Magnetisierungs- und Volumenstruktionsdaten resultiert, findet man auch in der Literatur, allerdings nur an Proben, die von Lejay gezüchtet wurden. Die Onuki-Kristalle weisen einen derartigen Artefakt nicht auf, jedenfalls finden sich in den Koinzidenz-Experimenten von Matsuhira [Matsuhira99] kein Indizien hierfür. So ist zum Beispiel von Lacerda und Flouquet et al. [Lacerda91] der metamagnetische Punkt durch Volumenexpansion bei neueren Messungen auf  $7.66\text{T}$  und durch Magnetisierung auf  $7.7\text{T}$  fixiert worden [Flouquet95]. In der darauffolgenden Abbildung 10.3 ist die experimentelle Volumenänderung zusammen mit dem aus den Magnetisierungsdaten theoretisch ermittelten Verlauf nach Gleichung (\*) aus der Skalierungsthese eingetragen, der für einen  $\Gamma$ -Parameter von  $\Gamma=280\text{Mbar}^{-1}$  die experimentellen Resultate zufriedenstellend wiedergibt. Zusätzlich sind um die relative Volumenänderung für verschiedene Grüneisenparameter zu verdeutlichen, den Einfluss desselben zu veranschaulichen, mehrere Kurven zu unterschiedlichen  $\Gamma$ -Werten eingetragen. Auffallend ist der um den Wert  $(80-110)\text{Mbar}^{-1}$  größere  $\Gamma$ -Parameter, der diese Rechnung stützt, im Gegensatz zu den bisher in der Literatur erwähnten [Mignot88] [Matsuhira97]. Die beobachtete Volumenmagnetostruktion bei  $B=12\text{T}$  ist demnach auch um den Faktor 1.4 größer, als die von Lacerda [Lacerda90] angegebene, die in etwa der  $\Gamma_5$ -Kurve in Abbildung 10.3 entspricht. Um die Ausdehnung der Probe zu unterbinden ist mit wachsendem Magnetfeld ein zunehmender Druck von Nöten, dessen Verlauf in Abbildung 10.4 einzusehen ist. Der Druck ist nach Gleichung (\*\*\*) der Skalierungsthese abhängig von der Kompressibilität der Probe, und die Kompressibilität bestimmt sich wiederum aus dem verwendeten Messverfahren. Es ist relevant, ob zum Beispiel uniaxialer oder hydrostatischer Druck ausgeübt wird, wie in Abschnitt 3.2 dargelegt wurde. In Abschnitt 8.4 erfolgte eine Berechnung verschiedener Kompressibilitäten auf Grundlage unterschiedlicher Magnetostruktionsmessungen, das heißt, uniaxialer Druck für isotrope sowie anisotrope Dilatation und hydrostatischer Druck für isotrope sowie anisotrope Dilatation. Diese vier Fälle sind in der Abbildung 10.4 berücksichtigt, inklusive der Kompressibilität von  $\kappa=0.95\text{Mbar}^{-1}$ , die Mignots

Berechnungen zugrunde liegt [Mignot88] – siehe hierzu Tabelle 10.1. Es soll hier nur veranschaulicht werden, wie sich die Kompressibilität auf die Druckmessungen auswirkt.

$\kappa$ [Mbar <sup>-1</sup> ]	Messverfahren	Dilatation
1.22	hydrost. Druck	anisotrop
0.95	hydrost. Druck(?)	anisotrop(?)
0.86	hydrost. Druck	isotrop
0.64	uniaxial. Druck	anisotrop
0.27	uniaxial. Druck	isotrop

*Die Fragezeichen betreffend den Mignot-Wert resultieren aus dem Umstand, dass der Literatur diesbezüglich keine eindeutigen Angaben zu entnehmen waren.*

Tab.10.1

Der Darstellung in Abbildung 10.4 ist erwartungsgemäß zu entnehmen, dass der benötigte Druck mit abnehmender Kompressibilität steigt. Für die hier betrachteten Kompressibilitäten variiert der Druck bis maximal 2.4kbar bis 14T, ist also von eher geringer Größenordnung. Das Entscheidende ist das Verhalten der Suszeptibilität unter der Bedingung des konstanten Volumens, und dieser Verlauf ist in Abbildung 10.5 für die zuvor diskutierten Kompressibilitäten der Kurve gegenübergestellt, die bei P=0kbar gemessen wurde. Die Rechnungen stützen sich auf Gleichung (\*\*\*\*) der Skalierungsthese, und deutlich kann man mit abnehmender Kompressibilität das Wandern des kritischen Feldes zu höheren Flussdichten beobachten, wobei die Maxima gleichzeitig stärker ausschmieren. Theoretisch sollte ja, wie im Kapitel 8 schon erwähnt, der metamagnetische Übergang auch unter der Zwangsbedingung existieren. Interessant ist nun ein Vergleich der theoretischen und experimentellen Suszeptibilitäten. Dazu folgt eine kurze Schilderung der experimentellen Vorgehensweise sowie der Auswertung der Messresultate.

Die experimentellen Daten wurden wie bereits erwähnt mit der Suszeptibilitätsmessbrücke der Firma Barras-Provence gewonnen. Dazu wurde die Probe auf 1.4 Kelvin abgekühlt und ein Feldsweep auf B=14T gefahren, anschließend wieder auf 0T. Nun wurde der obere Stempel auf die Probe geführt, sodass er eine Magnetostriktion in c-Richtung unterbindet. Wird hierdurch eine um Größenordnungen wesentlich kleinere Dilatation in Querrichtung erzielt, oder sogar unterbunden, so befindet sich die Probe bei einem erneuten Feldsweep auf 14T in der Bedingung des konstanten Volumens. Man erwartet demnach ein deutlich unterdrücktes Maximum in der Suszeptibilität, das bei höheren Feldern peakt.

Die Betrachtung soll mit den Messungen an dem Lejay-Kristall begonnen werden. Bezug nehmend auf die Abbildung 10.6 wird die Prozedur vorgeführt, um den vorhandenen Hintergrund in den Suszeptibilitätsdaten zu eliminieren. Die Abbildung ist aufgrund der zum Teil sich stark überlappenden Messkurven farbig gehalten. Die blaue Kurve gibt das magnetische Signal ohne Druck wieder. Die enorme Wölbung zeigt den Einfluss des Hintergrundes der von gleicher Größenordnung ist, aber diese auch um ein Vielfaches übertreffen kann, wie andere nicht dargestellte Messungen belegen. Bei 8.2T bildet sich eine kleine Schulter aus, die auch in Ultraschalldaten gesehen wurde – siehe Abbildung 10.18, deren Ursache aber nicht geklärt werden konnte. Die hintergrundfreien Magnetisierungsdaten, Abbildung 10.1, wurden abgeleitet und dienen als Kalibrierung der Suszeptibilität ohne Druck, dargestellt durch die rote Kurve. Die Nulldruckkurve wurde normiert, indem ihr Kurvenverlauf im Maximumbereich, das heißt Peakbreite und Peakhöhe, dem, der aus den Magnetisierungsdaten gewonnenen Suszeptibilität, angepasst wurde. Die Druckdaten wurden entsprechend reskaliert. Durch Differenzbildung gelangt man zu dem die Messdaten

verfälschenden Hintergrund, als Offset in der Abbildung 10.6 bezeichnet und in schwarz eingetragen. Zwischen 6.5T und 8.2T zeigt der Hintergrund einige Minima, die durch die Tatsache zustande kommen, dass die gemessene und die abgeleitete Suszeptibilität in dem betreffenden Intervall nicht kongruent sind. Die experimentelle Suszeptibilität verläuft etwas schmaler, sieht man einmal von der Schulter bei 8.2T ab. Der erhaltene Hintergrund wurde daher noch einmal angeflittet und die stärkeren Abweichungen in den allgemeinen Kurvenverlauf eingeebnet. Der Hintergrund, mit dem letzten Endes gearbeitet wurde, wird in der Abbildung 10.6 durch die braune Kurve repräsentiert. Subtrahiert man von der Messkurve, die die Zwangsbedingung des konstanten Volumens widerspiegelt, ebenfalls durch schwarze Punkte eingezeichnet, den modifizierten Hintergrund, so resultiert die gewünschte Messkurve, unter der Annahme, dass der Hintergrund als identisch in beiden Messzyklen anzusehen ist. Der besseren Übersicht wegen, ist das Resultat in der nächstfolgenden Abbildung 10.7 gezeigt. Die Suszeptibilität besitzt ein breites Maximum, das sich bei zirka  $9T \pm 0.3T$  ansiedelt.

Der  $\Gamma$ -Parameter ist, wie in Kapitel 4 gezeigt wurde, über die Kompressibilität direkt mit dem Grüneisenparameter verknüpft. Es besteht also die Möglichkeit, durch Fixierung einer Größe, die zweite durch einen Skalierungsfitt zu bestimmen, wobei die dritte sich dann aus oben erwähnter Relation ergibt. Die im Kapitel 8 geschilderten Messungen von Matsuhira, die mit hoher Präzision durchgeführt wurden, sollen daher als Vergleich für die Messungen an der Lejay-Probe dienen. Matsuhira verwendete für seine theoretischen Ableitungen ein isotropes  $\kappa$  von  $0.82\text{Mbar}^{-1}$ . Dieser Wert entspricht ungefähr dem Wert für  $\kappa$  unter hydrostatischem Druck bei isotroper Ausdehnung, wie er aus den Ultraschalldaten an Lejay-Proben gewonnen wurde, mit  $\kappa=0.86\text{Mbar}^{-1}$ . Dieser letzte Wert wurde daher als Grundlage der Rechnungen verwendet. Die Lage und Höhe des Maximums wird am Besten durch einen  $\Gamma$ -Parameter von  $190\text{Mbar}^{-1}$  gefittet, und würde sich in die Resultate von Matsuhira mit einem  $\Gamma$ -Parameter von  $200\text{Mbar}^{-1}$  gut eingliedern. Das würde einen Grüneisenparameter von 220 bedingen. Blicke nur unbefriedigend, dass die Transformation der Magnetisierung auf die Magnetostriktion eigentlich einen  $\Gamma$ -Parameter von  $280\text{Mbar}^{-1}$  nach Abbildung 10.3 fordert. Ein höherer  $\Gamma$ -Wert würde aber hinsichtlich des Experimentes an der Lejay-Probe den Maximumswert unter Druck verringern, ebenso eine stärkere Verschiebung zu höheren Feldern bewirken, wie in Abbildung 10.13 einzusehen ist. Dort sind theoretische Verläufe für ein fixiertes  $\kappa$  aber unterschiedliche  $\Gamma$ -Parameter ( $190\text{Mbar}^{-1}$  und  $280\text{Mbar}^{-1}$ ) eingetragen. Der  $\kappa$ -Wert stimmt zwar nicht mit dem zugrunde gelegten Wert von  $0.86\text{Mbar}^{-1}$  überein, aber die qualitative Aussage bezüglich der Auswirkung der unterschiedlichen  $\Gamma$ -Werte auf Peakhöhe und -lage bleibt gültig.

Nun liegt sicher dem durchgeführten Experiment ein Kompressionsmodul von  $\kappa=0.64\text{Mbar}^{-1}$  zugrunde, da es sich um eine anisotrope Dilatation handelt, die durch uniaxialen Druck unterbunden wird. Ein niedrigerer  $\kappa$ -Wert fordert aber einen kleineren  $\Gamma$ -Parameter. Um noch einmal die Symbiose des Wechselspiels zwischen dem  $\Gamma$ -Parameter und der Kompressibilität darzustellen, sind in der Abbildung 10.9 vier Fits für die vier in Abschnitt 8.4 errechneten Kompressibilitäten gezeigt. Eine Übereinstimmung in Peakhöhe und -lage wird mit zunehmendem Kompressionsmodul durch einen abnehmenden  $\Gamma$ -Parameter erzielt. Summa summarum wird das experimentelle Resultat für kleiner werdende Kompressibilität durch einen anwachsenden Grüneisenparameter beschrieben. Für  $\kappa=0.64\text{Mbar}^{-1}$  mit einem  $\Gamma$ -Wert von  $160\text{Mbar}^{-1}$  erhält man demnach einen Grüneisenparameter von  $\Omega=250$ . Der  $\Gamma$ -Wert ist fast identisch zu den Angaben von Mignot mit  $\Gamma=167\text{Mbar}^{-1}$  beziehungsweise  $\Gamma=171\text{Mbar}^{-1}$ .

Blicke festzuhalten, dass eine Auswertung mit dem Skalierungsverfahren, das als Grundlage einen  $\Gamma$ -Parameter von  $280\text{Mbar}^{-1}$  bei einem  $\kappa$  von  $0.64\text{Mbar}^{-1}$  annimmt, das Experiment nur sehr ungenügend beschreiben kann – siehe Abbildung 10.13. Die Abweichung des



Maximalwertes zwischen Theorie und Experiment scheint am Rande des Vertretbaren, das Verhältnis der Amplituden  $A_{P=0}/A_{V(\text{exp})\text{konst}}=2.1$  und  $A_{P=0}/A(\Gamma=280\text{Mbar}^{-1})_{V(\text{theo})\text{konst}}=2.7$  mag das veranschaulichen, besteht aber doch der gravierendere Unterschied in der viel zu geringen (experimentellen) Feldverschiebung (auf 9T im Vergleich zu den theoretisch geforderten 11.2T). Eine zufriedenstellendere Übereinstimmung gelingt durch eine Rechnung mit einem  $\Gamma$ -Parameter von  $160\text{Mbar}^{-1}$ . Das Maximum sollte sich nach Rechnung bei einem Feld von 9T befinden und das Amplitudenverhältnis  $A_{P=0}/A(\Gamma=160\text{Mbar}^{-1})_{V(\text{theo})\text{konst}}=2.1$  betragen – siehe Abbildung 10.9. Dieser Fit entspricht einem Grüneisenparameter von  $\Omega=250$ . Rätselhaft bleibt daher das Phänomen, dass sich die Magnetostruktionsdaten an der Lejay-Probe in hiesigen Messungen einerseits im Rahmen des verwendeten Skalierungsansatzes nur durch einen ziemlich erhöhten  $\Gamma$ -Parameter beschreiben lassen, jedoch der Versuch, die Suszeptibilität unter Druck mit diesem Wert anzugleichen, scheitert.

Erwähnt werden muss auch, dass die experimentelle Halbwertsbreite (HWB) mit ungefähr 4T im Vergleich zur theoretischen Halbwertsbreite von 2T doppelt so groß ist. Das könnte darin begründet liegen, dass sich der Hintergrund bei den Nulldruck- und den Druckkurven doch verändert und die Annahme des identischen Offsets somit hinfällig wäre. Die wesentlich größere Halbwertsbreite der experimentellen Kurve führt dazu, dass die integrierte Suszeptibilität immer stärker gewichtet wird als deren theoretisches Pendant, und zwar mit dem Effekt, dass sie ab 11T sogar die Nulldruckkurve schneidet und oberhalb derselben verläuft. Dieses Verhalten ist in Abbildung 10.8 dargestellt, die die theoretischen und experimentellen Verläufe des magnetischen Momentes für die verschiedenen Zwangsbedingungen enthält.

Die theoretische Magnetisierungskurve nach der Skalierungsthese in Abbildung 10.8 auf Grundlage der Werte  $\Gamma=190\text{Mbar}^{-1}$  und  $\kappa=0.86\text{Mbar}^{-1}$  ist stellvertretend für alle Kurven mit angemessenem Wertepaar  $(\Gamma/\kappa)$ , die die experimentelle Kurve in punkto Peakhöhe und Peaklage anfitzen, eingetragen. Der Verlauf ist, wie man sich ja unter Vergegenwärtigung der Abbildung 10.9 überzeugen kann, immer nahezu identisch.

Glaut man nun der Skalierungsthese, die empirisch einige überzeugende Belege erfahren hat, so sollte sich das magnetische Moment unter Druck reduzieren. Mit zunehmendem Druck entsprechend stärker, sodass die Druckkurven immer unter der Nulldruckkurve verlaufen sollten. Demnach wäre die Ursache vorwiegend in dem unzulänglich bestimmten Hintergrund zu suchen.

Die Auswertung der zweiten Probe, des Onuki-Kristalls, verlief analog und ist in der Abbildung 10.10 durch die verschiedenen Kurven zu verfolgen. Die beiden oberen mit schwarzen Punkten versehenen Verläufe sind die experimentellen Daten zur Nulldruck- und Druckkurve. Erstere ist wieder an der Kalibrierung normiert worden. Auch hier zeigte sich, dass der Verlauf der Suszeptibilität im Bereich des Maximums in der Nulldruckkurve schmaler verläuft, als es die Magnetisierungsdaten gewähren. Daher wurden die zwei Minima, die sich bei der Differenz in dem Hintergrund um 8T gruppieren analog zur obigen Auswertung geglättet. Die rote Kurve stellt somit wieder den realen Offset dar. Die durch Subtraktion erhaltene Druckkurve befindet sich im unteren Teil des Diagramms. Zeigte der Lejay-Kristall schon eine größere als aus der Skalierungsthese zu erwartende Halbwertsbreite, so ist das Maximum bei der Onuki-Probe sehr stark verschmiert. Aufgrund des plateauartigen Verlaufes – in den Abbildungen 10.11 und 10.12 ist die Kurve noch einmal etwas vergrößert dargestellt – lässt sich die Lage des Maximums nicht genau lokalisieren scheint aber irgendwo zwischen 9.5T und 11.5T zu liegen.

Wieder zum Vergleich mit den Matsuhira-Daten, die durch Messungen an Onuki-Proben erzielt wurden, ist als Grundlage der Skalierung ein  $\kappa$  von  $0.86\text{Mbar}^{-1}$  verwendet worden. Bedingt durch den arg ausgeschmierten Verlauf, ist ein exakter Fit nicht möglich, doch wird das Experiment annähernd gut durch einen  $\Gamma$ -Parameter von  $280\text{Mbar}^{-1}$  beschrieben. Dieser

Wert war ja bereits bei der Transformation der Magnetisierung auf die Magnetostriktion anhand der Lejay-Proben gewonnen worden. Der Grüneisenparameter bemisst sich somit auf  $\Omega=325$ . Doch begründen die Versuchsbedingungen die Wahl des  $\kappa$ -Wertes von  $0.64\text{Mbar}^{-1}$ , und analog zu den Fits in Abbildung 10.9 sind für die Onuki-Probe Berechnungen nach der Skalierungsthese für die vier in Kapitel 8 Abschnitt 4 aufgeführten Kompressibilitäten durchgeführt worden, jedoch sind die Kurven bis auf den anisotropen uniaxialen Fall nicht dargestellt, sondern nur die Ergebnisse in Tabelle 10.2 aufgelistet.

$\kappa$ [ $\text{Mbar}^{-1}$ ]	$\Gamma$ [ $\text{Mbar}^{-1}$ ]	$\Omega$
1.22	340	279
0.86	280	325
0.64	250	391
0.27	160	593

*Tabelle 10.2*

Für den uniaxialen, anisotropen Fall extrahiert sich demnach ein drastisch erhöhter Grüneisenparameter von 391 – siehe auch Abbildung 10.12.

In Abbildung 10.14 ist noch einmal ein Vergleich für einen festen  $\Gamma$ -Wert von  $280\text{Mbar}^{-1}$  und unterschiedliche Kompressibilitäten dargestellt. Das kleinere  $\kappa$  drückt, wie aus der Abbildung 10.4 bekannt, den metamagnetischen Übergang zu höheren Feldern. Doch scheint der  $\Gamma$ -Parameter, wie er aus der Transformation der Magnetisierung auf die Dilatation resultiert – siehe Abbildung 10.3 – auch hier etwas unbefriedigend zur Erläuterung der Messdaten, doch ist die Diskrepanz bei Weitem nicht so groß, wie bei der Lejay-Probe.

Die braune Kurve, die die experimentelle Druckkurve (orange) in Abbildung 10.14 überlagert, ist durch die Theorie mit einem  $\Gamma$ -Parameter von  $280\text{Mbar}^{-1}$  und einem  $\kappa$  von  $0.64\text{Mbar}^{-1}$  bestimmt. Das theoretische Amplitudenverhältnis war ja gegeben durch  $A_{P=0}/A(\Gamma=280\text{Mbar}^{-1})_{V(\text{theo})\text{konst}}=2.7$ . Demgegenüber findet man experimentell eine Relation von  $A_{P=0}/A_{V(\text{exp})\text{konst}}=2.5$ . Der experimentelle Feldshift beträgt hier in etwa 2.7T (auf ca. 10.5T). Theoretisch wären aber 3.4T gefordert.

Die kaum mehr vernünftig zu bestimmende Halbwertsbreite (ungefähr 6.1T) beziehungsweise deren deutlich verbreiteter Verlauf gegenüber der Theoriekurve (HWB von 3.3T), lässt schon erahnen, dass die integrierte Suszeptibilität das gleiche Manko aufweisen wird, wie die Messung an der Lejay-Probe. Dies wird durch Einsicht in die Abbildung 10.15 bestätigt; denn die experimentelle Kurve für konstantes Volumen kreuzt bei zirka 12.6T die Nulldruckkurve der Magnetisierung. Auch hier ist der angegebene theoretische Verlauf exemplarisch für ein Wertepaar ( $\Gamma/\kappa$ ) zu verstehen, dass in Peaklage und -höhe das Experiment zufriedenstellend nach der Skalierungsthese beschreibt.

Nach der Präsentation der Messergebnisse an der Onuki- sowie der Lejay-Probe, sollen noch einmal kurz resümierend das unterschiedliche Verhalten beider Proben unter Druck und die Ergebnisse aus dem Skalierungsverfahren wiederholt und betrachtet werden.

Die Lejay-Probe zeigte eine gegenüber der Literatur [Lacerda90] größere Magnetostriktion und demzufolge einen größeren  $\Gamma$ -Parameter. Die Suszeptibilität unter Druck hingegen lieferte einen  $\Gamma$ -Parameter der in gutem Einklang mit dem aus der Literatur [Mignot88] bekannten Wert ist, führt aber, je nachdem welche Kompressibilität der Auswertung zugrunde gelegt wird, zu einem entsprechend größeren Grüneisenparameter. Wodurch die Diskrepanz

des  $\Gamma$ -Parameters letztendlich stammt, ist nicht zu klären. Ein etwaig vorhandenes Spiel in der Apparatur, genauer in der Messzelle, könnte in Erwägung gezogen werden, doch muss auch die Probengüte berücksichtigt werden, war sie doch nicht von erster Qualität, wovon die „blättereartige“ Struktur zeugte. Welche Messung daher der Realität näher kommt, ist abschließend hier nicht zu sagen, sondern bedarf ergänzender Untersuchungen.

Ein Vergleich mit einer Probe aus einem anderen Züchtungslauf, der Onuki-Probe, ist bedingt durch die bessere Qualität daher auch mit Vorsicht zu genießen. Dennoch wurden verschiedene Parameter zur Auswertung der Daten an diesem Kristall zugrunde gelegt, oder zur Analyse herangezogen, die aus Ergebnissen an dem Lejay-Kristall resultierten, wie etwa die Kompressibilität oder der  $\Gamma$ -Parameter.

Die Literatur [Matsuhita99] berichtet von einem leicht erhöhten  $\Gamma$ -Parameter von  $200\text{Mbar}^{-1}$  gegenüber den Lejay-Proben mit  $\Gamma=171\text{Mbar}^{-1}$ , und die Skalierungsrechnungen, die an den Ergebnissen der Onuki-Probe exerziert wurden, griffen wiederum auf eine Kompressibilität zurück, die an Lejay-Proben gemessen wurde – in der Literatur ebenso [Matsuhira99][Haen93],  $\kappa = 0.82\text{Mbar}^{-1}$ ], wie in vorangehender Rechnung. Die Skalierungsthese lässt die Experimente an der Onuki-Probe im Rahmen einer Auswertung mit einer Kompressibilität von  $0.86\text{Mbar}^{-1}$  auch schlüssig erscheinen, mit Übereinstimmung der  $\Gamma$ -Parameter von  $280\text{Mbar}^{-1}$ , die sowohl aus der Suszeptibilität unter Druck, sowie der Transformation der Magnetostriktion auf die Magnetisierung resultieren, letzterer jedoch, dies gilt es zu berücksichtigen, an Lejay-Proben gewonnen wurde.

Die geringere Kompressibilität von  $0.64\text{Mbar}^{-1}$ , die dem Experiment eher zuzurechnen ist, lässt aber auch diese Übereinstimmung aufweichen. Der zur Erklärung der Resultate nunmehr notwendige  $\Gamma$ -Parameter von  $250\text{Mbar}^{-1}$  siedelt zwar in der Nähe von  $280\text{Mbar}^{-1}$ , würde aber dennoch eine bemerkenswert geringere Feldverschiebung von zirka  $0.7\text{T}$  bewirken, gegenüber einem Parametersatz von  $(\kappa, \Gamma)$  von  $(0.64\text{Mbar}^{-1}, 280\text{Mbar}^{-1})$ .

Es könnte aber auch vermutet werden, dass, wenn in den Messungen an den Lejay-Proben ein vorhandenes Spiel sich negativ auf die Resultate auswirkte, dieses unter Umständen auch die Messungen am Onuki-Kristall beeinflusst haben könnte, obwohl die Dilatationsmessungen senkrecht zur Druckrichtung kein Indiz dafür geben, wie später noch zu sehen sein wird. Demnach hätte begleitend zu jeder Magnetostriktionsmessung unter Druck senkrecht zum angelegten Magnetfeld eine Expansionsmessung parallel zum angelegten Magnetfeld zu erfolgen.

Summa summarum ist kein einheitlicher  $\Gamma$ -Parameter zur Beschreibung der Magnetostriktionsexperimente und der Experimente unter „passivem Druck“ gefunden worden, wie es nach der Skalierungsthese auf Grundlage eines hydrostatischen Druckes zu erwarten wäre. Eventuell gilt es zu überlegen, ob der Grüneisenparameter unter Druck ebenfalls eine Renormalisierung erfährt.

Auch wenn ein fester Parametersatz nicht hundertprozentig jedes Experiment beschreiben kann, so scheint doch gesichert, dass ein kritisches Feld des metamagnetischen Übergangs unter der Zwangsbedingung des konstanten Volumens existiert, das gegenüber dem sich frei expandierenden System zu höheren Magnetfeldern verschoben ist.

Das die Zwangsbedingung auch tatsächlich vorlag wurde an einem gleichzeitig durchgeführten Magnetostriktionsexperiment, in dem die Dilatation entlang der  $[110]$ -Richtung gemessen wurde, bestätigt – siehe Abschnitt 10.2.

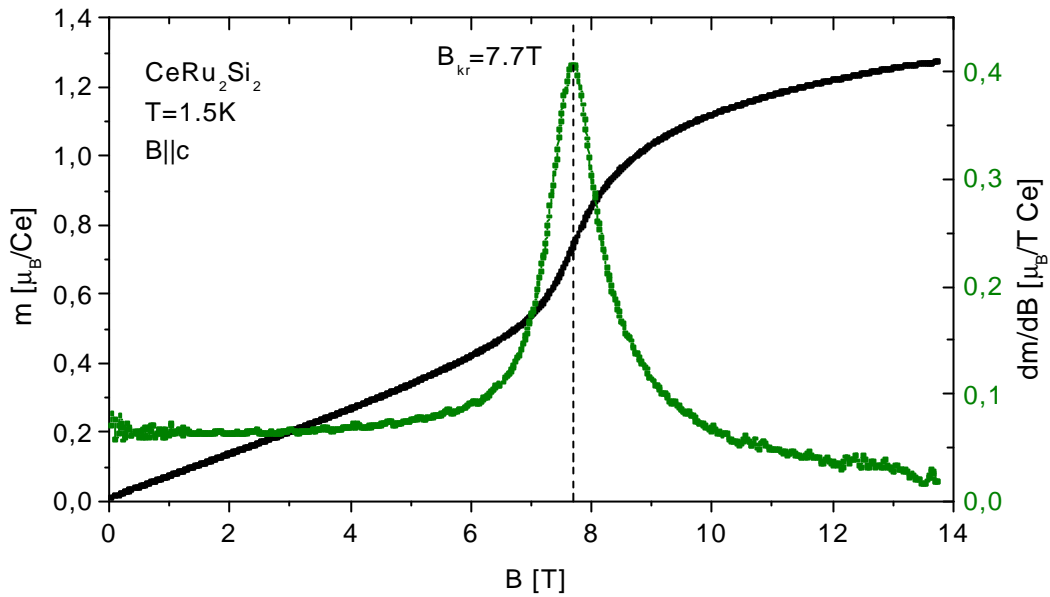


Abb.10.1: Die Magnetisierung sowie die dazugehörige Suszeptibilität. Das Diagramm ist farblich unterteilt, wobei die rechte Ordinate den Suszeptibilitätsverlauf (grüne Kurve) zeigt.

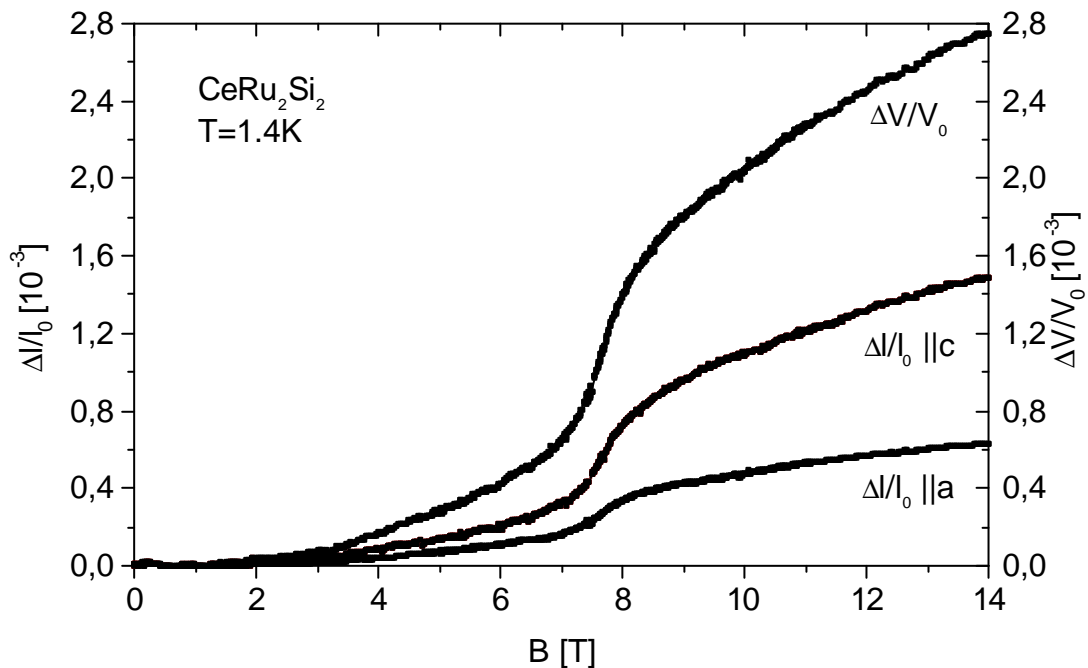


Abb.10.2: Dargestellt sind die Dilatationen entlang der kristallographischen Achsen, die mittels Ultraschallinterferometrie gemessen wurden. Das Magnetfeld ist in allen Messungen parallel  $c$  orientiert. Der verwendete  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Kristall entstammt der Züchtung von Lejay. Die rechte Ordinate bezieht sich auf die relative Volumenänderung, die entsprechend  $\Delta V/V_0 = 2\Delta l/l_0(\parallel a) + \Delta l/l_0(\parallel c)$  errechnet wurde.

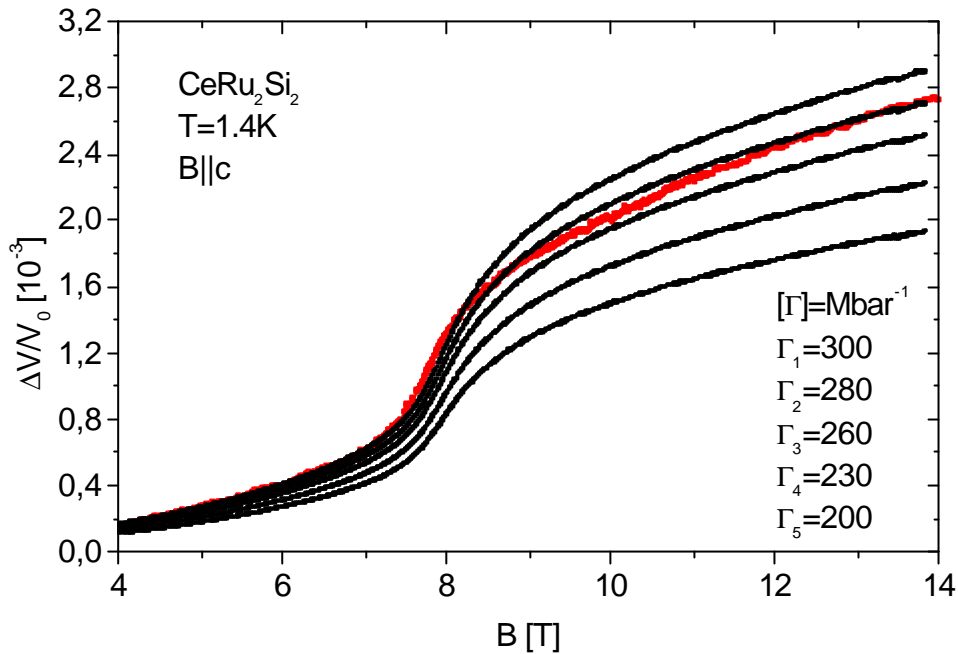


Abb.10.3: Die Volumenmagnetostraktion, die sich aus der Maxwellrelation für unterschiedliche  $G$ -Parameter aus den Magnetisierungsdaten ergibt. Die  $G$ -Werte ordnen sich entsprechend ihrer Nummerierung den theoretischen Kurven (schwarze Punkte) von oben nach unten zu. Die rote Kurve ist die experimentell ermittelte Volumendilatation aus Abbildung 10.2, die am Besten durch einen Parameter von  $G=280\text{Mbar}^{-1}$  beschrieben wird.

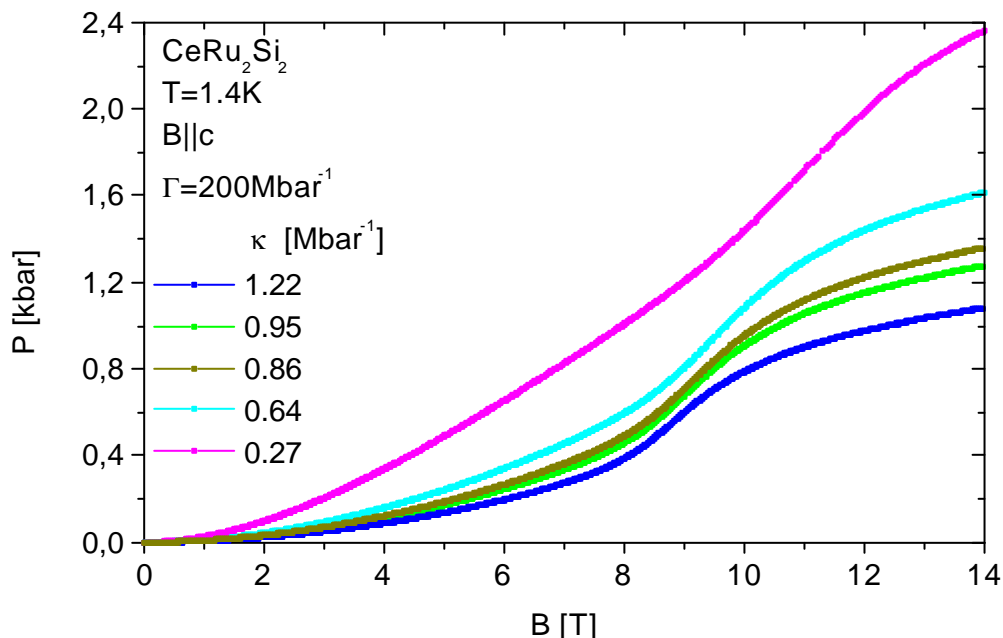


Abb.10.4: Dargestellt ist der Druck, der benötigt wird, um die Probe während des Feldsweepes auf konstantem Volumen zu halten in Abhängigkeit von verschiedenen Kompressibilitäten. Es kann beobachtet werden, wie mit zunehmendem Kompressionsmodul der metamagnetische Übergang zu höheren Feldern schiebt.

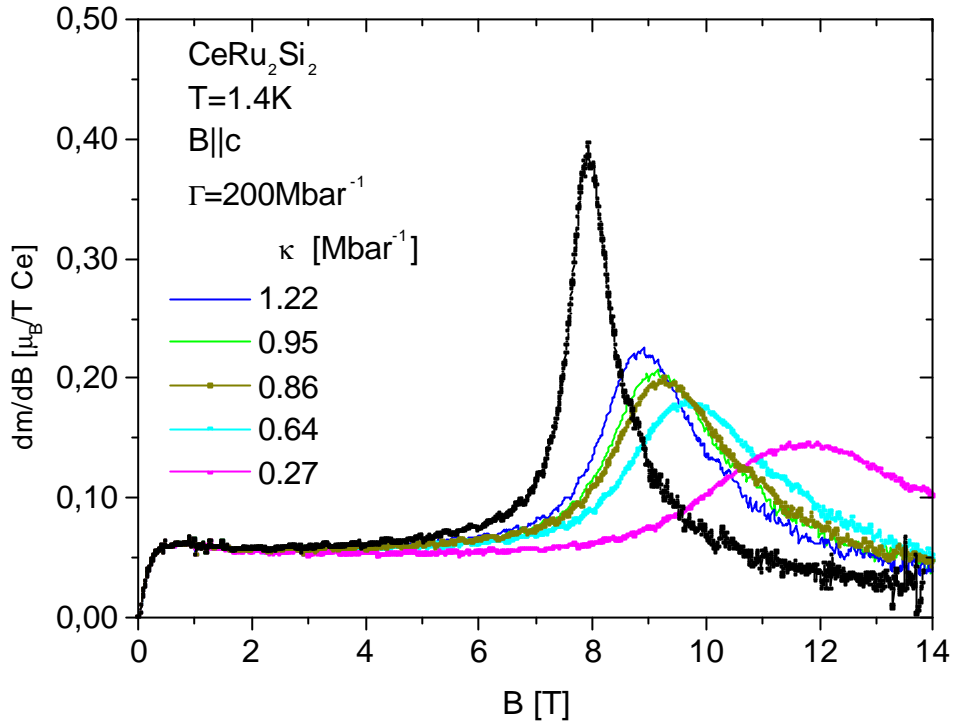


Abb.10.5: Die aus dem Skalierungsverhalten berechneten Suszeptibilitäten für konstantes Volumen bei unterschiedlichen Kompressibilitäten (farbige Kurven). Die schwarze Kurve ist die Nulldruckmessung, die aus der Magnetisierung abgeleitet wurde. Für ein zunehmendes Kompressionsmodul schiebt der metamagnetische Übergang zu höheren Feldstärken und schmiert stärker aus.

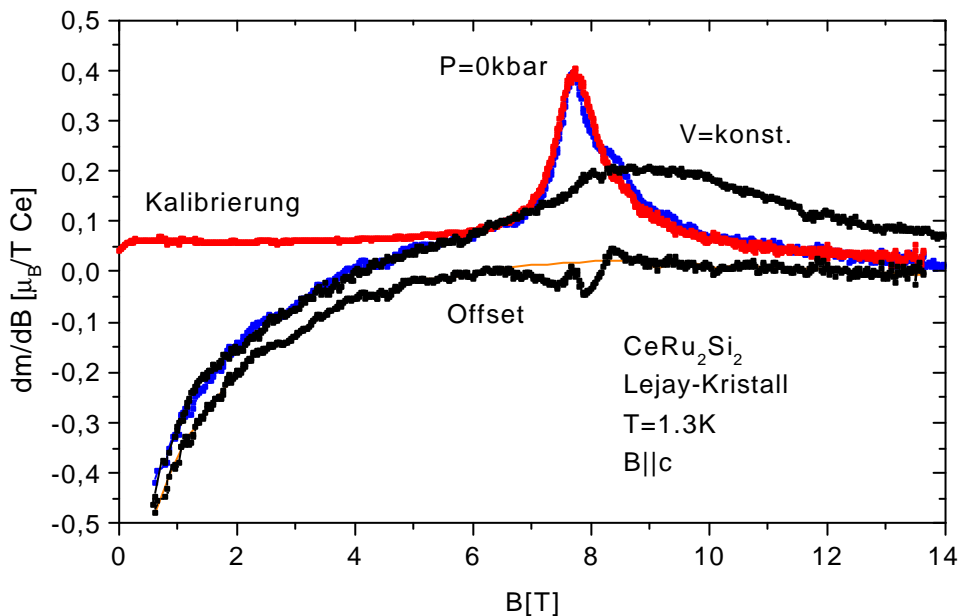


Abb.10.6: Die Suszeptibilitätsdaten erzielt am Lejay-Kristall. Gezeigt ist die Methode, den vorhandenen Hintergrund aus den Messungen zu eliminieren. Normiert wurde auf die rote Kurve, die aus den Magnetisierungsmessungen gewonnen wurde. Aus dem hieraus extrahierten Hintergrund (schwarze Punkte) wurde der Artefakt zwischen 6-9T unterdrückt. Von der Suszeptibilität unter Druck wurde der modifizierte Hintergrund (dünne braune Kurve/Offset) abgezogen.

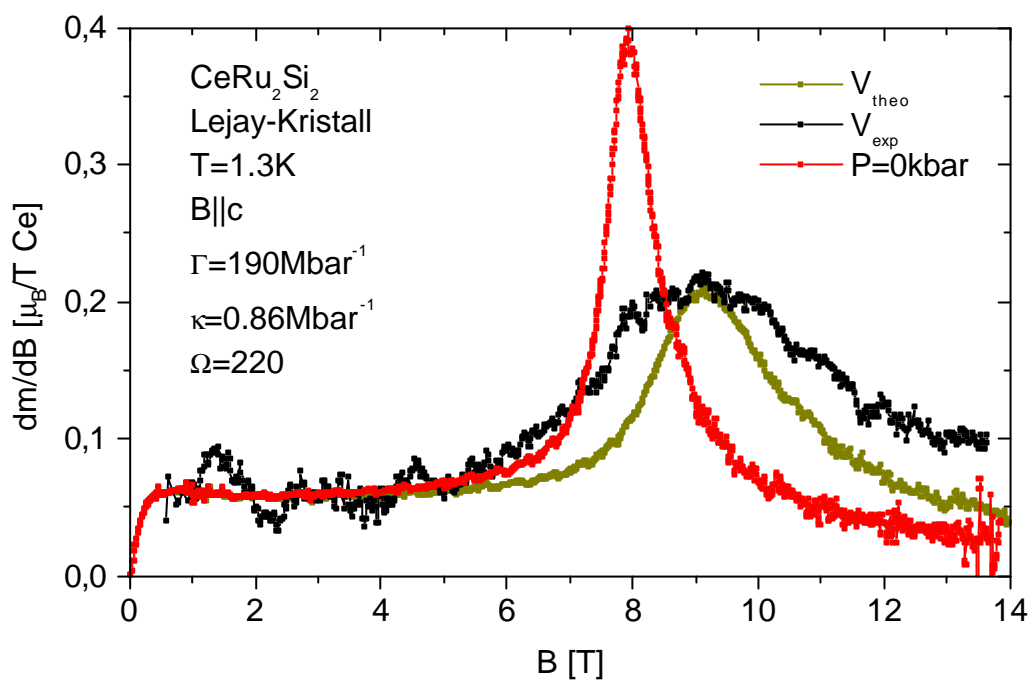


Abb.10.7: Das Ergebnis nach Eliminierung des Hintergrundes aus den Suszeptibilitätsdaten. Der Versuch, die gemessene Druckkurve der Skalierungstheorie einzubeschreiben, ist durch den olivfarbenen Fit dargestellt ( $G=190\text{Mbar}^{-1}$ ).

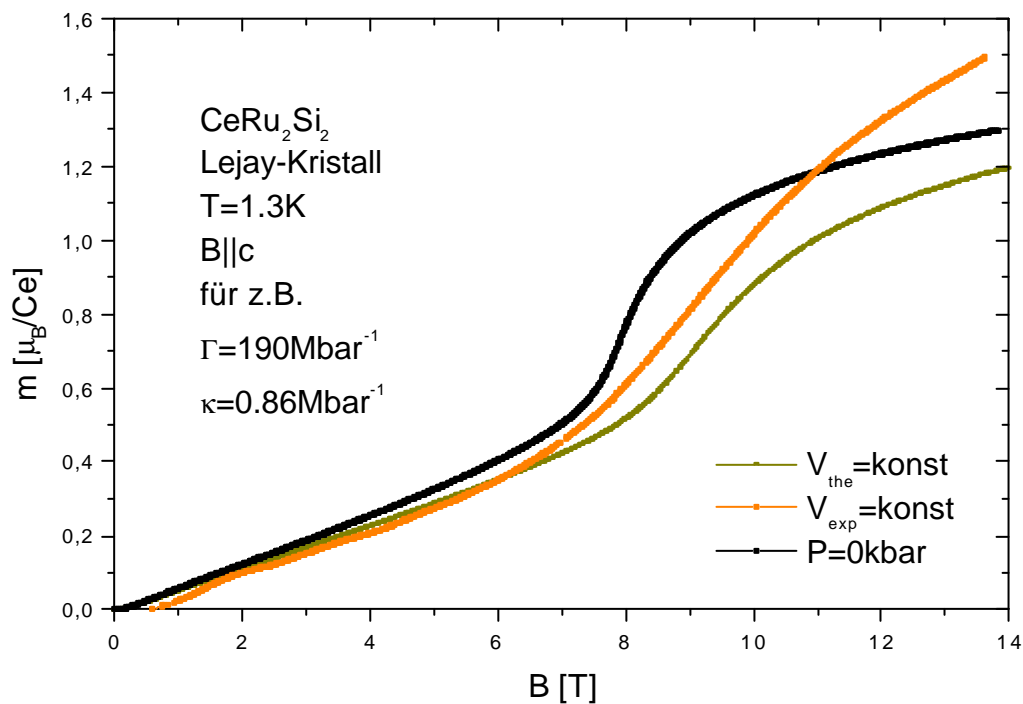


Abb.10.8: Die Magnetisierungen, wie sie sich aus der Skalierungstheorie und dem Experiment für die Zwangsbedingung unter Druck für einen  $G$ -Parameter von  $190\text{Mbar}^{-1}$  ergeben.

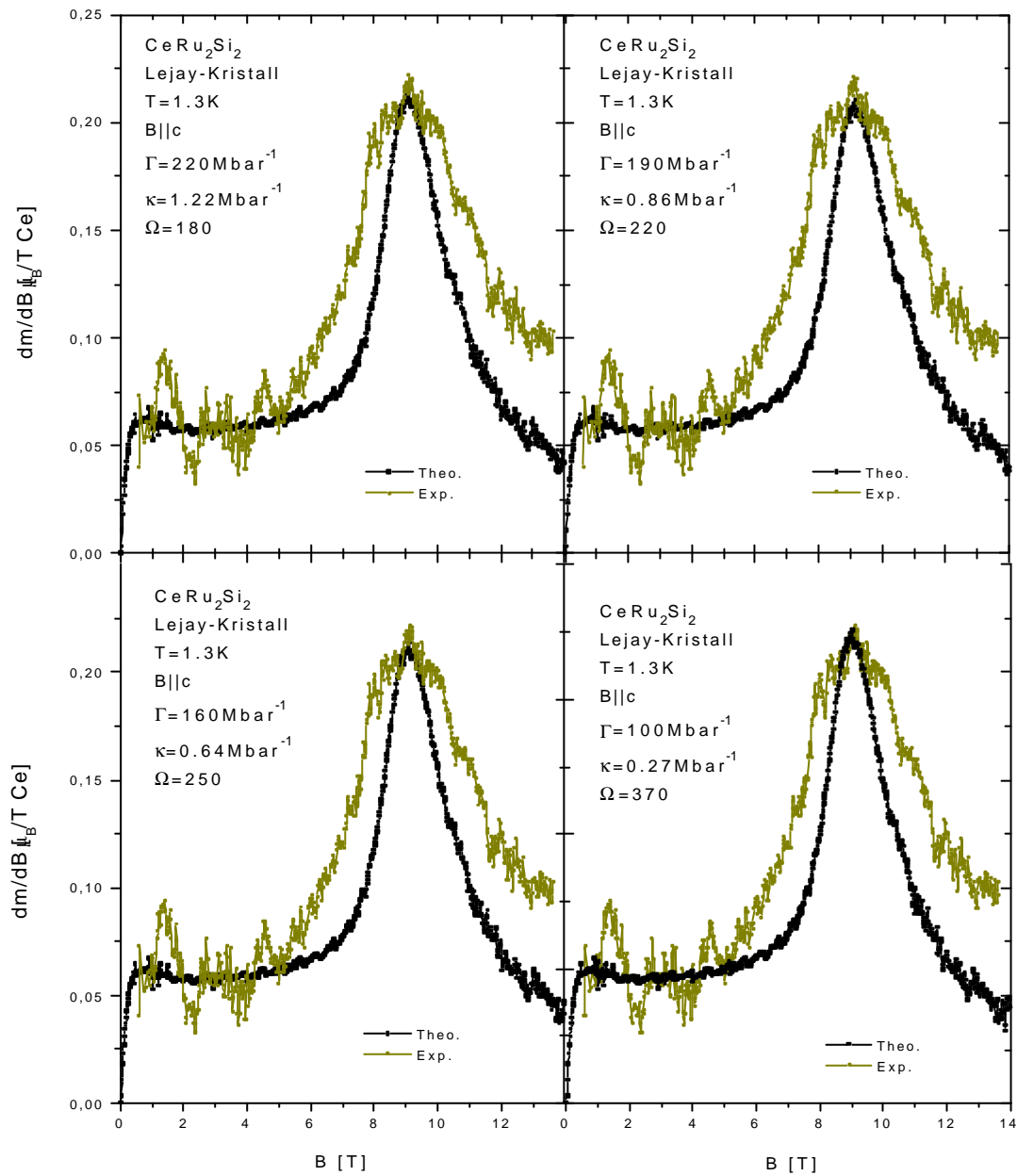


Abb.10.9: Das experimentelle Ergebnis (olivfarbene Kurve) aus den Druckmessungen ist für unterschiedliche Kombinationen des  $G$ -Parameters und der Kompressibilität nach Gleichung (\*\*\*\*) der Skalierungsthese angefitet worden. Die theoretischen Kurven in den beiden oberen Diagrammen sind für eine hydrostatische Kompressibilität

- links für den anisotropen – rechts für den isotropen Fall –

und in den beiden unteren Diagrammen für eine uniaxiale Kompressibilität respektive der beiden Fallunterscheidungen gerechnet.



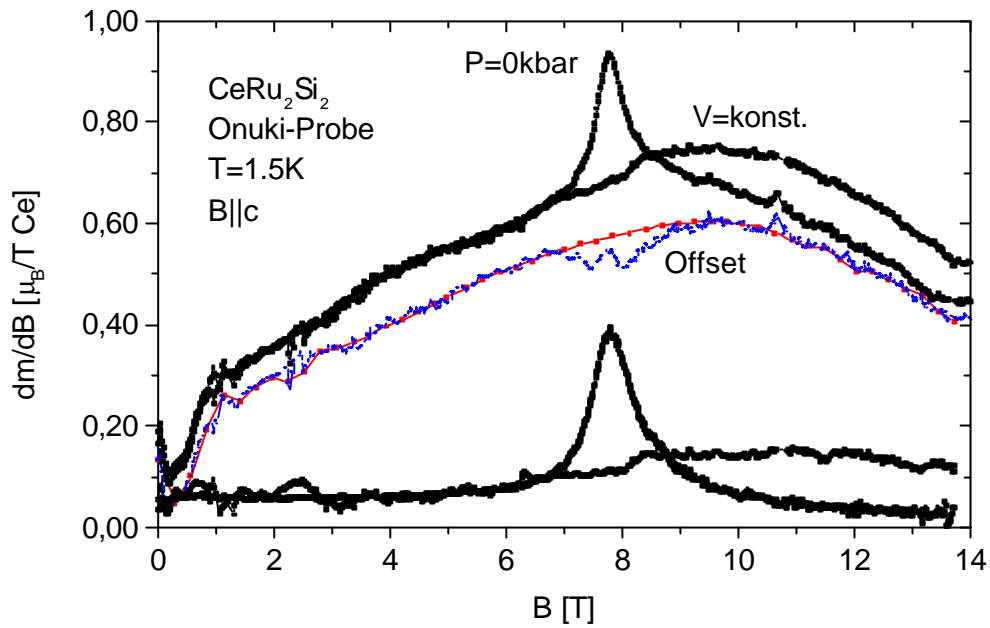


Abb.10.10: Das analog zum Lejay-Kristall angewandte Verfahren zur Subtraktion des Hintergrundes. Die beiden untersten Kurven repräsentieren die Nulldrucksuszeptibilität sowie die Druckkurve nach Abzug des Offsets.

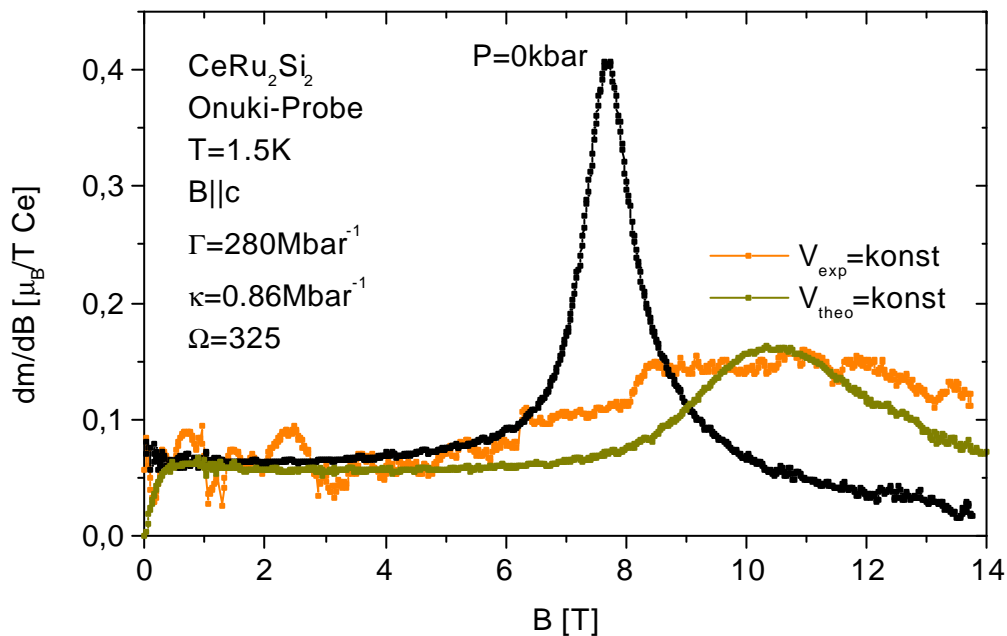


Abb.10.11: Die beiden untersten Kurven aus Abbildung 10.10 noch einmal vergrößert zusammen mit einem Fit. Man hat hier etwas Mühe die Skalierungstheorie zu verifizieren. Der  $G$ -Wert von  $280\text{Mbar}^{-1}$  entstammt der Transformation der Magnetisierungs- auf die Volumenstriktionsdaten.

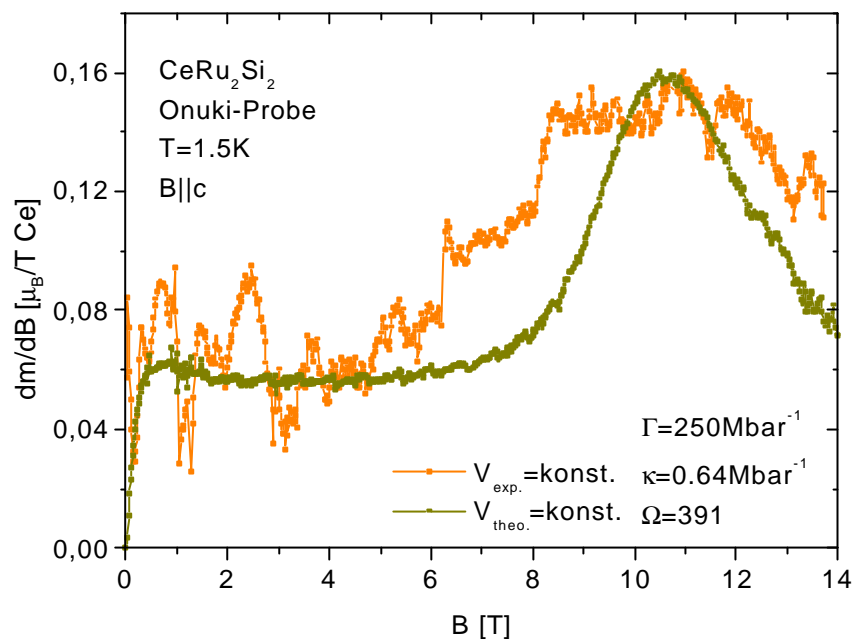


Abb.10.12: Es ist die experimentelle Druckkurve mit einem Skalierungsfit vergrößert abgebildet.

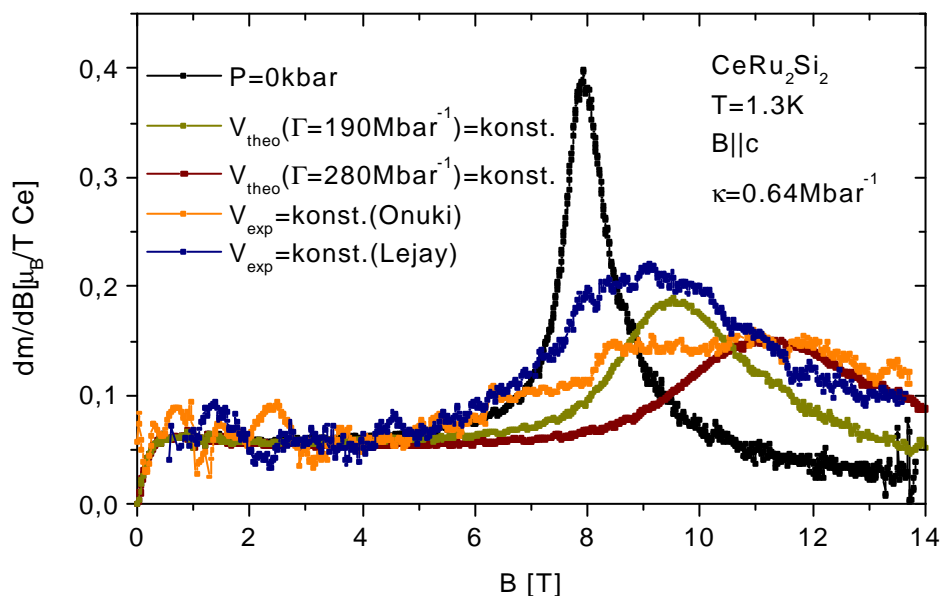


Abb.10.13: In dieser Darstellung sind die Druckmessungen an beiden Proben (Lejay-blau/Onuki-orange) sowie exemplarisch bei konstantem  $\mathbf{k}$  (uniaxialer-anisotroper Fall) zwei Skalierungsrechnungen für zwei  $\mathbf{G}$ -Parameter abgebildet.

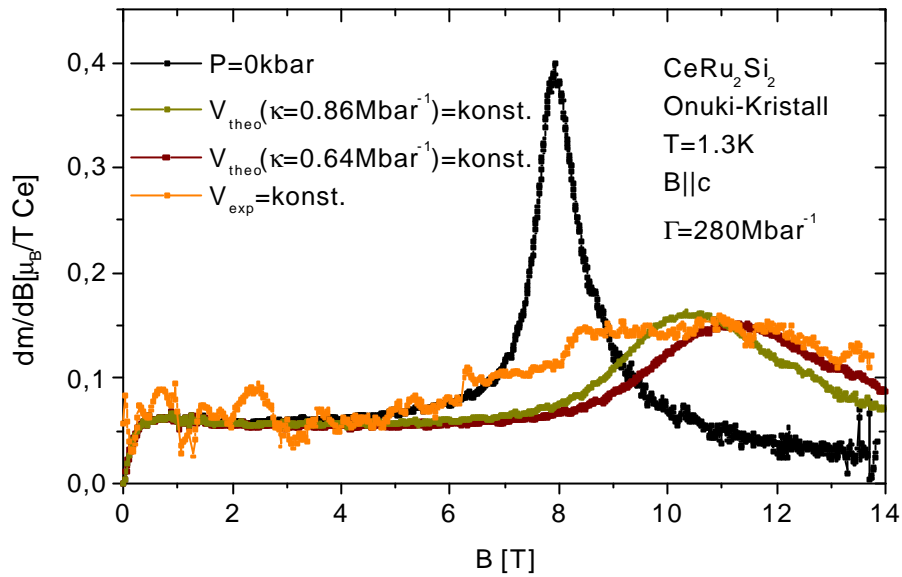


Abb.10.14: Dargestellt sind die experimentellen Kurven der Onuki-Probe mit und ohne Druck, sowie zwei Theoriekurven nach der Skalierungsthese, wobei der  $\Gamma$ -Parameter festgehalten wurde und der Transformation der Magnetisierung auf die Magnetostriktion entspricht – siehe Abbildung 10.3. Die  $\kappa$ -Werte orientieren sich an dem von Matsuhira benutzten und dem eigentlichen, das Experiment beschreibende,  $\kappa$  für uniaxialen Druck und anisotrope Dilatation.

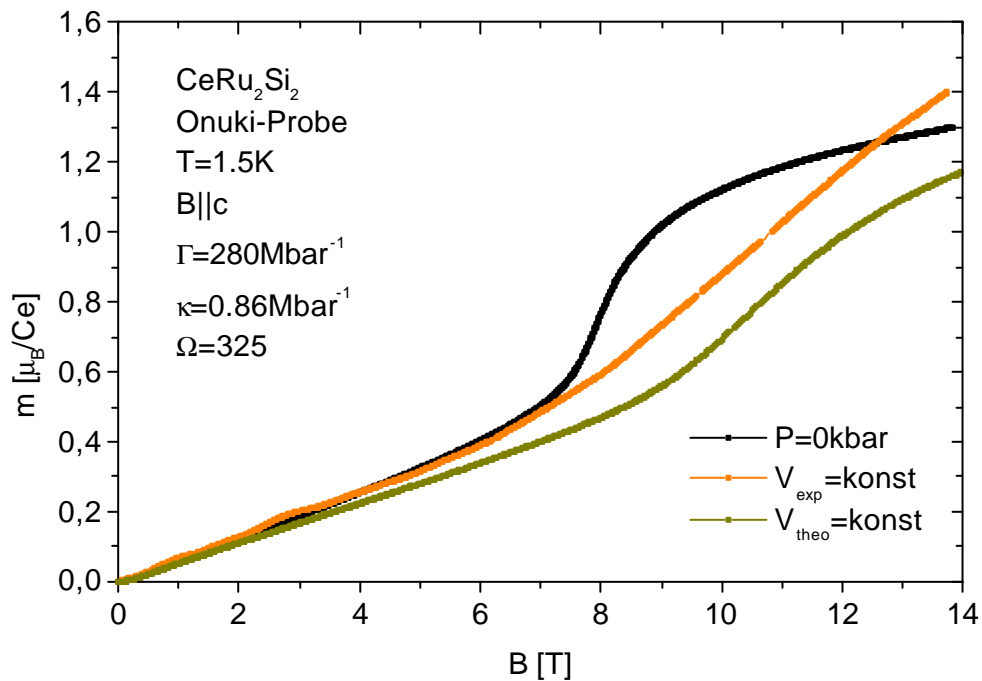


Abb.10.15: Die am Onuki-Kristall erzielten Magnetisierungen, sind dem theoretischen Verlauf für ein stabilisiertes Volumen gegenübergestellt.

## 10.2 Ergänzende Dilatationsmessungen und Ultraschallexperimente

Obwohl die Magnetostriktion an der Onuki-Probe simultan zu den Suszeptibilitätsmessungen aufgenommen wurde, sollen die Ergebnisse erst in diesem Abschnitt vorgestellt werden, da die zugrundeliegende Technik ein Ultraschallverfahren darstellt. Die zuvor präsentierten Dilatationsmessungen an der Lejay-Probe bedeuten zwar eine Abweichung von diesem Konzept, sind aber zur Bestimmung des Skalierungsparameters  $\Gamma$  vorgestellt worden. Der hierdurch gewonnene Skalierungsparameter wurde anschließend jenen gegenübergestellt, die aus den Experimenten unter Druck an den jeweiligen Proben resultierten. Es sollten so die experimentellen Resultate einer verstärkten Prüfung unterzogen werden, um deren Genauigkeit beziehungsweise deren Deutung im Rahmen der Skalierungsthese zu bestimmen.

In Abbildung 10.16 sind die Ergebnisse der Magnetostriktionsmessungen eingezeichnet. Die Messungen sind stärker verrauscht, als die zuvor vorgestellten Expansionsmessungen. Die Reibung konnte demnach nicht gänzlich durch die Verwendung von Weichmetallen unterbunden, zudem die auftretende Wärme, aufgrund der geringeren Wärmeleitfähigkeit der CuBe-Druckzelle im Vergleich zum superfluiden Helium, nicht schnell genug abgeführt werden. Das Experiment ist bedingt durch Platzmangel ohne Dummy-Probe durchgeführt worden. Die Magnetostriktionen wurden entsprechend der Orientierung der polierten Achsen parallel der [110]-Richtung detektiert. Die Nulldruckkurve zeigt einen im Wesentlichen um den Faktor 2 reduzierten Verlauf der Expansion im Vergleich zu den Messungen am Lejay-Kristall in Abbildung 10.2. Interessanter jedoch ist die Druckkurve: Deutlich ist zu ersehen, dass die Querdilatation bis zu einem Feld von 12 Tesla keinerlei Relevanz hat, und darüber hinaus nur wenig ansteigt, das heißt, legt man ein kritisches Feld von 10.5T unter Druck zugrunde, so scheint eine Probenexpansion bis über den metamagnetischen Punkt hinaus durch Anlegen eines uniaxialen Druckes parallel zur [001]-Achse unterbunden.

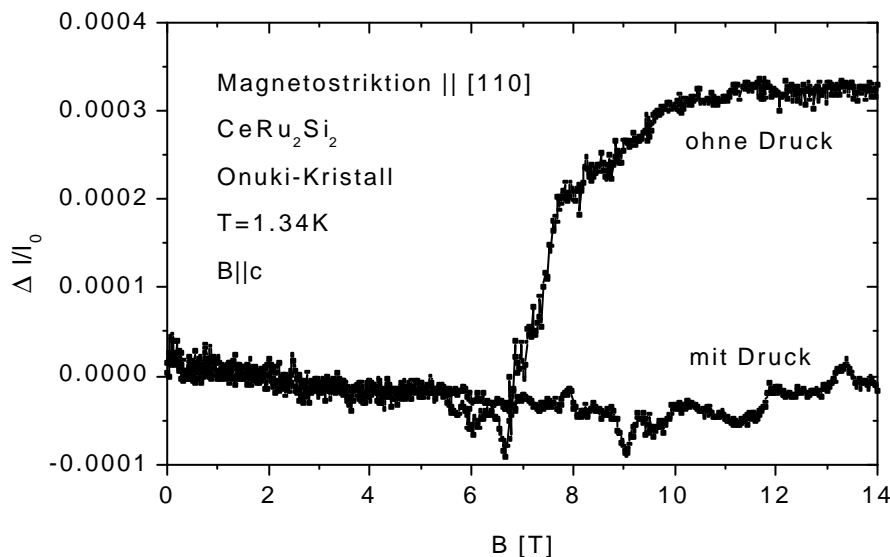


Abb.10.16: Expansionsmessungen an der Onuki-Probe, die parallel zu den Suszeptibilitäten in Abbildung 10.10 beziehungsweise 10.11 ausgeführt wurden.

Die Ergebnisse aus den Suszeptibilitätsmessungen sollten aufgrund ihres etwas unbefriedigenden Hintergrundverhaltens eine Bestätigung durch zusätzlich durchgeführte Ultraschalluntersuchungen erfahren. Daher wurde an der Onuki-Probe entlang der [110]-Orientierung die Mode  $\frac{1}{2}(c_{11}+c_{12}+2c_{66})$  gemessen – siehe Abbildung 10.17. Das Signal zeigt ein Minimum bei 7.8T bei einer relativen Änderung von 4.3%. Hingegen zeigt die Untersuchung bei uniaxialen Druck ein aufgrund eines stufenartigen Verlaufes nicht genau zu benennendes Minimum bei ungefähr  $10.3\pm 1.5T$  bei einer relativen Änderung von 1.26%. Lässt sich durch die Lage des Minimums vermuten, dass ein ähnliches Skalierungsverhalten wie für die Suszeptibilitätsdaten auch für die elastische Konstante  $\frac{1}{2}(c_{11}+c_{12}+2c_{66})$  existiert, so liegt es nahe, das Amplitudenverhältnis der Nulldruck und Druckkurve der Ultraschallmessungen mit dem aus den Suszeptibilitäten gewonnenen zu vergleichen. Findet sich bei letzterem ein Wert von  $A_{P=0}/A_{V(\text{exp})\text{konst}}(\chi_{\text{relativ}})=3.4$ , so resultiert hier ein Verhältnis von  $A_{P=0}/A_{V(\text{exp})\text{konst}}(\Delta c/c)=3.6$ . Im vorherigen Abschnitt wurde für den Onuki-Kristall ein Wert für das Verhältnis von  $A_{P=0}/A_{V(\text{exp})\text{konst}}(\chi)$  von 2.5 angegeben. Es ist dabei darauf zu achten, dass die gezeigten Ultraschallmessungen relative Messungen sind und entsprechend wurden bei den Suszeptibilitätsdaten nur die relativen Änderungen berücksichtigt

Onuki-Probe	Ultraschall	Suszeptibilität
kritisches Feld unter Druck	10.3T	10.5T
Amplitudenverhältnis	3.6	3.4

Tab.10.3

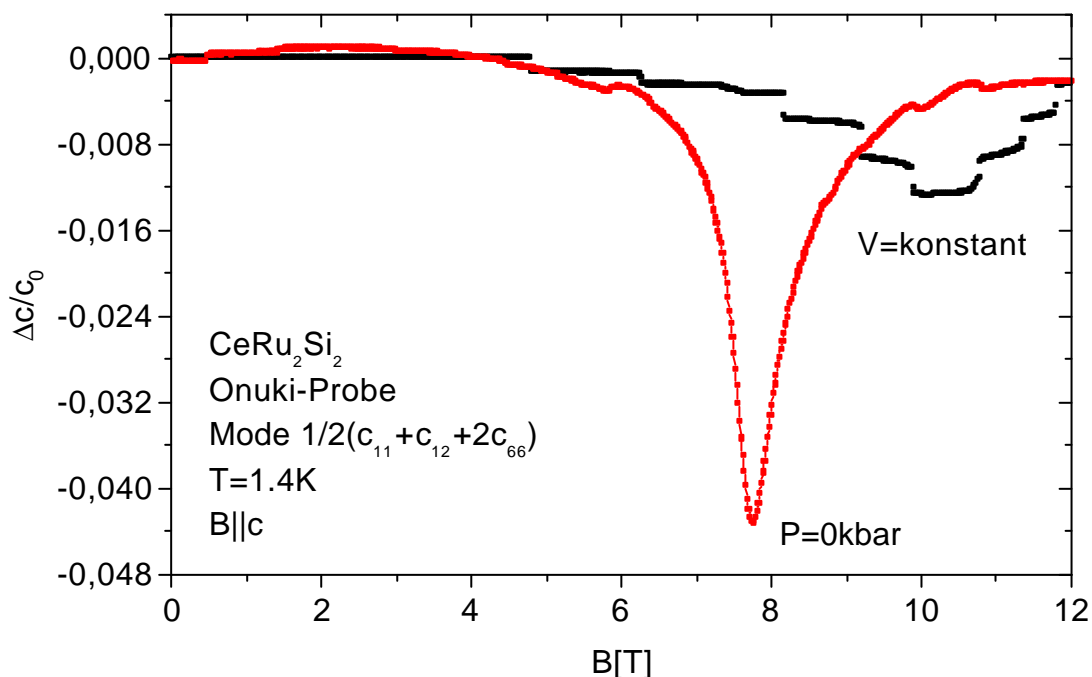


Abb.10.17:Die elastische Konstante  $\frac{1}{2}(c_{11}+c_{12}+2c_{66})$  Die Mode wurde mit Lithiumniobatwandlern bei 6MHz gemessen. Die Nulldruckkurve ist rot eingezeichnet, die Kurve unter uniaxialen Druck hingegen schwarz.

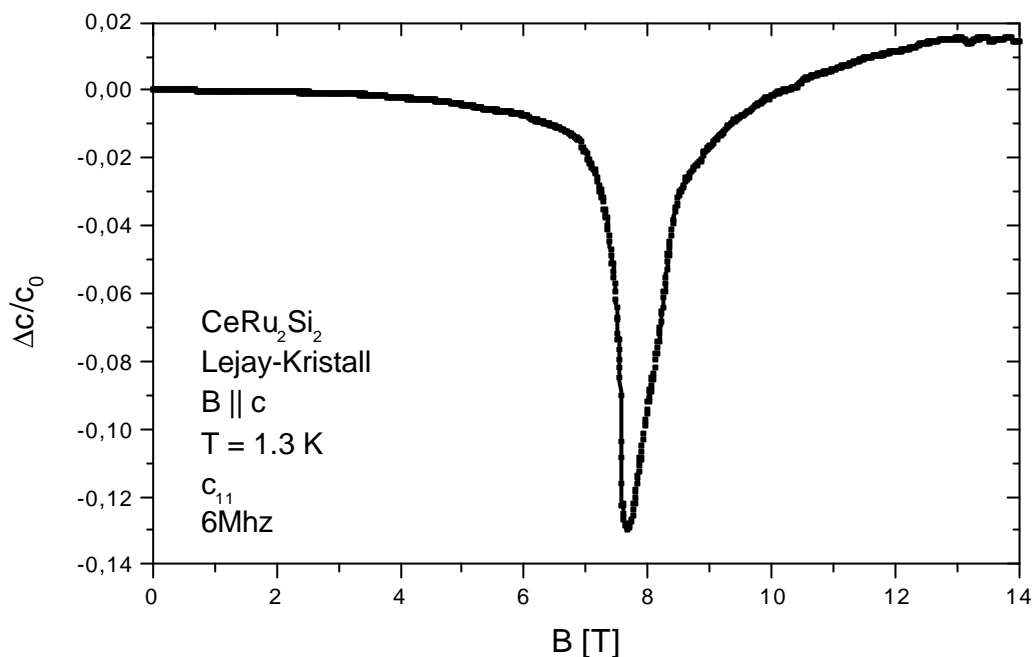


Abb.10.18: Der  $c_{11}$ -Mode gemessen bei 6MHz am Lejay-Kristall.

Eine Berechnung des magnetischen Grüneisenparameters nach Gleichung (+) aus Kapitel 4, in der der Extremalwert der Suszeptibilität dem Extremalwert der Ultraschallmode angefügt wird, wobei  $\Omega^2$  den Skalierungsparameter darstellt, liefert für die longitudinale Mode  $\frac{1}{2}(c_{11}+c_{12}+2c_{66})$  (gemessen an der Onuki-Probe) ein  $\Omega_H$  von 48 und für die  $c_{11}$ -Mode (gemessen am Lejay-Kristall) einen Wert von  $\Omega_H=82$ .

Äußerst sinnvoll wäre ein Ultraschallexperiment mit und ohne Druck an der Lejay-Probe in der gleichen Konfiguration wie an dem Onuki-Kristall gewesen. Gilt es doch eigentlich zu klären, ob das unterschiedliche magnetostriktive und Suszeptibilitätsverhalten beider Proben auf einen zu großen systematischen Messfehler, im Falle der Suszeptibilität auf eine mangelhafte Bestimmung des magnetischen Hintergrundes oder auf eine unterschiedliche Probengüte zurückzuführen ist. Berücksichtigt man zudem die von der schlechten Wärmeabfuhr getragene relative Längenänderung  $\lambda=\Delta l/l$  entlang der [110]-Richtung des Onuki-Kristalls, würde bei einem Verhältnis von  $\lambda_c/\lambda_a \in [2.5;3]$  eine deutlich geringere relative Volumenänderung  $\Delta V/V \in [1.46 \cdot 10^{-3}; 1.62 \cdot 10^{-3}]$  nach  $\Delta V/V = 2\lambda_a + \lambda_c$  als die in Abbildung 10.2 an den Lejay-Proben gemessene resultieren. Der hier für die Rechnungen betrachtete Bereich [2.5;3] für das Verhältnis  $\lambda_c/\lambda_a$  fußt einerseits auf dem Vergleich mit den eigenen Messungen am Lejay-Kristall und andererseits auf der Literatur. Matsuhira [Matsuhira99] beziehungsweise Lacerda [Lacerda89] legen ihren Auswertungen ein Verhältnis von 3 zugrunde. Aufbauend auf die somit erzielte relative Volumenänderung könnte hingegen wiederum ein  $\Gamma$ -Parameter von zirka  $170\text{Mbar}^{-1}$  deduziert werden, also in guter Übereinstimmung mit den Mignot-Werten aus der Literatur [Mignot88]. Der unterschiedliche Probenschnitt jedoch gestattete das oben angesprochene vergleichende Ultraschallexperiment nicht. War die Lejay-Probe senkrecht zu [100] geschnitten und poliert, so war der Onuki-Kristall, wie bereits erwähnt senkrecht zur [110]-Achse poliert. Zudem waren die Lejay-Proben ja von einem ungünstigeren Länge-zu-Breite-Verhältnis, und es

könnte unter Umständen, wie bereits erwähnt, ein vorhandenes mechanisches Spiel im Probenstab für einen geringeren Druck und somit eine geringere Verschiebung des kritischen Feldes verantwortlich sein. Die  $q_{11}$ -Mode, die an der Lejay-Probe gemessen wurde, zeigt jedenfalls den gleichen Ansatz einer Schulter (siehe Abbildung 10.18) wie er in der Suszeptibilität zu Tage tritt (Abbildung 10.6), die in den Messungen am Onuki-Kristall nicht zu sehen war. Ein Vergleich auf der Basis der elastischen Konstanten kann hier nicht erfolgen, da die  $c_{11}$ -Mode beziehungsweise die elastische Konstante  $c_{12}$  während dieser Arbeit nicht bestimmt wurden. Hierzu hätten die präparierten Proben erneut geschnitten und poliert werden müssen. Ein Verfahren, das bei den Lejay-Proben aufgrund ihrer erhöhten Brüchigkeit vermieden wurde. Die höhere Festigkeit des Onuki-Kristalls gestattete dies, jedoch sollte der Kristall vor den Druckexperimenten nicht verkleinert werden, aufgrund der dadurch bedingten geringeren Signalstärke in den Suszeptibilitätsmessungen, aber ein Probenbruch nach einer Druckmessung verhinderte dieses Vorhaben.

## 11. Die theoretischen Modelle und die Interpretation der eigenen Experimente

In diesem Kapitel soll ein neues theoretisches Modell zur Beschreibung des metamagnetischen Verhaltens in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  eingeführt werden. Jedoch erfolgt zuvor eine Darstellung zweier in jüngster Vergangenheit favorisierter Modelle. Es ist dies zum einen das Ohkawa-Modell, das die Rolle des Gitters überbetont, und zum anderen, das Evans-Modell, das die Elektron-Gitter-Wechselwirkung nicht berücksichtigt, jedoch eine  $\mathbf{k}$ -abhängige Hybridisierung ansetzt. Das Evans-Modell, sowie das präsentierte innovative Modell gründen auf dem gleichen mathematischen Lösungsalgorithmus, dem des *slave boson meanfield*-Kalküls. Diesen beiden Modellen vorangestellt ist daher ein kurzer Abriss der Besonderheiten dieses verwendeten Verfahrens.

### 11.1 Das Ohkawa-Modell und dessen Erweiterung

F.J. Ohkawa [Ohkawa89] hat ein Modell vorgeschlagen, das auf dem Kondovolumenkollaps [Allen82] in Kooperation mit einem ferromagnetischen Austausch basiert. Das Kondoregime stabilisiert sich durch eine Volumenreduktion nach  $T^* = T_0^* \cdot e^{-\Omega \varepsilon}$ . Im Feld bedingt die Zeemanenergie eine Destabilisierung dieses Zustandes und der Beitrag des f-Elektronensystems zum Grundzustand resultiert aus [Bruls90]

$$E_f^{\text{eff}} = -\sqrt{(k_B T^*)^2 + (\mu_B B_{\text{eff}})^2} \quad \text{mit } B_{\text{eff}} = B_0 + JM / \mu_B^2.$$

$T^*$ : Fluktuationstemperatur

$B_0$ : äußere Feld

J: ferromagnetischer Austausch mit  $J = j \cdot k_B \cdot T_0^*$

Die antiferromagnetische Spinflipwechselwirkung wird durch das externe Feld aufgebrochen, wobei eine konkurrierende *intersite*-Wechselwirkung ferromagnetischer Art unabdingbar für die Schärfe des metamagnetischen Überganges neben einer koexistenten Gitterinstabilität ist. Der Nachteil des Ohkawa-Modells zeigt sich bei einer Anwendung auf die Substanz  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Es kann die Physik dieses Systems nur mit einem erhöhten Parametersatz beschreiben. So benötigt Ohkawa eine Kondotemperatur von 50K und einen Grüneisenparameter von  $\Omega=500$  um die Messergebnisse zu reproduzieren, dies aber auch nur unter der Annahme eines ferromagnetischen Austausches, repräsentiert durch  $j=0.7$ , der in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  jedoch nicht beobachtet wird - wobei  $j=1$  eine langreichweitige ferromagnetische Ordnung symbolisiert.

Um dem magnetostriktiven Einfluss ( $\varepsilon$ ) bei  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  mehr Gewicht beizumessen, haben Bruls et al. [Bruls90] eine Stabilisierung des Gitters über

$$-\frac{\partial E_f}{\partial \varepsilon_L} = c_0 (\varepsilon_0 - \varepsilon) + \int_{\varepsilon_0}^{\varepsilon} (\Delta c_L - \Delta c_{L(B=0)}) d\varepsilon \quad (\text{a})$$

angesetzt, die neben der elastischen Hintergrundkonstante  $c_0$  additiv den Beitrag der f-Elektronen inkorporiert, mit



$$\Delta c_L = -\Omega^2 [(T^* k_B / \mu_B)^2 + 2B_{\text{eff}}^2] \chi_{\text{eff}} .$$

Letztere Beziehung resultiert aus der partiellen Ableitung  $\Delta c_L = \partial^2 E_f / \partial \epsilon_L^2$  obigen Energieansatzes von Ohkawa. Die diesbezüglichen Ergebnisse für die Magnetisierung und das magnetische Feld, auf die hier nicht näher eingegangen werden soll, transformieren sich folglich auch bei einer Substitution der Gleichung (a) durch  $-\partial E_f / \partial \epsilon_L = c_0 (\epsilon_0 - \epsilon)$  in die von Ohkawa gewonnenen Resultate.

Mit dem erweiterten Modell gelang eine Adaption der Theorie auf das Experiment mit realistischen Parametern von  $T^* = 20\text{K}$ ,  $\Omega=150$  und einem  $j$  von 0.38.

Über dieses erweiterte Modell ist in den folgenden Jahren in der Literatur noch diskutiert worden, siehe zum Beispiel [Evans93] und [Bruls93], wobei ein Gegenargument von Evans hier angemerkt sei. In der magnetischen Suszeptibilität

$$\chi_m = \left. \frac{\partial M}{\partial B} \right|_{\epsilon_L} + \left. \frac{\partial M}{\partial \epsilon_L} \right|_B \cdot \frac{d\epsilon_L}{dB}$$

dargestellt durch einen "magnetischen" und einen "elastischen" Anteil, wurde der Beitrag des zweiten, elastischen Anteils als irrelevant für eine Simulation des Minimums in der Suszeptibilität über die elastische Konstante  $c_L$  erachtet.

## 11.2 Das Slave-boson-meanfield-Kalkül

Im Prinzip handelt es sich bei dieser Methode um ein Verfahren, um das Doppelbesetzungsverbot zu realisieren. Es wird ein sogenanntes Bosonenfeld eingeführt, charakterisiert durch die Bosonenoperatoren  $b^+(i)$  und  $b(i)$ , wobei  $b^+(i)$  an einem f-Orbital einen freien Zustand erzeugt.  $b(i)$  vernichtet entsprechend einen freien f-Zustand am Ort  $i$  und erzeugt ein f-Elektron [Fulde88]. Die Wahrscheinlichkeit eines leeren f-Orbitals am Ort  $i$  ist gegeben durch  $b^+(i)b(i)$ . Das Bosonenfeld lässt sich über Lagrange-Multiplikatoren  $\Phi_i$  in den zu lösenden Hamiltonian aufnehmen. Die zweite Näherung, die das Lösen des Hamiltonian mit integriertem Bosonenfeld erleichtert ist nun das *meanfield*-Verfahren. Man vernachlässigt die konkreten Bosonenoperatoren an jedem Platz  $i$  und ersetzt sie durch ihren Mittelwert

$$b^+(i) \rightarrow \langle b^+(i) \rangle = r.$$

Daraus resultiert gleichzeitig die Reduktion der Lagrange-Parameter  $\Phi_i$  auf einen ortsunabhängigen Wert  $\Phi$ . Diese beiden Verfahren bewirken zweierlei: Zum einen Renormieren sie das Hybridisierungsmatrixelement  $V_{ms}(\underline{k}, n) \rightarrow V_{\text{eff}} = r V_{ms}(\underline{k}, n)$ , zum anderen die f-Elektronenniveaus  $E_f \rightarrow \epsilon_f = E_f + \Phi$ . Die durch die Renormierung gebildeten Größen  $\epsilon_f$  und  $V_{\text{eff}}$  in denen des weiteren die Physik der f-Elektronensysteme beschrieben wird, werden als effektive Größen bezeichnet.

### 11.2.1 Das Evans-Modell

Evans hat in ihren Arbeiten von 1990 und 1992 [Evans90] [Evans92] [Evans92a] das Konzept der anisotropen Wechselwirkung, das 1987 von Hanzawa zur Interpretation vom Magneto- und Widerstandsverhalten von unverdünnten Cerverbindungen mit Kondoigenschaften in hexagonaler und tetragonaler Symmetrie diskutiert wurde [Hanzawa87], wieder aufgegriffen. Ausgehend vom Anderson-Modell, dem Kondo-Gitter-Hamiltonian wurde der *slave-boson-meanfield*-Formalismus unter Berücksichtigung der  $\underline{k}$ -Abhängigkeit der Hybridisierungsmatrixelemente zur Berechnung der Quasiteilchenbandstruktur herangezogen. Ausgangspunkt ist hier eine Kristallfeldaufspaltung der spinentarteten Zustände

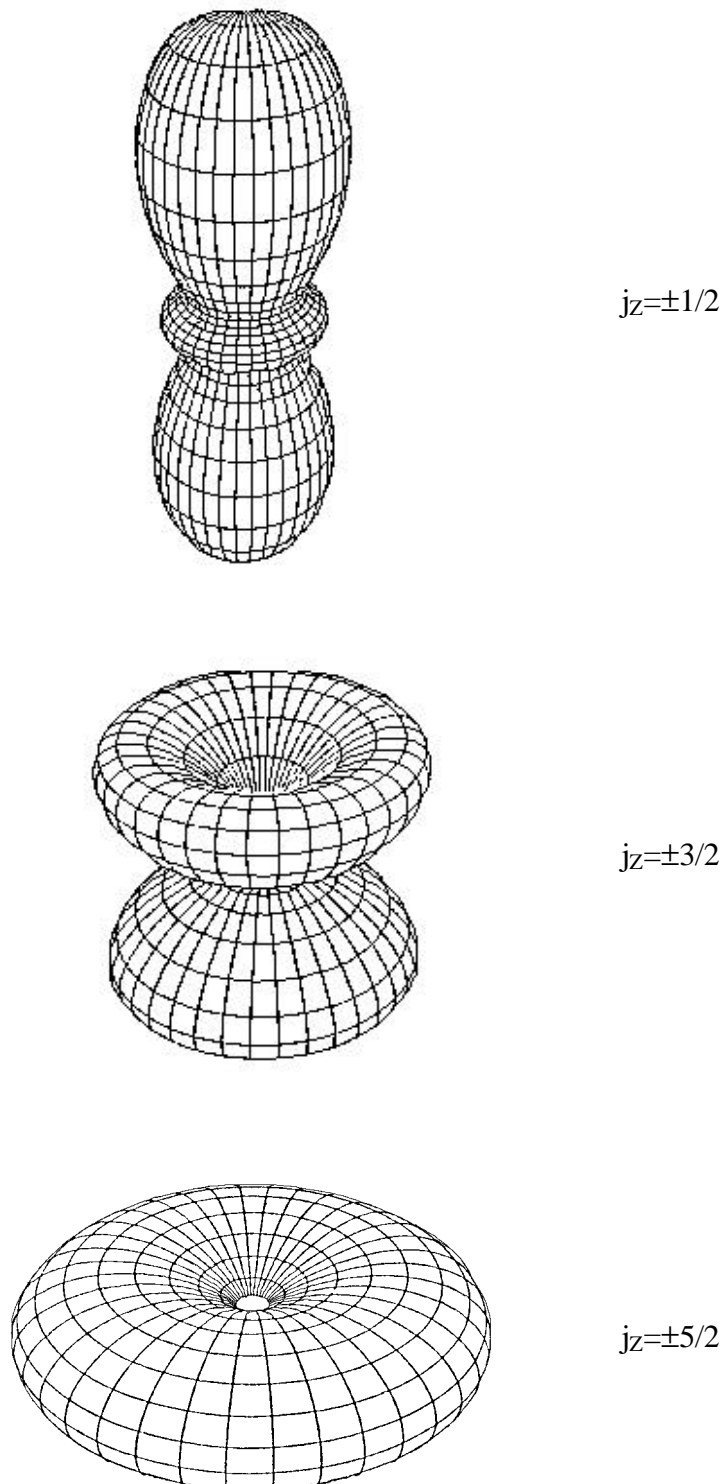
$$|0_{j_z}\rangle = \left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle \quad |1_{j_z}\rangle = \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle \quad |2_{j_z}\rangle = \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle,$$

in dem das System den Grundzustand einnimmt, der einer Linearkombination der Zustände mit  $j_z = \pm 5/2$  entspricht. Die Dubletts  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  sollen sich aufgrund der hohen Term-aufspaltung bei tiefen Temperaturen nicht auf den Grundzustand auswirken. Die Physik wird quasi als inert gegenüber der Konfigurationswechselwirkung angesehen. Die Wellenfunktion geschrieben als Linearkombination der niedrigsten Dublettzustände resultiert nun in einer Richtungsabhängigkeit der Hybridisierung von folgender Gestalt

$$V_{m\sigma}(\underline{k}) = V_0 \cdot Y_{3m-\sigma} \langle 3lm - \sigma, 1/2 \sigma | 5/2 m \rangle.$$

Der Hybridisierungsterm  $V_{m\sigma}(\underline{k})$  definiert sich durch die Kugelflächenfunktion  $Y_{3m-\sigma}$  und die Clebsch-Gordon-Koeffizienten für  $j=5/2$  und  $l=3$  und beinhaltet somit die Winkelabhängigkeit der 4f-Ladungsverteilung. Diese ist für  $j_z = \pm 5/2$ ;  $\pm 3/2$  und  $\pm 1/2$  nachstehend abgebildet. Der  $j_z = \pm 5/2$ - und  $j_z = \pm 3/2$ -Zustand besitzen Nullstellen entlang der c-Achse und verhindern so das Auftreten eines Hybridisierungsgaps, wie nachstehend

angesprochen. Wohingegen der  $j_z=\pm 1/2$ -Zustand noch durch das Vorhandensein einer Energielücke geprägt ist.



*Abb.11.4: Die Winkelabhängigkeit der Ladungsverteilung nach Abzug eines gemeinsamen Monopolterms aus [Häfner83].*

Entsprechend der Spinorientierung existieren zwei spinentartete Quasiteilchenbänder, die eine große Zustandsdichte oberhalb der Fermikante besitzen, die formal durch die Energien  $E_{\pm\sigma}$  ausgedrückt werden, mit

$$E_{\pm\sigma} = 0.5 \left[ \epsilon_k + \epsilon_{f\sigma} \pm \sqrt{(\epsilon_k - \epsilon_{f\sigma})^2 + 4V^2(x)} \right]$$

Dabei sind  $\epsilon_k$  und  $\epsilon_{f\sigma}$  die Energien der Leitungs- beziehungsweise der f-Elektronen und  $V$  das Kopplungselement.

Wichtigstes Merkmal ist das Vorhandensein eines anisotropen Hybridisierungsgaps. Unter Berücksichtigung einer  $\underline{k}$ -abhängigen Wechselwirkung konnte Evans dieses Gap unterdrücken

$$V^2(\cos \theta) = \frac{15}{8} V_0^2 (1 - \cos^2 \theta)^2 \quad \text{für } j_z = \pm 5/2,$$

und sie findet ein Magnetisierungsverhalten das in Abbildung 11.5 gezeigt ist. Die Magnetisierung ist ausgedrückt durch die Normierung auf den Maximalwert der Spinpolarisation des f-Pseudospin-Dubletts  $m_T$  und die x-Achse skaliert mit der Kondotemperatur  $T_K$ . Die Kurven sind allesamt für eine zwischenvalente Elektronendichte charakterisiert durch den Parameter  $\eta = 0.3$  errechnet worden, der eine maximale Steilheit der Kurven bewirkte. Die Hinzunahme von *intersite*-Fluktuationen vom RKKY-Typ

$\tilde{\chi}_f = \frac{\chi_f}{1 - I\chi_f}$  wird durch den Term  $\chi_f I$  repräsentiert.  $I$  ist ein Maß für die RKKY-Kopplung.

$\chi_f(H) = dM/dH$  symbolisiert die Suszeptibilität durch die lokalisierten f-Momente. Je größer die Kopplung desto ausgeprägter wird der metamagnetische Übergang und desto stärker schiebt er zu kleineren Feldern. Die totale Elektronendichte setzt Evans an als  $n_T = 2 - \eta$  und bei Nullfeld sind je  $n_T/2$  Elektronen spinentartet. Der metamagnetische Übergang erklärt sich

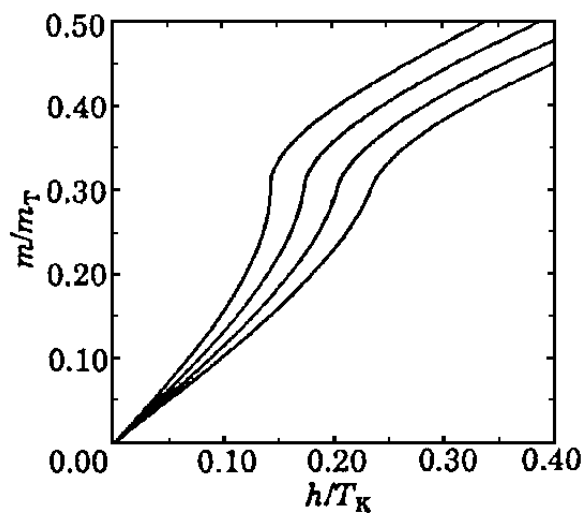


Abb.11.5: Die Magnetisierung bezogen auf das maximale Spinmoment  $m_T$  für unterschiedliche Parametersätze  $I_C_f$  von 0.3; 0.2; 0.1 und 0 von oben nach unten geordnet. Die Abweichung zu einer diskreten Elektronenanzahl beträgt  $\mathbf{h}=0.3$ .

dann aus einem *levelcrossing*. Im Nullfeld ist das spinentartete Band E energetisch favorisiert mit einer Besetzungszahldichte von  $n_T/2 = n_{T\uparrow} = n_{T\downarrow}$ . Für kleine Felder wird jetzt die Spinentartung aufgehoben und  $n_{T\uparrow}$  wird im unteren Band anwachsen und  $n_{T\downarrow}$  abnehmen, bis der Zustand  $n_{T\uparrow} = 1$  und  $n_{T\downarrow} = 1 - \eta$  erreicht ist, das heißt, das untere *spin-up*-Band voll ist. Bei weiterer Felderhöhung taucht die Energie des Bandes unter die Fermikante, und die Elektronen besetzen das obere Band mit der Spinpolarisation parallel zum angelegten äußeren Feld. Dies wird begleitet von einem starken Anwachsen der Magnetisierung am Wendepunkt bei der kritischen Feldstärke  $B_{kr}$ . Unberücksichtigt bleibt im Evans-Modell die Elektron-Gitter-Kopplung, die sich in den Volumeneffekten manifestiert. Auch kann die zugrunde gelegte Kristallfeldaufspaltung kritisiert werden, besitzt sie doch nur Gültigkeit in einem kubischen System, wobei die Anisotropie in der c-Richtung unbeachtet bleibt.

### 11.2.2 Das Goltsev-Bruls-Modell

Abschließend soll ein Modell etwas eingehender behandelt werden, in dem der Kristallfeldsymmetrie bezüglich der Wellenfunktion und dem Hybridisierungsterm Rechnung getragen wird, sowie beide elektronischen Systeme, die Leitungselektronen sowie die f-Elektronen, an das Magnetfeld koppeln [Goltsev01a] und eine Berücksichtigung der Elektron-Gitter-Wechselwirkung erfolgt. Ausgangspunkt ist die Wellenfunktion des niedrigsten Kramersdubletts, die in der gegebenen tetragonalen Symmetrie durch

$$Y_{\pm} = \pm a_1 \left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle \mp a_2 \left| \mp \frac{3}{2} \right\rangle$$

mit  $a_1 = 0.96$  und  $a_2 = \sqrt{1 - a_1^2}$  repräsentiert wird. Der von Evans angenommene Grundzustand ist hingegen streng genommen nur unter einer Bedingung für die Kristallachsen von  $c \gg a$  gültig. Die oberen Dubletts gelten erneut als passiv für Temperaturen unterhalb der Kondotemperatur  $T_K$ . Die Hybridisierung führt wieder auf das periodische Anderson-Modell, in dem der Hubbard-Term unterdrückt wird, aufgrund der Tatsache, dass nur Valenzfluktuationen zwischen dem magnetischen  $4f^1$ - und dem unmagnetischen  $4f^0$ -Zustand zugelassen werden. Die sich im folgenden anschließende Abhandlung ist unter der Zwangsbedingung eines konstanten Volumens gerechnet und wird erst gegen Ende durch einen Gitterfreiheitsgrad erweitert. Der Grundzustand eröffnet sich einem wieder über den bekannten *slave-boson-meanfield*-Ansatz, in dem der Hamiltonian folgende Darstellung erfährt

$$H_{MF} = \sum_{\alpha\mathbf{k}} [\epsilon_{\mathbf{k}\alpha} c_{\alpha\mathbf{k}}^+ c_{\alpha\mathbf{k}} + \epsilon_{f\alpha} f_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} + (V_{eff} \phi(\mathbf{k}) f_{\alpha\mathbf{k}}^+ c_{\alpha\mathbf{k}} + H.c.)] + (\epsilon_f - E_f) (|V_{eff}|^2 / |V|^2 - 1) N_u$$

Hierin bedeuten  $\mathbf{a} = \pm 1$  den Pseudospin und  $\sum_{\alpha\mathbf{k}} \epsilon_{\mathbf{k}\alpha} c_{\alpha\mathbf{k}}^+ c_{\alpha\mathbf{k}} = \sum_{\alpha\mathbf{k}} (\epsilon_{\mathbf{k}} - \alpha h) c_{\alpha\mathbf{k}}^+ c_{\alpha\mathbf{k}}$  beziehungsweise  $\sum_{\alpha\mathbf{k}} \epsilon_{f\alpha} f_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} = \sum_{\alpha\mathbf{k}} (\epsilon_f - \alpha h) f_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}}$  mit  $h = g\mu_B H / 2$  die Energie der Leitungs- beziehungsweise f-Elektronen unter Berücksichtigung einer Kopplung an ein äußeres Feld. Der letzte Term ist ein mathematischer Formalismus, der die Coulombwechselwirkung involviert, zur Realisierung des Doppelbesetzungsverbotes [News87].  $V_{eff}$  ist das effektive und  $V$  das reine, unrenormalisierte

Hybridisierungsmatrixelement. Analog bedeuten  $\varepsilon_f$  und  $E_f$  die effektive und unrenormalisierte Energie des f-Niveaus. Der Hybridisierungsterm ( $V_{\text{eff}} \phi(\underline{k}) f_{\alpha\underline{k}}^+ c_{\alpha\underline{k}} + \text{H.c.}$ ) beinhaltet nun die Anisotropie-Wechselwirkung ausgedrückt durch den Formfaktor  $\phi(\underline{k})$  der die Impulsverteilung der lokalen f-Elektronen widerspiegelt und dessen Quadrat  $\phi(\underline{k})^2(\theta, \varphi)$  in Abbildung 11.6 durch einen 3D-Plot visualisiert wird.

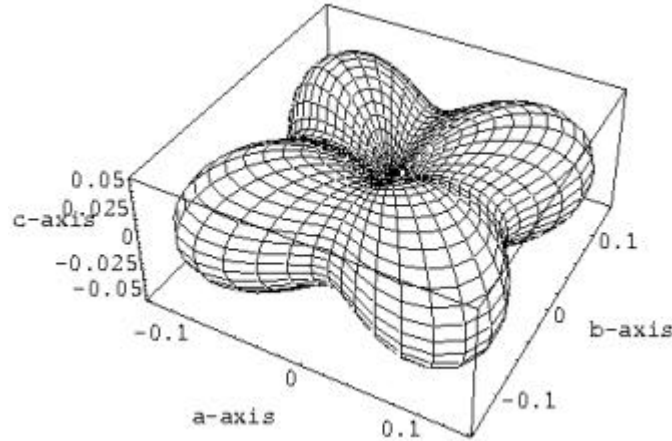


Abb.11.6: Darstellung der Kondokopplung in Form des Formfaktors  $f^2(\mathbf{qj})$ . Signifikant ist die Nullstelle entlang der c-Achse [Goltsev01].

Formal über sphärische Polarkoordinaten ausgedrückt schreibt sich  $\phi(\underline{k})^2$  mit  $\underline{k} = (\theta, \varphi)$  als

$$\phi^2(\underline{k}) = \frac{3}{32\pi} \sin^2 \theta [5a_1^2 \sin^2 \theta + a_2^2 (15 \cos^2 \theta + 1) - 2\sqrt{5}a_1 a_2 \sin^2 \theta \cos 4\varphi]$$

mit dem Azimutwinkel  $\theta$  ( $0 \leq \theta \leq \pi$ ) und dem Polarwinkel  $\varphi$  ( $-\pi \leq \varphi \leq \pi$ ). In der hier dargestellten Form erfüllt  $\phi^2$  die Normierungsbedingung

$$\int \phi^2(\underline{k}) d\Omega_{\underline{k}} = \int \phi^2(\underline{k}) \cos \theta d\theta d\varphi = 1.$$

Offensichtlichstes Merkmal ist die Einschnürung des Formfaktors bei  $\theta = 0$  und  $\theta = \pi$ . Die Funktion besitzt hier Nullstellen, die eine Kopplung zwischen f-Elektronen und Leitungselektronen, die sich in Richtung der c-Achse bewegen, verbieten. Es resultiert demnach von diesen Elektronen kein Beitrag zur Fermienergie. Die Maxima  $\phi_{\text{max}}^2$  sind entlang der Richtungen  $[\pm 1, \pm 1, 0]$  orientiert. Auch in diesem Modell führt die Diagonalisierung zu zwei Quasiteilchenbändern der Form

$$E_{v\alpha}(\underline{k}) = \frac{1}{2} \left( \varepsilon_{f\alpha} + \varepsilon_{\underline{k}\alpha} \mp \sqrt{(\varepsilon_{f\alpha} - \varepsilon_{\underline{k}\alpha})^2 + 4|V_{\text{eff}}|^2 \phi^2(\underline{k})} \right)$$

mit dem Bandindex  $v=1,2$ , in dem der Bandindex  $v=1$  den Fall des negativen Vorzeichens der Wurzel repräsentiert. Entsprechend 2 das energetisch höher liegende Band. Die Zustandsdichte der hybridisierten Bänder ist gegeben durch

$$\rho_{v\alpha}(E) = \frac{1}{N_S} \sum_{\underline{k}} \delta(E - E_{v\alpha}(\underline{k})).$$

In dem Ausdruck ist  $N_S$  die Anzahl der Einheitszellen. Diese Zustandsdichte kann für Temperaturen unterhalb von  $T_0$  der sogenannten *low temperature Kondo scale*  $T_0 = \varepsilon_f - \mu \ll \mu$ , in der renormalisierten Form für Zustände nahe der Fermikante  $|E - \mu| \ll \mu$  ausgedrückt werden durch

$$\rho_{v\alpha}(E) \approx \frac{\Delta D_v(E - \varepsilon_{f\alpha})}{2(E - \varepsilon_{f\alpha})^2} \quad (*)$$

mit

$$D_v(E) = \int \phi^2(\underline{k}) \Theta(-\lambda_v E - 4\pi\phi^2(\underline{k})) d\Omega_{\underline{k}}.$$

$T_0$  ist eine neue Energieskala, die im Schwere-Fermionen-Zustand mit starker Kondokopplung die thermodynamischen Eigenschaften im Fermiflüssigkeitsbereich beschreibt [Bickers87]. Im allgemeinen gilt  $T_0 \neq T_K$ .

Der Integrand ist das Produkt aus dem Quadrat des Formfaktors multipliziert mit der Thetafunktion, deren Argument durch die neu eingeführte Identität  $\lambda_v$  parametrisiert wird, wobei  $\lambda_1 = (2 - N_C)/\Delta$  und  $\lambda_2 = -N_C/\Delta$ . Der dritte Parameter  $\Delta$  fast vereinfachend den Term  $\rho_0 |V_{\text{eff}}|^2 / (2\pi) = \Delta$  zusammen, der ein Maß für Breite des f-Levels darstellt.  $\rho_0$  ist die unrenormalisierte Zustandsdichte der Leitungselektronen.

Wie verhält sich nun die Zustandsdichte im Nullfeld? Die bisherige Ableitung erfolgte unter der Annahme einer konstanten Gesamtelektronenanzahl  $N_{\text{ges}} = N_C + N_f$ . Setzt man  $N_C < 1$  voraus, resultiert  $N_{\text{ges}} = 1 + N_C < 2$  und die Fermikante schneidet das untere Band  $E_1(\underline{k})$  mit der Bedingung  $\mu < \varepsilon_f$ . Untersucht man den Spezialfall der anisotropen Kondowechselwirkung, indem der quadratische Formfaktor  $\phi^2(\underline{k})$  durch seinen Mittelwert  $\langle \phi^2(\underline{k}) \rangle = \phi_{\text{iso}}^2 = \frac{1}{4\pi}$  ersetzt wird, in dem ja die  $\underline{k}$ -Abhängigkeit verschwinden muss, erzielt man das von Newns und Read [Newns87] bekannte Ergebnis der „isotropen“ Zustandsdichte

$$\rho(E) = \frac{\Delta}{2(E - \varepsilon_{f\alpha})^2}$$

mit einem Energiegap, dem Hybridisierungsgap, für den Fall, das die Energie in den Grenzen

$$\varepsilon_f - \lambda_1^{-1} < E < \varepsilon_f + |\lambda_2|^{-1}$$

liegt.

Dieses Ergebnis ist kongruent mit einer Lösung von Gleichung (\*) oben auf hiesiger Seite, der anisotropen Zustandsdichte, wenn Energien betrachtet werden, die in die Intervalle

$$E < \zeta_1 = \varepsilon_f - 4\pi\phi_{\text{max}}^2 / \lambda_1 < \varepsilon_f - \lambda_1^{-1} \quad \text{bzw.} \quad E > \zeta_2 = \varepsilon_f - 4\pi\phi_{\text{max}}^2 / \lambda_2 > \varepsilon_f + |\lambda_2|^{-1}$$

fallen. Im dazwischenliegenden Energiebereich verschwindet das Gap und die Zustandsdichten der beiden spinentarteten Bänder gehorchen dem Skalierungsgesetz

$$\rho_2(E) = c^2 \rho_1(c(2\varepsilon_f - E))$$

mit dem Parameter  $c = N_C / (2 - N_C)$ . Die Zustandsdichte ist asymmetrisch um das f-Niveau  $\varepsilon_f$  für  $N_C$ -Werte kleiner als 1, woraus ebenfalls  $c < 1$  folgt. Hingegen symmetrisch für die Kondoisolatoren, die für den Fall  $N_{\text{ges}}=2$  implementiert sind, mit ihrer typischen V-förmigen Zustandsdichte [Ikeda96] [Moreno00]. Der Unterschied der Zustandsdichten der beiden Bänder begründet sich auf die für deren Bildung verantwortlichen Quasiteilchen. Sind dieses im Falle des unteren Bandes Elektronen mit großem Wellenvektor  $\underline{k}$  und einer Energie, die dem oberen Teil des Leitungsbandes zuzuordnen ist, so wird die Zustandsdichte des oberen Leitungsbandes geprägt von Elektronen mit kleinen Wellenzahlen, deren Energie sich im unteren Teil des Bandes ansiedelt. Die größere Zustandsdichte des unteren Leitungsbandes im Gegensatz zum Band  $E_2$  geht einher mit einer größeren effektiven Masse der Quasiteilchen, für die sich der oben erwähnte c-Parameter verantwortlich zeichnet. Die totale Zustandsdichte für die anisotrope Wechselwirkung berechnet nach  $\rho_t(E) = \sum_{\alpha\nu} \rho_{\nu\alpha}(E)$  ist in der Abbildung 11.7 einzusehen und der isotropen Kondowechselwirkung mit Energielücke gegenübergestellt. Deutlich ist das asymmetrische Verhalten um  $\varepsilon_f$  zu erkennen, sowie ein sich anschließendes Pseudogap zu tieferen Energien hin, in dem die Fermikante liegt [siehe auch Abbildung 11.10].

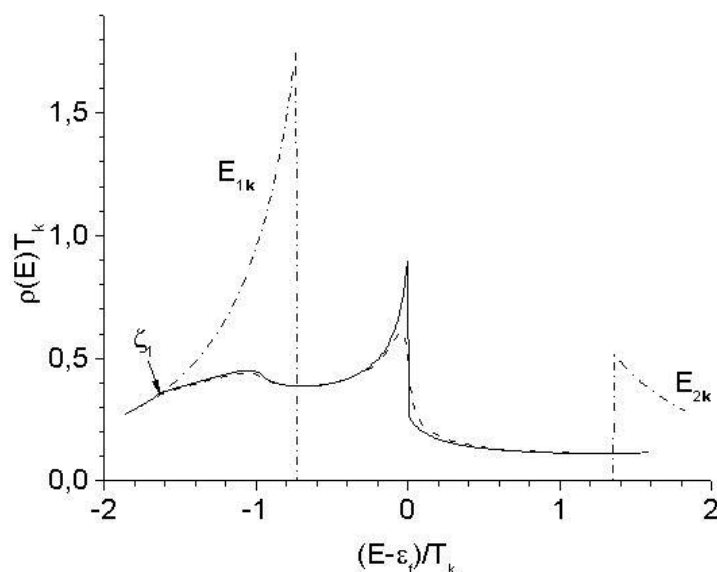


Abb.11.7: Eingezeichnet sind die Zustandsdichten für verschiedene Modelle. Der gestrichelt-punktierte Verlauf repräsentiert den isotropen Kondofall mit einer Energielücke. Die durchgezogene Linie gibt die Rechnung für den anisotropen Kondofall wieder. Der Einfluss der Streuung an Fehlstellen ist durch die gestrichelte Linie gegeben. Die Schärfe der Zustandsdichte wird herabgesetzt und das Maximum erhält im Wesentlichen einen symmetrischen Verlauf.

Das Maximum der Zustandsdichte bezüglich des unteren beziehungsweise oberen Bandes drückt sich durch die Werte  $\rho_{1(2)}(\varepsilon_f) = \Delta \lambda_{1(2)}^2 / (48a_2^2)$  aus. Hier erkennt man deutlich, welche Bedeutung die korrekte Berücksichtigung der Kristallfeldaufspaltung in der zugrunde liegenden Wellenfunktion erfährt; denn die Gewichtung des Zustandes  $\#3/2\rangle$  und dessen Beimischung zum Grundzustand durch die Linearkombination manifestiert sich in dem



Vorfaktor, der Konstanten  $a_2$ . Ein starker Beitrag zur Zustandsdichte nahe  $\varepsilon_f$  wird nun gerade von den Elektronen geleistet, deren  $\underline{k}$ -Vektor leicht aus der c-Achse verkippt ist. Die oben erwähnte Position der Fermikante im Pseudogap kann durch eine Abschätzung plausibel gemacht werden. Für die Anzahl der Elektronen im untersten Energieintervall  $E \leq \zeta_1$  gilt

$$N_1 \approx \left(1 - \frac{1}{4\pi\phi_{\max}^2}\right) N_C + \frac{1}{2\pi\phi_{\max}^2} = 0.55N_C + 0.9.$$

Und im Vergleich mit  $N_{\text{ges}} = N_C + 1$  folgt  $N_1 < N_{\text{ges}}$ . Demnach liegt die Fermikante zwischen  $\zeta_1$  und  $\varepsilon_f$ :

$$\zeta_1 < \mu < \varepsilon_f.$$

Das f-Level wird also wie erwartet durch die Renormierung über die Fermikante geschoben. Der eigentlich interessante Fall ist das Verhalten bei eingeschaltetem äußerem Magnetfeld, und dieses Verhalten soll vorab an den Größen  $T_0$  und  $\Delta$  studiert werden. Hierzu werden drei Gleichungen betrachtet, die sich in einer *meanfield*-Näherung schreiben lassen als

$$N_{\text{ges}} = N_S^{-1} \sum_{\alpha\mathbf{k}} \langle c_{\alpha\mathbf{k}}^+ c_{\alpha\mathbf{k}} + f_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} \rangle$$

$$N_f = N_S^{-1} \sum_{\alpha\mathbf{k}} \langle f_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} \rangle$$

$$V_{\text{eff}} = -\frac{|V|^2}{(\varepsilon_f - E_f)} \cdot N_S^{-1} \sum_{\alpha\mathbf{k}} \phi(\mathbf{k}) \langle c_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} \rangle = -J N_S^{-1} \sum_{\alpha\mathbf{k}} \phi(\mathbf{k}) \langle c_{\alpha\mathbf{k}}^+ f_{\alpha\mathbf{k}} \rangle.$$

Aus der ersten Gleichung, die die Gesamtzahl der Elektronen konstant hält, resultiert in einer Näherung ein Ausdruck für die Fermikante der Gestalt

$$\mu \approx N_C / 2\rho_0 + O(T_K)$$

mit der Funktion  $O(T_K)$ , die Werte in der Größenordnung des Argumentes liefert. Die zweite Gleichung liefert die Anzahl der f-Elektronen. Die dritte letztendlich den effektiven Hybridisierungsterm ausgedrückt über den antiferromagnetischen Austausch  $J = |V|^2 / (\varepsilon_f - E_f)$ . Die Gleichungen zwei und drei lassen sich für  $T=0$  und  $H \neq 0$  in folgende Form bringen

$$\frac{2N_f}{\Delta} = \sum_{\alpha} \left[ \int_{E_{1\alpha}}^{\mu} \frac{D_1(E - \varepsilon_{f\alpha}) dE}{(\varepsilon_{f\alpha} - E)^2} + \int_{\varepsilon_{f\alpha}}^{\mu} \frac{D_2(E - \varepsilon_{f\alpha}) dE}{(\varepsilon_{f\alpha} - E)^2} \right]$$

und

$$\frac{4\pi}{J\rho_0} = \sum_{\alpha} \left[ \int_{E_{1\alpha}}^{\mu} \frac{D_1(E - \varepsilon_{f\alpha}) dE}{(\varepsilon_{f\alpha} - E)} + \int_{\varepsilon_{f\alpha}}^{\mu} \frac{D_2(E - \varepsilon_{f\alpha}) dE}{(\varepsilon_{f\alpha} - E)} \right]$$

mit  $E_{1\alpha} = \min E_{\mathbf{k}\alpha}$ . Wobei die Integrale  $\int_{\varepsilon_{f\alpha}}^{\mu}$  nur Gewicht in hohen Magnetfeldern für  $\varepsilon_{f\alpha} < \mu$  bekommen, ansonsten sind sie identisch 0. Für die isotrope Kondowechselwirkung liefern die

Gleichungen Ausdrücke für die interessierenden Größen  $T_0$  und  $\Delta$  von  $T_0^2(h) = h^2 + T_K^2$  und  $\Delta(h) = N_f T_K^2 / T_0(h)$  mit der Definition der Kondotemperatur von  $T_K = \mu \exp(-4\pi / (2\rho_0 J))$ .

Die numerischen Lösungen der Gleichungen für den anisotropen Fall für eine Leitungselektronendichte von  $N_C=0.6$  der Größen  $T_0(h)$  und  $\Delta(h)$  zusammen mit den Berechnungen für eine isotrope Hybridisierung sind in Abbildung 11.8 einzusehen. Wieder kann man Vergleiche anstellen und erkennt, dass im anisotropen Fall  $T_0$ , im Gegensatz zur isotropen Wechselwirkung, eine monoton fallende Funktion darstellt, wohingegen die Größe  $\Delta$  annähernd das gleiche Verhalten für beide Symmetrien zeigt. Bei  $h=0.6$  tritt der metamagnetische Übergang auf.

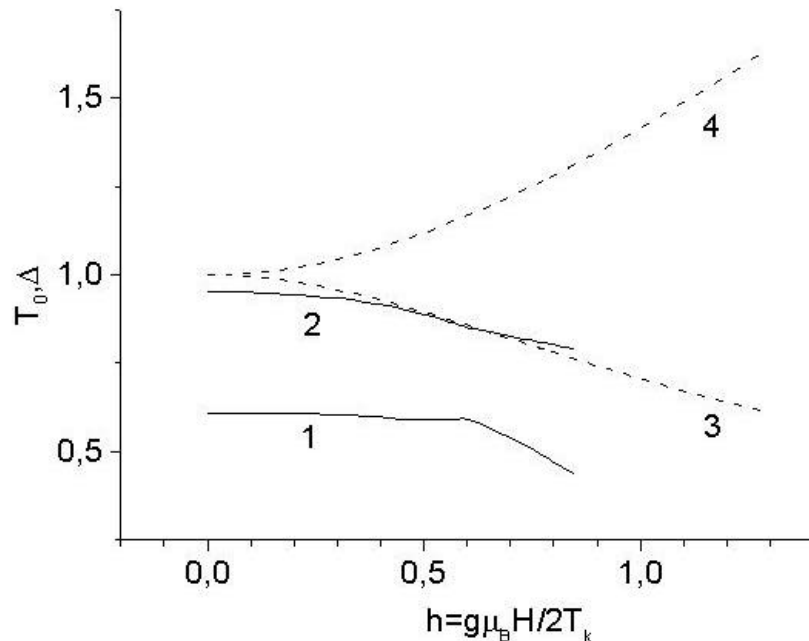


Abb.11.8: Die für Kondosysteme charakteristischen Größen der low temperature Kondo scale [(1)+(4)] und der Breite des  $f$ -Niveaus [(2)+(3)] sind für den isotropen (gestrichelt) [(3)+(4)] und den hier diskutierten anisotropen (durchgezogene Linie) [(1)+(2)] Fall einander gegenübergestellt. Die low temperature Kondo scale im anisotropen Fall (1) senkt sich beim Überschreiten des metamagnetischen Überganges stark ab (Knick). Ist die Tendenz von  $D$  über  $H$  bzw.  $h$  in beiden Fällen ähnlich, so zeigt sich für  $T_0$  gänzlich gegensätzliches Verhalten.

Eine Berechnung der Magnetisierung über

$$M = \frac{1}{2} g\mu_B \sum_{v\alpha} \alpha \int \rho_{v\alpha}(E) \Theta(\mu - E) dE$$

und deren Ableitung  $\chi = \frac{dM}{dH}$  ist in den Abbildungen 11.9(a) und 11.9(b) gezeigt.

Aufgetragen sind Kurven zu einer festen Leitungselektronenkonzentration  $N_C$ . Erhöht man die Zahl der Ladungsträger, so bewirkt dies eine Verschiebung der erhöhten Zustandsdichte zu geringeren Energien, in absoluten Einheiten gesehen. Daher wird das kritische Feld unter Zunahme von  $N_C$  ebenfalls zu kleineren Feldern verschoben, wobei das resultierende magnetische Moment am kritischen Feld entsprechend kleiner ist. Das kritische Feld ist mit der Kondotemperatur verknüpft über  $H_C \propto O(2T_K / g\mu_B)$ . Das Magnetfeld lässt die spinentarteten Bänder aufspalten und analog dem Evans-Modell wandern die *spin-up*-Bänder zu niedrigen Energien. Dieses Verhalten ist für die Zustandsdichte in Abbildung 11.10 dargestellt.

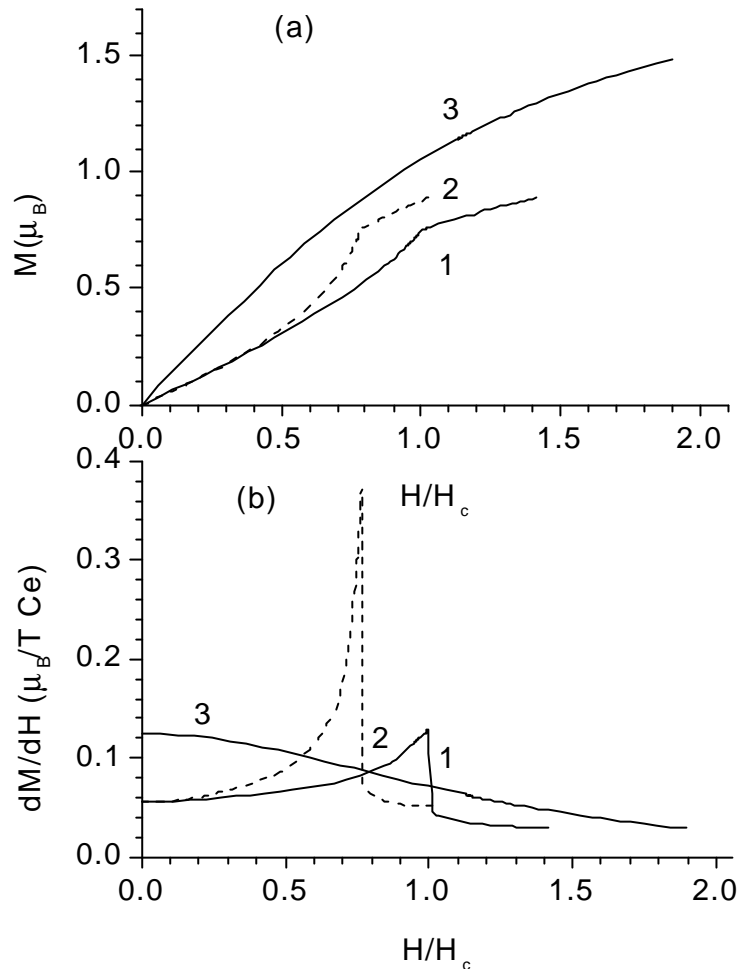


Abb.11.9(a): Magnetisierungskurven für die Zwangsbedingung des konstanten Volumens, sowie eines sich frei expandierenden Systems, sind für eine feste Leitungselektronenkonzentrationen von  $N_c=0.6$  aufgetragen. Verlauf 1 figuriert bei dieser Konzentration die Zwangsbedingung. Die gestrichelte Kurve 2 berücksichtigt die Elektron-Gitterkopplung  $L$  mit  $L=0.73$  und entspricht somit dem sich frei expandierenden Gitter, und die Kurve 3 gibt die isotrope Kondowechselwirkung wieder, gerechnet ebenfalls unter Einbeziehung der Elektron-Gitterkopplung, dessen Vernachlässigung einen stufenartigen Verlauf zur Folge hätte – siehe [Evans92a]. Beispielhaft sei hier für einige abweichende Ladungsträgerkonzentrationen das kritische Feld und die dazugehörige Magnetisierung für ein System, das der Zwangsbedingung unterliegt, hinzugefügt. Bei einer Elektronenkonzentration von  $N_c=0.7$  resultiert ein kritisches Feld von zirka  $8.9T$  bei einem magnetischen Moment von ungefähr  $0.6\mu_B$ . Hingegen schiebt bei einem  $N_c$  von  $0.5$  das kritische Feld auf zirka  $11.7T$  und wird von einer Magnetisierung von ungefähr  $1\mu_B$  geprägt.

Abb.11.9(b): Aufgetragen sind die zu 11.9(a) gehörenden Suszeptibilitäten für eine Ladungsträgerkonzentration von  $N_c=0.6$ . Die Bedingung des konstanten Volumens wurde hier, wie in 11.9(a) für ein kritisches Feld von  $10.2T$  berechnet (Kurve 1). Der Einfluss der Elektron-Gitterwechselwirkung findet sich in der Kurve 2. Die Kurve 3 symbolisiert den isotropen Kondofall.

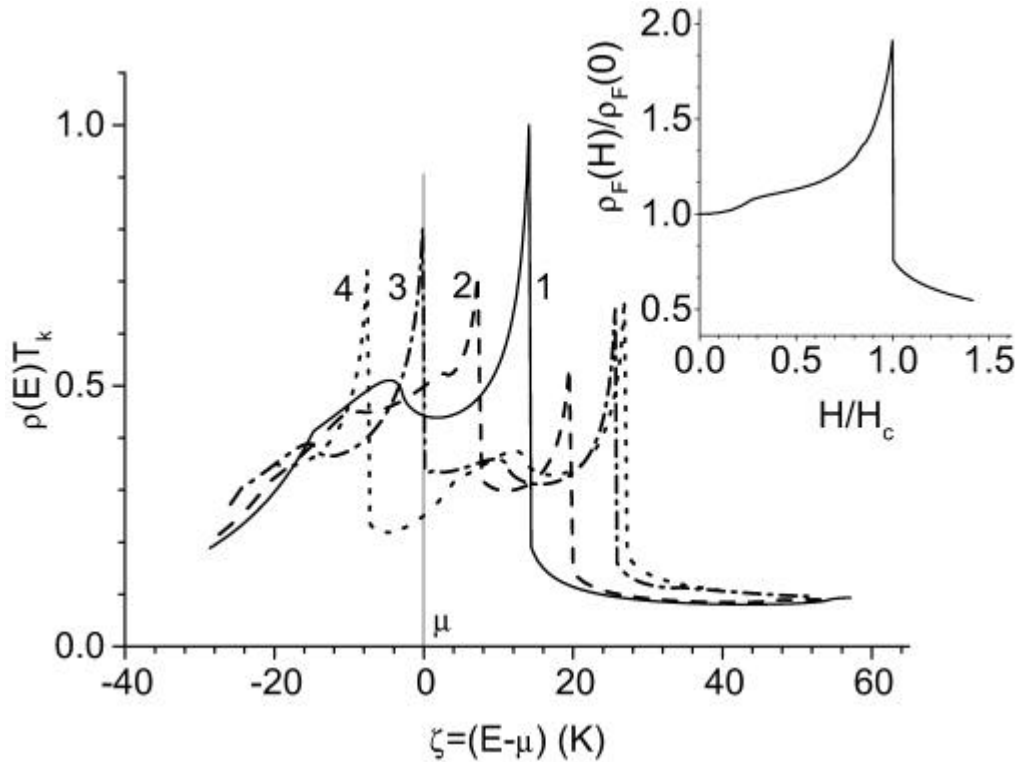


Abb.11.10: Das Verhalten der Zustandsdichte für verschiedene Magnetfelder wird hier verdeutlicht. Eingegangen in die Rechnungen ist wieder ein  $N_c$  von 0.6. Die diversen Felder betragen für (1)  $H=0T$ ; für (2)  $H=4.9T$ ; für (3)  $H=H_c=10.2T$  und für (4)  $H=13.7T$ . Im Inset ist noch einmal die normierte Zustandsdichte diesmal gegen das magnetische Feld in Einheiten von  $H_c$  aufgetragen.

Bei dem kritischen Feld  $H_c$  kreuzt die erhöhte Zustandsdichte den Fermilevel  $\mu$  und taucht für höhere Felder darunter hinweg. Die Magnetisierung ergibt sich aus der Tatsache, dass das untere *spin-up*-Band ganz gefüllt ist  $N_{\uparrow}(H_c)=1$  und für das *spin-down*-Band die Relation  $N_{\downarrow}(H_c) = N_c$  gilt, zu

$$M(H_c) = g\mu_B (N_{\uparrow}(H_c) - N_{\downarrow}(H_c)) / 2 = g\mu_B (1 - N_c) / 2.$$

Einfach erklärt sich nun auch die bei deHaas-vanAlphen-Experimenten beobachtete Abnahme der effektiven Massen beim Kreuzen der Fermikante. Die Ladungsträger des unteren *spin-up*-Bandes müssen nun in das energetisch höher liegende obere *spin-up*-Band der Energie  $E_{2,\sigma=+1}(\mathbf{k})$  wechseln. Dessen Zustandsdichte gehorcht aber der Relation

$$\rho_2(E) = c^2 \rho_1(c(2\varepsilon_{\text{fc}} - E)),$$

und ist für einen Kondoleiter mit  $c < 1$  mit einer niedrigeren effektiven Masse verknüpft. Richtet man sein Augenmerk auf die Form des Maximums der Zustandsdichte, so wird man bei den Experimenten eines symmetrischen Verlaufes gewahr, wohingegen der bisher behandelte theoretische Verlauf asymmetrischer Natur ist, sieht man einmal von dem Fall der Kondoisolatoren ab. Das dies eine Eigenart der Beschränkung auf die rudimentäre Theorie ist und unter Einbeziehung physikalisch auftretender, aber nicht für das Phänomen des Metamagnetismus entscheidender Prozesse, modifiziert werden kann, soll kurz diskutiert

werden. Berücksichtigt man die Streuung an stöchiometrischen Varianzen, wie Fehlstellen oder Verunreinigungen, formt sich der Ausdruck für die Zustandsdichte um in

$$\rho_{\nu\alpha}(E) = \frac{1}{\pi N_S} \sum_{\underline{k}} \frac{\gamma_0}{(E - E_{\nu\alpha}(\underline{k}))^2 + \gamma_0^2}$$

mit der Streurrate  $\gamma_0$ . Die „symmetrisierende“ Wirkung ist an der in Abbildung 11.7 als gestrichelte Funktion eingezeichnete Kurve zu ersehen. Den Energiegewinn, den die Substanz  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  durch eine Volumendilatation erfährt, soll abschließend untersucht werden. Die Elektron-Gitter-Kopplung fließt über die Volumenabhängigkeit des Hybridisierungselementes  $V = V_0 \exp(-re_B)$  in den Hamiltonian ein, in dem  $e_B$  die Volumenausdehnung bedeutet und  $r > 0$ . Des Weiteren muss die Gesamtenergie die elastische Energiedichte des Gitters  $H_G = c_B e_B^2 / 2$  berücksichtigen.  $c_B$  ist das Kompressionsmodul. Der Volumenstrain  $e_B$  kann durch den Grüneisenparameter  $\Omega$  für  $T=0$  ausgedrückt werden:

$$e_B = -\Omega N_f \frac{\Delta}{c_B} = -\left(\frac{4\pi r}{J\rho_0}\right) N_f \frac{\Delta}{c_B}.$$

Mit dem positiven Grüneisenparameter  $\Omega$  resultiert mit dem Eintritt in das Kondoregime eine Volumenschrumpfung  $e_B < 0$ . Der Abhängigkeit der Kondotemperatur vom Volumenstrain wird durch die Transformation

$$T_K \rightarrow T_K(e_B) = T_K \exp(-\Omega e_B)$$

Rechnung getragen –siehe Kapitel 4. Mit der Näherung  $\mu \approx N_C / 2\rho_0$  sind die selbstkonsistenten Lösungen unter Berücksichtigung der Elektron-Gitterkopplung  $\Lambda$ , die durch die Identität  $\Lambda = 2\Omega^2 T_K N_f / c_B$  eingeht, neben den bereits dargelegten Kalkulationen für ein konstantes Volumen in den Abbildungen 11.9(a) und 11.9(b) eingetragen. Fulminant ist die Wirkung anhand des Vergleiches der Suszeptibilitätskurven mit und ohne Elektron-Gitter-Wechselwirkung zu sehen. Der metamagnetische Übergang schiebt zu tieferen Feldern und ist wesentlich stärker ausgeprägt, die Magnetisierung verläuft also steiler am kritischen Feld.

In dem eben besprochenen Modell sind Spinfluktationswechselwirkungen zwischen den Cerionen nicht berücksichtigt. Das ihnen aber eine bedeutende Rolle zukommen muss, bestätigen die Dotierungsexperimente von Matsuhira – siehe Kapitel 8. Vergleichend kann das Evans-Modell zitiert werden. Hier konnte der Metamagnetismus durch den Parameter  $c_f I$ , der die RKKY-Wechselwirkung repräsentierte, gesteuert werden. Jedoch liefert das Evans-Modell aufgrund der gewählten Grundzustandswellenfunktion einen falschen gyromagnetischen Faktor und widerspricht den experimentellen Daten der spezifischen Wärme und den Suszeptibilitätsmessungen. Dem Evans-Modell muss aber ein progressiver Einfluss bei der Behandlung des Metamagnetismus in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  angerechnet werden, hat es doch die Relevanz der Kristallfeldaufspaltung betont und die von Hanzawa diskutierte anisotrope Kondokopplung wieder aufgegriffen. Zudem hat Evans den metamagnetischen Übergang dem Magnetfeldverhalten einer stark erhöhten Zustandsdichte zugeschrieben. Das Goltsev-Bruls-Modell arbeitet jedoch mit der physikalisch realistischeren Grundzustandswellenfunktion und den Aussagen, die in puncto Anisotropie gemacht werden,

ist mehr Bedeutung beizumessen. Ebenso hebt das Modell die Rolle der Elektron-Gitter-Kopplung hervor.

Zugang zum phänomenologisch gefundenen Skalierungsverhalten findet man in der hiesig vorgestellten Theorie von Goltsev und Bruls über nachfolgende Rechnung.

Die in Kapitel 9 vorgestellte Skalierung lässt sich analog beziehungsweise in der erweiterten Form dergestalt schreiben:

$$\frac{\partial V}{\partial H} = \Gamma_p H \frac{\partial M}{\partial H} \Leftrightarrow \frac{\partial V}{V \partial H} = \frac{\Gamma_p H}{V} \frac{\partial M}{\partial H}.$$

$\Gamma_p$  definiert sich über  $\Gamma_p = \frac{\partial H_c(P)}{\partial P}$ .

Unter Berücksichtigung der Identität

$$\frac{\partial V}{V \partial H} = \frac{\partial \ln V}{\partial H} = \frac{\partial e_B}{\partial H}$$

mit dem Einheitszellenvolumen  $v_0$  und der Anzahl an Einheitszellen  $N_{EZ}$  resultiert

$$\frac{\Gamma_p H}{V} \frac{\partial M}{\partial H} = \frac{\Gamma_p H}{v_0 N_{EZ}} \frac{\partial M}{\partial H} = \frac{\Gamma_p H}{v_0} \frac{\partial M / N_{EZ}}{\partial H} = \frac{\Gamma_p H v}{v_0} \frac{\partial m}{\partial H} = \frac{\partial e_B}{\partial H} \quad (+)$$

wobei  $v$  die Anzahl der f-Elektronen pro Einheitszelle und  $m$  das mittlere Moment pro f-Ion repräsentieren.

In der Theorie von Goltsev und Bruls gehorcht das Bulkmodul der Identität

$$e_B = \frac{\Omega \Delta}{\tau_B} = \frac{\Gamma_p \Delta v}{v_0},$$

mit der elastischen Energie  $\tau_B$  pro f-Ion:  $\tau_B = \frac{c_B v_0}{v}$ .  $\Delta$  ist wieder das f-Level-Maß. Unter Druck gilt

$$e_B = -\frac{v \Omega_p \Delta}{c_B v_0} - \frac{P}{c_B},$$

und hieraus folgt

$$\frac{\partial e_B}{\partial H} = -\frac{v \Omega_p}{c_B v_0} \frac{\partial \Delta}{\partial H}.$$

Mit obiger Skalierungsfunktion (+) resultiert

$$-\Omega_p \frac{\partial \Delta}{\partial H} = c_B \Gamma_p H \frac{\partial m}{\partial H},$$

und unter Berücksichtigung der Relation  $\Omega_p = c_B \Gamma_p$  folgt

$$-\frac{\partial \Delta}{\partial H} = H \frac{\partial m}{\partial H}.$$

In dimensionslosen Einheiten über die Substitution von  $h \equiv \frac{g\mu_B}{2}H$  ausgedrückt wird die Skalierung in der Goltsev-Bruls-Theorie über die Form

$$-\frac{\partial \Delta}{\partial H} = h \frac{\partial \left( \frac{m}{g\mu_B/2} \right)}{\partial h}$$

dargestellt. In der Abbildung 11.11 ist dieses aus der Theorie deduzierte Skalierungsverhalten veranschaulicht. Diese Rechnung ist exemplarisch für ein Probenverhalten, wie es die Lejay-Charge zeigte, siehe hierzu die Abbildungen 10.2, 10.3 und 10.7, durchgeführt worden, da nur an ihr die relative Volumenänderung gemessen wurde, das heißt, der Parametersatz orientiert sich an einem Grüneisenparameter von  $\Omega = 155$  und an einer Elektron-Gitter-Kopplung von  $\Lambda = 0.67$ , das entspricht einem kritischen Feld bei konstantem Volumen von 9T. Zudem ist mit einer Kompressibilität von  $\kappa = 0.91 \text{Mbar}^{-1}$  gerechnet worden, entsprechend hydrostatischer Bedingungen.

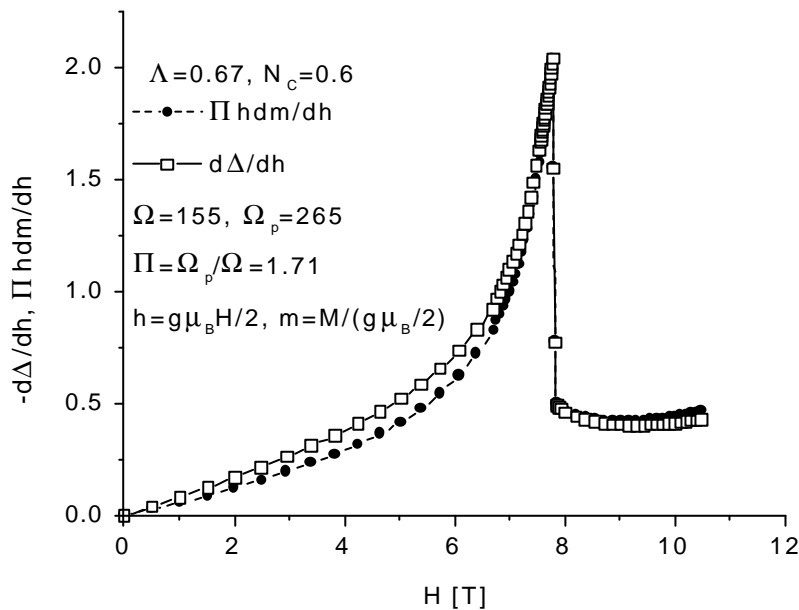


Abb.11.11: Test des Skalierungsverhaltens  $dV/dB = GBdm/dB$  für die Theorie von Goltsev und Bruls.

Der Grüneisenparameter  $\Omega_p$  ist, wie aus der Abbildung 11.11 ersichtlich, notwendig zur Beschreibung des Skalierungsverhaltens, das heißt, zur Abbildung der numerisch kalkultierten Feldabhängigkeit von  $-d\Delta/dh$  auf die numerisch berechnete Feldabhängigkeit von  $hdm/dh$ , um, dies sei noch einmal betont, die eigenen Messungen zu deuten.

Man kann  $\Omega$  somit als einen reinen Grüneisenparameter, dieser entspricht dem thermischen Grüneisenparameter, und  $\Omega_p$  als einen (unter Druck) renormalisierten Grüneisenparameter ansehen. Der zu  $\Omega_p$  zugehörige  $\Gamma_p$ -Parameter nimmt den Wert  $241 \text{Mbar}^{-1}$  an – siehe Abbildung 11.12.

Der Parameter hat jedoch keine Bedeutung bei den vorab dargelegten Rechnungen zur Erklärung des metamagnetischen Verhaltens. Man beachte noch einmal, dass die Skalierungsthese aus Kapitel 9 zur Beschreibung der vorgestellten Physik nur einen  $\Gamma$ -Parameter erfordert.

Das Skalierungsverhalten kann somit im Vergleich mit den experimentellen Resultaten zufriedenstellend durch die vorgestellte Theorie genähert werden.

Analog wie in [Matsuhira99] geschildert, kann man die Transformationsgleichung

$$\frac{\partial V}{\partial B} = \Gamma_p B \frac{\partial m}{\partial B}$$

über  $B$  integrieren und so den Verlauf der Magnetostriktion aus dem der Magnetisierung erhalten. Diesen wiederum mit den rein experimentell gewonnenen Werten vergleichen. Aufgetragen gegen das quadrierte magnetische Moment ist in obig zitierter Literatur eine abschnittsweise lineare Funktion zu beobachten, die den Einfluss der Magnetisierung für die Magnetostriktion widerspiegelt.

Ähnlich sind in der nachfolgenden Abbildung 11.12 die Messungen von Matsuhira mit den eigenen vergleichend gegenübergestellt. Dabei sind die eigenen Messungen durch die Berechnungen nach der Goltsev-Bruls-Theorie - Abbildung 11.11 - begleitend eingebunden. Auf das Einfügen der integralen Resultate nach eben geschilderter Transformationsgleichung ist daher bewusst verzichtet worden.

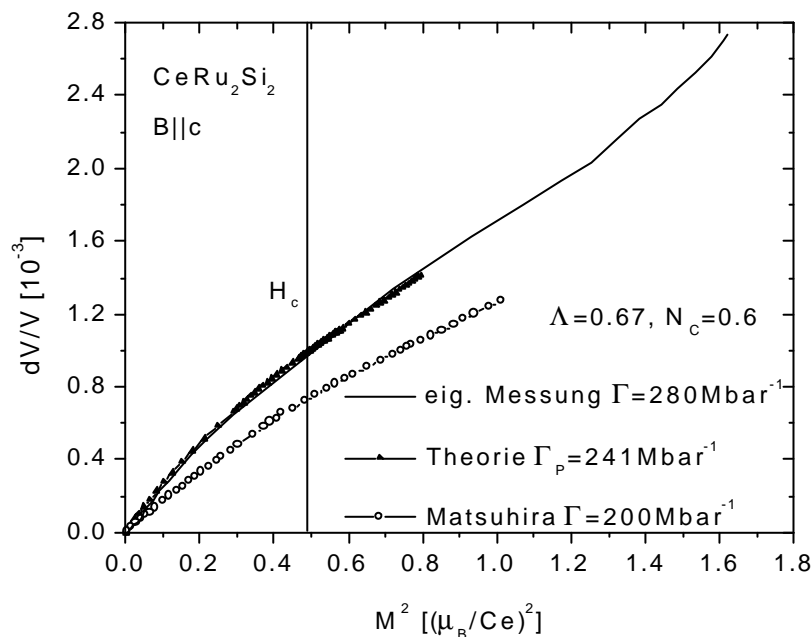


Abb11.12: Die relative Volumenänderung aufgetragen über  $M^2$ . In der Graphik sind zum Vergleich die eigenen Messdaten mit denen von Matsuhira [Matsuhira99] eingetragen. Die eigenen Messdaten werden zusätzlich durch einen theoretischen Verlauf nach der Theorie von Goltsev-Bruls ergänzt. Die Senkrechte markiert die kritischen Werte am metamagnetischen Übergang.

Eine Tabelle, in der die experimentellen Resultate mit denen der Theorie gegenübergestellt werden, soll die obigen Ausführungen ergänzen.



	Theorie	Experiment	Probe	Referenz
$T_K$ [K]	19,8	25		[Besnus85]
$H_{kr} _{V=\text{konst.}}$ [T]	10.2	10.2 9	Onuki Lejay	eigene Messung eigene Messung
$H_{kr} _{P=0}$ [T]	7.8	7.7	Onuki	eigene Messung
$\Lambda$	0.73/0.67	-	Onuki/Lejay	
$T_{Koh}$ [K]	-	0.3-0.5		[Sakakibara95] [Kambe95]
$T_0(0)$ [K]	14.2	-		
$r_F(H_{kr})/r_F(0)$	1.91	1.77		[Paulsen90]
$\gamma$ [J / molK <sup>2</sup> ]	0.32	0.35		[Lacerda89]
$\chi$ (H = 0)[ $\mu_B$ / T]	0.055	0.06		[Haen87]
$M(H_{kr}) _{P=0}$ [ $\mu_B$ ]	0.75	0.75	Lejay/Onuki	eigene Messung
$\Omega$	168	250 391 164 235-270	Lejay Onuki	eigene Messung eigene Messung [Matsuhira97] [Haen95]
$\Delta V/V _{H_{kr}-H=0}$	0.16%	0.12% 0.16%	Lejay	[Lacerda90] eigene Messung
$\Gamma$ [Mbar <sup>-1</sup> ]	153	171 ( $\Gamma_P \Gamma$ ) 250 160	Onuki Lejay	[Mignot88] eigene Messung eigene Messung
$\Gamma_P$ [Mbar <sup>-1</sup> ]	265	280 170 200	Lejay Onuki	eigene Messung eigene Messung [Matsuhira99]
$\kappa$ [Mbar <sup>-1</sup> ]	0.91 (hydrost.)	0.64 (uniaxial)	Lejay	eigene Messung

*Tabelle 11.1:  $G_P$  kennzeichnet hierbei den Parameter, der aus den „passiven Druckexperimenten“ gewonnen wurde.*

### 11.3 Interpretation

Ausgangspunkt der Analyse der experimentellen Resultate stellt die Betrachtung des Verhaltens verdünnter Kondosysteme auf Cerbasis und die mögliche Übertragbarkeit der Interpretationen auf die Kondogitter aufgrund ähnlicher Eigenschaften dar. Alsdann erfolgt eine Inbetrachtziehung des anormalen Poissonverhältnisses, das Cersystemen mit einem Valenzwechsel eigen ist, siehe Kapitel 3. Nicht anhand quantitativer Daten, sondern mittels einer qualitativen Untersuchung soll hier das Verhalten von  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  unter Druck erklärt werden, da eine Bestimmung des Poissonratios im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgen konnte.

Das Seltene Erdelement Cer zeigt bei 141K einen isostrukturellen Phasenübergang 1. Ordnung [Koskenmaki78], die sogenannte  $\gamma$ - $\alpha$ -Transformation, die von einer Volumenschrumpfung von 15% begleitet wird, was den Begriff des Kondovolumenkollapses prägte [Allen82], wie in Kapitel 1 bzw. 4 erwähnt, stabilisiert sich dadurch der Kondosingulettzustand. Unter Druck schiebt die Phasengrenze kontinuierlich zu höheren Temperaturen mit ungefähr 25K/kbar. Ursache dieser Anomalie ist eine Änderung der elektronischen Struktur, genauer des f-Elektronensystems. Das Lanthanidion zeigt nämlich eine starke Volumenabhängigkeit von der 4f-Valenz, die im Falle der unterschiedlichen Cerkonfigurationen in der nachstehenden Tabelle aufgelistet ist [Koskenmaki78].

#### *Metallischer Radius des Seltenen Erd Elementes Cer*

<i>Phase</i>	<i>Radius (Å)</i>	<i>Valenz</i>
<i>hypothetisches trivalentes Ce</i>	1.846	-
<b>b-Ce</b>	1.8321	3.04
<b>g-Ce</b>	1.8245	3.06
<b>d-Ce</b>	1.82	3.06
<b>a-Ce</b>	1.73	3.67
<b>a'-Ce</b>	1.669	4.00
<i>hypothetisches tetravalentes Ce</i>	1.672	-

*Tabelle 11.2*

Bedingt wird diese Volumenabhängigkeit durch die stark in Kernnähe lokalisierten f-Elektronen, die das Coulombpotential, in dem sich die 5s- und 6d-Elektronen bewegen, abschirmen [Goldschmidt78]. Dieses effektive Potential kann durch die Erhöhung oder Senkung der Wertigkeit entsprechend einer Valenz von  $f^{4+}$  beziehungsweise  $f^{3+}$  drastisch verstärkt oder reduziert werden, wodurch die 5s- und 6d-Valenzelektronen ein demgemäß kleineres beziehungsweise größeres Raumvolumen einnehmen. Die Valenzfluktuation wird dabei begünstigt durch eine Beinaheentartung der Zustände  $4f^n (5d6s)^m$  und  $4f^{n-1} (5d6s)^{m+1}$  [Lawrence81]. Beim Cerion ist die 3+-wertige Konfiguration mit einem  $j=5/2$  magnetisch, der tetravalente Zustand hingegen unmagnetisch ( $j=0$ ).

Die beiden vorangegangenen Absätze bilden die Kausalität für das anormale Poissonratio, wie es für Gemischtvalente Systeme eigen ist.

Es stellt sich einem die Frage, inwieweit diese elektronische Instabilität das Verhalten anderer Kondosysteme auf Cerbasis prägt. Nun hat man ohnedies das magnetische Verhalten und das effektive Volumen verdünnter intermetallischer Cerverbindungen immer gut durch den **g**

beziehungsweise  $a$ -artigen Charakter des Cerions verstanden [Croft81]. Aber inwieweit kann man den dominanten Charakter des Cerions auch auf das Kondogitter  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  übertragen, das ja in seinen physikalischen Eigenschaften ebenfalls entscheidend durch diese  $f$ -Instabilität bestimmt wird. Der kohärente Zustand ist bei 1.4K in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  noch nicht ausgebildet. In Kapitel 1 wurde auf die enge Verwandtschaft zwischen den Kondosystemen hingewiesen, die durch eine nicht scharf definierte Grenze in eine Schwere-Fermionen-Region und einen gemischtvalenten Bereich unterteilt werden. Zeigen letztere doch reelle Ladungsfluktuationen, die auf eine höhere Varianz der Valenz vom integralen Wert hindeuten. Sodann wurde  $\text{YbInCu}_4$  angeführt, das nach einem neuen theoretischen Modell bei tiefen Temperaturen einen Übergang von einem zwischenvalenten zu einem Kondogitterzustand erfährt, wobei an der Phasengrenze ein Wechsel der Wertigkeit von nur  $\Delta n_f=0.1-0.2$  auftritt [Felner87] [Cornelius97]. Ebenfalls wurden im Kapitel 8 experimentelle Evidenzen gegeben, das  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  schon bei niederenergetischen Anregungen valenzfluktuiierende Tendenzen zeigt. Das System scheint sich nahe des Grenzbereiches beider Zustände zu befinden. Die Untersuchungen von Besnus et al. an  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  unter chemischem Druck haben die gleiche Aussage wie die Druckexperimente von Schilling. Die gesetzmäßige Volumenabhängigkeit der Kondotemperatur manifestiert sich in den betrachteten Fällen und spiegelt das Verhalten des  $\gamma$ - $\alpha$ -Phasenübergangs unter Druck wider.

Die Kondosysteme werden zum einen charakterisiert durch die Lage des  $f$ -Niveaus im Bezug auf den Fermilevel und zum anderen über die Hybridisierung. Da es möglich ist  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  mit Hilfe einer niederenergetischen Anregung in Form von Druck von einem Zustand mit schwacher Kondokopplung begleitet von einer hohen Kondotemperatur in einen Zustand mit starker Kondokopplung und niedriger Kondotemperatur zu steuern, wofür schon die Volumenabhängigkeit der Kondotemperatur mit dem für Schwere Fermionen Systeme sehr hohen Grüneisenparameter hinreichend symptomatisch erscheint, heißt, dass durch den Druck entweder die Lage des  $f$ -Levels beeinflusst wird, oder die Hybridisierung eine Modifikation erfährt. Da mir aus der Literatur keine Untersuchungen an  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  bezüglich dieser beider Parameter vorliegen, soll in Anlehnung an die dominanten Eigenschaften des Lanthanidions im physikalischen Verhalten eine kurze Erörterung erfolgen. Hierbei wird natürlich eine Betrachtung des speziellen Kristallfeldes außer Acht gelassen und im ersten Beispiel liegt nicht einmal die gleiche Punktsymmetriegruppe vor, jedoch ist in beiden angeführten Beispielen die Tendenz die gleiche.

Das die Verschiebung des  $f$ -Niveaus eher nicht für die Erhöhung der Kondotemperatur in Betracht zu kommen scheint, dafür sprechen Photoemissionsspektroskopien von Croft et al. [Croft81] an den Cerverbindungen  $\text{CeAl}_2$ ,  $\text{Ce}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{Al}_2$  und  $\text{Ce}_{0.6}\text{Sc}_{0.4}\text{Al}_2$ . Die Laves-Phase  $\text{CeAl}_2$  liegt unter Normaldruck in einer  $\gamma$ -ähnlichen Phase vor und geht bei einem Druck größer als 65kbar unter einem Volumenkollaps von 7% in eine  $\alpha$ -ähnliche Phase über [Probst78] [Croft79]. Die Eigenschaften des reinen metallischen Cerelementes spiegeln sich also in dieser Verbindung wider. Die dotierten Substanzen bewirken eine chemische Kompression, wobei die mit Scandium angereicherte Probe der  $\gamma$ -Laves-Phase sehr ähnlich ist. Nun beobachteten Croft et al. keine Verschiebung des  $f$ -Levels in den dotierten Substanzen. Eine erhöhte 4f-Bindungsenergie kann demnach nicht für eine Zunahme der Kondotemperatur eintreten. Die Untersuchungen favorisierten den Zuwachs der Hybridisierungsstärke durch die Volumenkompression.

Das die Hybridisierung der wesentliche Parameter zum Beschreiben der Kondosysteme darstellt wurde ebenfalls in einer Studie von Sampathkumaran und Vijayaragharan untersucht [Sampathkumaran86]. Sie verfolgten mittels einer Faradaywaage die Suszeptibilitäten bei einer Dotierungsreihe an dem Schweren Fermionen System  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ . Es wurde für Kupfer sukzessiv Nickel ( $\text{CeCu}_{2-x}\text{Ni}_x\text{Si}_2$ ) beigemischt, wobei ein kontinuierlicher Anstieg der Gitterparameter sowie der Kondotemperatur beobachtet wurde, die das System bei einer Nickelkonzentration größer  $x>0.5$  dem zwischenvalenten Zustand zuordnen lassen. Das

Verunreinigen mit Nickel verursacht einen steten Zuwachs der Gitterparameter a und c, wodurch eine Abnahme der Hybridisierung resultiert. Ab der Konzentration von  $x=0.5$  erfolgt sogar ein vermehrter Anstieg der c-Achse. Die Autoren gehen sogar soweit, eine Klassifizierung vorzuschlagen, bei der Kondosysteme mit  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$ -Struktur aufgrund ihrer Ce-Ce-Abstände oder Gitterparameter als sich im Schwere-Fermionen-Regime oder im gemischtvalenten Zustand befindend eingestuft werden können.  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  würde sich mit dem von ihnen angegebenen c-Parameter von  $9.8\text{\AA}$  im Grenzbereich finden [Hiebl 84] [Severing89].

Zurück zum System  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  –

Die Änderung der Hybridisierung in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  ist begleitet von einer Änderung der Cervalenz, wie Ponchet in einer Analyse der Besetzungswahrscheinlichkeit des f-Niveaus für unterschiedliche chemische Drücke deduzierte [Ponchet87]. Er fand für 0kbar einen  $n_f$ -Wert von 0.911 und für 14kbar ein  $n_f$  von 0.897. Die große Ladungsfluktuation bei 0kbar scheint aber eher unrealistisch. So findet sich bei Neifeld eine Valenz von 3.03, die über  $L_{III}$ -Photoabsorption bestimmt wurde [Neifeld85]. Äquivalent dazu berichten Tsunekawa et al. dank einer hochauflösenden Photoemissionsstudie von einer mittleren Besetzung von  $n_f=0.96$  [Tsunekawa97]. Die Ergebnisse von Ponchet sollten daher mehr qualitativ gesehen werden, ist doch bekannt, dass die 4f-Besetzung in intermetallischen Cerverbindungen im Allgemeinen nicht stark vom integralen Wert 3 abweicht und die Varianz  $<0.2$  beträgt. Nichts desto trotz belegen sie die Erzeugung von zunehmenden Ladungsfluktuationen unter Druck. Bezug nehmend auf den Gesamtdrehimpuls  $j$  für die verschiedenen Wertigkeiten des Cerions bedeutet dies für  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  im Magnetfeld, dass der  $\text{Ce}^{3+}$ -Zustand mit  $j=5/2$  favorisiert würde, damit verbunden ist aber eine Volumenexpansion. Das System zieht demnach energetischen Nutzen am kritischen Feld von  $B=7.8\text{T}$ , dem metamagnetischen Punkt, durch einen Valenzwechsel ein damit gekoppeltes größeres Volumen einzunehmen. Eine im Vergleich zum Kondovolumenkollaps, wie er im metallischen Cer auftritt, entsprechend der wesentlich geringeren Volumenreduktion in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  adäquate Valenzänderung würde sich durch eine Überschlagsrechnung zu 1 Promille ergeben. Dabei ist eigentlich die Kopplung an das Kristallfeld zu berücksichtigen, sollte aber hier, wegen des Charakters einer groben Abschätzung vernachlässigt werden. Wenn nun die von der Probe ausgeübte Expansion in c-Achsenrichtung verursacht durch das Bestreben des Cerions im Magnetfeld eine geringere Wertigkeit anzunehmen durch uniaxialen Druck parallel zur c-Achse verhindert wird, so würde wegen des damit existierenden negativen Poissonratios keine Querkontraktion auftreten, jedenfalls zeigt das Wirtsgitter keine die von relevanter Größenordnung wäre – siehe Abbildung 10.16.

Bleibe den Unterschied zwischen dem thermischen (TGP) und dem magnetischen (MGP) Grüneisenparameter zu erklären. Kaiser und Fulde haben 1988 gezeigt [Kaiser88], basierend auf dem Skalierungsansatz von Thalmeier und Fulde, dass der MGP bis zu einer Größenordnung gegenüber dem TGP differieren kann, wenn Spin-Wechselwirkungen zwischen Quasiteilchen relevant werden. Sie führen dann zu einer Erniedrigung des spinabhängigen Fermiflüssigkeitsparameters  $G$  – siehe Kapitel 1, korreliert mit einer erhöhten Suszeptibilität nach

$$\chi_m = 2\mu_{\text{eff}}^2 N(E_F)(1 + G)^{-1}.$$

Der Fermiflüssigkeitsparameter  $G$  ist mit dem Stoner-Faktor verknüpft über  $(1+G)^{-1}=s$ . Dieser Faktor resultiert aus einer Theorie in der Stoner das Hubbard-Modell für die Bandmagnete der d-Elemente durch eine Molekularfeldnäherung löste. Von äquivalenter Bedeutung ist das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis, das wiederum direkt proportional zum Stoner-Faktor ist:

$$R = \frac{1}{3} \left( \frac{\pi k_B}{\mu_B} \right) \cdot \frac{\chi_m}{\gamma} = \left( \frac{\mu_{\text{eff}}}{\mu_B} \right)^2 \cdot s.$$

Hier in einer Form unter Vernachlässigung der Elektron-Phonon-Kopplung. Untersucht man das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis im Magnetfeld, so beobachtet man bei einer Temperatur von 1.4K eine Zunahme der Suszeptibilität um das 5-7fache [Sakakibara95] [Haen87]. Die spezifische Wärme verzeichnet hingegen nur einen Zuwachs um das 1.5fache [Aoki98].  $R$  ist demnach im Feld stark erhöht und würde eine Abweichung des MPG vom TGP zulassen. Deuten doch bereits die Dotierungsversuche auf Yttriumbasis von Haen [Haen95] ein derartiges Verhalten an. Die in Kapitel 8 vorgestellten Experimente weisen eine drastische Erhöhung des MPG von bis zu 50% gegenüber dem TGP auf, wobei sich der Wert im Bereich von 235-270 bewegt.

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde versucht, das Phänomen des Metamagnetismus, wie es in den elektronisch hochkorrelierten Systemen auftritt und im Besonderen in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , eingehender zu untersuchen. Hauptanliegen war die Rolle der Elektron-Gitter-Wechselwirkung zu analysieren. Hierzu wurde eine Messzelle konstruiert, die es ermöglichen sollte das Volumen während der Magnetfeldläufe durch das Ausüben von „passivem“ uniaxialen Druck konstant zu halten. Die Experimente konnten an verschiedenen  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ -Proben durchgeführt werden, mit stark unterschiedlichen Länge-zu-Breite-Verhältnissen.

Die Messergebnisse an den zur Verfügung stehenden Chargen, den Lejay-Proben und der Onuki-Probe, sind in sich nicht schlüssig, führten doch die Magnetostriktions- und die Suszeptibilitätsmessungen unter Druck an den Lejay-Proben mittels einer Beschreibung über die Skalierungsthese zu unterschiedlichen  $\Gamma$ -Parametern. So ist über die Magnetostriktion ein Wert von  $\Gamma=280\text{Mbar}^{-1}$  gewonnen worden und über die Suszeptibilität unter Druck resultierte letzten Endes unter Grundlage einer Kompressibilität von  $\kappa=0.64\text{Mbar}^{-1}$  ein Wert von  $\Gamma=160\text{Mbar}^{-1}$ . Die Onuki-Probe zeigte unterdessen eine stärkere Feldverschiebung unter Druck in den Suszeptibilitäts- sowie den realisierten Ultraschallmessungen einer longitudinalen Mode, die entlang der [110]-Richtung propagierte. Beide Messmethoden wiesen zwar ein eindeutiges Verhalten unter Druck auf, doch ist auch hier ebenfalls eine Abweichung des  $\Gamma$ -Parameters gegenüber den aus der Literatur bekannten Werten von  $171\text{-}200\text{Mbar}^{-1}$ , als auch gegenüber den „Lejay-Werten“ festgestellt worden. So zeigte die Onuki-Probe im Rahmen einer Auswertung mit einer Kompressibilität von  $\kappa=0.64\text{Mbar}^{-1}$  kein schlüssiges Verhalten bei einer Zusammenschau der Suszeptibilitätsmessungen unter Druck sowie der Transformation der Magnetostriktions- auf die Magnetisierungsdaten, basierend auf Messungen der Lejay-Proben. Der erhaltene  $\Gamma$ -Parameter von  $250\text{Mbar}^{-1}$  steht hierbei dem Wert von  $280\text{Mbar}^{-1}$  gegenüber. Diese Differenz entspricht einer Feldverschiebung von  $0.7\text{T}$ . Kalkuliert man aus der Striktionsmessung entlang der [110]-Richtung die relative Volumenänderung, findet sich hingegen ein  $\Gamma$ -Parameter von  $170\text{Mbar}^{-1}$ , der sich seinerseits wieder mit den Resultaten von Mignot deckt. Festzuhalten ist jedoch, dass für beide Proben ein erhöhter Grüneisenparameter aus den Experimenten mit „passivem Druck“ gefunden wurde.

Kann man das über die unterschiedlichen  $\Gamma$ -Parameter deduzierte Verhalten beider Proben unter Druck noch auf eine eventuelle Probenqualität zurückführen, so bleibt immer noch die Tatsache kritisch, dass die experimentell bestimmten  $\Gamma$ -Werte hier größer als die in der Literatur veröffentlichten und nicht alleine aus einem abweichenden Kompressibilitätswert zu erklären sind.

Trotzdem ist ein wichtiges Ergebnis erzielt worden.

An der Probe mit dem für uniaxialen Druck günstigen geometrischen Abmessungen wurde die Zwangsbedingung des konstanten Volumens verifiziert. Dies geschah durch ein von G.Bruls neu entwickeltes Dilatationsmessverfahren auf Ultraschallbasis. Es wurde durch eine Unterdrückung des Gitterfreiheitsgrades gezeigt, dass der Metamagnetismus intrinsischer Natur ist, wie es theoretische Überlegungen mit Hilfe des Skalierungsansatzes prognostizierten. Das kritische Feld ist jedoch im Gegensatz zum frei expandierenden System zu höheren Feldern verschoben und der Metamagnetismus wesentlich schwächer ausgebildet. Wodurch sich in der Diskussion um die Rolle des Gitters bei der Prägnanz des metamagnetischen Überganges deutlich dessen Relevanz abzeichnet.

Ist aus der Skalierungsthese eine Beschreibung der physikalischen Vorgänge mit einem Parameter hinreichend, so bedingte, wie zuvor erwähnt, eine Adaption der Skalierungsthese auf die durchgeführten „passiven Druckexperimente“ die Einführung eines gegenüber dem thermischen Grüneisenparameter erhöhten, renormalisierten Grüneisenparameters. Diese

eventuelle druckbedingte Renormierung kann aber auch ursächlich als Erhöhung des magnetischen Grüneisenparameters gewertet werden, die als Indiz eines im Magnetfeld anwachsenden Sommerfeld-Wilson-Verhältnisses gedeutet wird.

Abschließend wurde ein theoretisches Modell vorgestellt, das den **metamagnetischen Übergang** auf das Feldverhalten der hybridisierten Quasiteilchenbänder mit erhöhter Zustandsdichte zurückführt. Das Maximum in der Suszeptibilität ist dabei die Folge eines *levelcrossings* des *spinup*-Bandes mit der Fermikante, das von einem Abwandern der itineranten Elektronen in das obere *spinup*-Band begleitet wird. Als wichtig für die naturgemäße Beschreibung des Metamagnetismus in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  hat sich hierbei die Berücksichtigung der Anisotropie der Hybridisierungswechselwirkung, sowie die durch das Kristallfeld bedingte korrekte Grundzustandswellenfunktion erwiesen.

Mit diesem Modell gelingt auch eine Reproduktion des phänomenologisch gefundenen Skalierungsverhaltens mit dem die Magnetostruktionsdaten auf die Magnetisierungsdaten transformiert werden.

## Literaturverzeichnis

- [Abrikosov65] A. A. Abrikosov, *Physics* 2 (1965) 5
- [Allen82] J. W. Allen, R. M. Martin, *Phys. Rev. Lett.* 49 (1982) 1106
- [Aoki93] H. Aoki, S. Uji, A.K. Albessard, Y. Onuki, *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993) 2110
- [Aoki98] Y. Aoki, T. D. Matsuda, H. Sugawara, H. Sato, H. Ohkuni, R. Settai, Y. Onuki, E. Yamamoto, Y. Haga, A. V. Andreev, V. Sechovsky, L. Havela, H. Ikeda, K. Miyake, *J. Magn. Magn. Mater.* 177-181 (1988) 271
- [Ballestracci78] B. Ballestracci, G. Astier, *C. R. Acad. Scien. B* 286 (1978) 109
- [Besnus85] M. J. Besnus, J. P. Kappler, P. Lehmann, A. Meyer, *Solid State Commun.* 55 (1985) 779
- [Besnus87] M. J. Besnus, P. Lehmann, A. Meyer, *J. Magn. Magn. Mat.* 63&64 (1987) 323
- [Bhatia86] A. B. Bhatia, R. N. Singh, „*Mechanics of Deformable Media*“, Graduate Student Series in Physics, Adam Hilger, Bristol and Boston (1986)
- [Bickers87] N. E. Bickers, *Rev. Mod. Phys.* 59 (1987) 845
- [deBoer86] F. deBoer, J. Franse, E. Louis, A. Menovsky, J. Mydosh, T. Palastra, U. Rauchschwalbe, W. Schlabitz, F. Steglich, A. deVisser, *Physica B* 138 (1986) 1
- [Bonn88] D. A. Bonn, J. D. Garrett, T. Timusk, *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 1305
- [Braden90] M. Braden, P. Böhm, F. Seidler, H. Kalenborn, D. Wohlleben, *Z. Phys. B* 79 (1990) 173
- [Brugger64] K. Brugger, *Phys. Rev.* 133, 6A (1964) 1611
- [Bruls90] G. Bruls, D. Weber, B. Lüthi, J. Flouquet, P. Lehay, *Phys. Rev. B* 42 (1990) 4329
- [Bruls93] G. Bruls, B. Lüthi, *Phys. Rev. B* 48 (1993) 13154
- [Bruls98] G. Bruls, unveröffentlicht
- [Cattaneo86] E. Cattaneo, *Z. Phys. B* 64 (1986) 305
- [Chase53] C. E. Chase, *Proc. P. Soc. A* 220 (1953) 116



- [Choudry00] A. Choudry, unveröffentlicht
- [Cornelius97] A. L. Cornelius, J. M. Lawrence, J. L. Sarrao, Z. Fisk, M. F. Hundley, G. H. Kwei, J. D. Thompson, C. H. Booth, F. Bridges, Phys. Rev. B 56 (1997) 7993
- [Croft79] M. Croft, A. Jayaraman, Solid State Commun. 29 (1979) 9
- [Croft81] M. Croft, J. H. Weaver, D. J. Peterman, A Franciosi, Phys. Rev. Lett. 46 (1981) 1104
- [Cyrot92] M. Cyrot, D. Pavuna, „Introduction to Superconductivity and High-T<sub>C</sub> Materials“, World Scientific Publishing Co. London (1992)
- [Desgranges82] H.-U. Desgranges, K.-D. Schotte, Phys- Lett. A 91 (1982) 240
- [Djerbi86] R. Djerbi, P. Haen, P. Lappiere, P. Lehmann, J. P. Kappler, J. Magn. Magn. Mat. 76&77 (1986) 260
- [Djerbi89] R. Djerbi, Dissertation, Universität Grenoble (1990)
- [DKI] Deutsches Kupfer Institut, Informationsdruck „Niedriglegierte Kupferwerkstoffe“, Bestellnr. i.8, Berlin
- [Doniach77] S. Doniach, Physica 91 B (1977) 231
- [Evans90] S. M. M. Evans, J Phys. Condensed Matter 2 (1990) 9097
- [Evans92a] S. M. M. Evans, Europhys. Lett. 17 (1992) 469
- [Evans92] S. M. M. Evans, J. Magn. Magn. Mat. 108 (1992) 135
- [Evans93] S. M. M. Evans, Phys. Rev. B 48 (1993) 13153
- [Falicov69] L. M. Falicov, J. C. Kimball, Phys. Rev. Lett. 22 (1969) 997
- [Fawcett91] E. Fawcett, V. Pluzhnikov, H. Klimker, Phys. Rev. B 43 (1991) 8531
- [Felner87] I. Felner, I. Nowik, D. Vaknin, U. Potzel, J. Moser, G. M. Kalvius, G. Wortmann, G. Schmiester, G. Hilscher, E. Gratz, C. Schmitzer, N. Pilmayr, K. G. Prasad, H. de Waard, H. Pinto, Phys. Rev B 37 (1987) 6956
- [Fisher91] R. A. Fisher, C. Marcenat, N. E. Phillips, P. Haen, F. Lapiere, P. Lejay, J. Flouquet, J. Voiron, J. Low Temp. Phys. 84 (1991) 49

- [Flouquet95] J. Flouquet, S. Kambe, L. P. Regnault, P. Haen, J. P. Brison, F. Lapierre, P. Lejay, *Physica B* 215 (1995) 77
- [Franke69] H. Franke, „Lexikon der Physik“, Franckh’sche Verlagshandlung, Stuttgart (1969)
- [Fulde79] P. Fulde, „Crystal fields“, *Handbook on The Physics and Chemistry of The Rare Earths*, Vol. 2, ed. by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring, (1979) 295
- [Fulde88] P. Fulde, J. Keller, G. Zwicknagel, *Solid State Physics* 41 (1988) 1
- [Fukuhara96] T. Fukuhara, K. Maezawa, H. Okuni, J. Sakurai, H. Sato, H. Asuma, K. Sugiyama, Y. Onuki, K. Kindo, *J. Phys. Soc. Jpn.* 65 (1996) 1559
- [Glötze74] W. Glötze, P. Schlottman, *J. Low Temperatur. Phys.* 16 (1974) 87
- [Goldschmidt78] Z. B. Goldschmidt, „Atomic properties“, *Handbook on The Physics and Chemistry of The Rare Earths*, Vol. 1, ed. by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring, (1978) 1
- [Goltsev01] A. V. Goltsev, G. Bruls, *Phys. Rev. B*, Vol.63, 155109, (2001)
- [Goltsev01a] A. V. Goltsev, G. Bruls, D. Wichert, Y. Onuki, wird veröffentlicht
- [Goto88] T. Goto, T. Suzuki, Y. Ohe, T. Fujimura, S. Sakatsume, Y. Onuki, T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* 57 (1988) 2612
- [Grewe91] N. Grewe, F. Steglich, „Heavy Fermions“, *Handbook on The Physics and Chemistry of The Rare Earths*, Vol. 14, ed. by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring, (1991) 343
- [Gröger81] V. Gröger, F. Stangler, *Z. Metallkunde* 72 (1981) 487
- [Grüneisen12] E. Grüneisen, *Ann. Phys.* 39 (1912) 257
- [Gschneider85] K. A. Gschneider, Jr., S. K. Dhar, R. J. Stierman, T.-W. E. Tsang, O. D. McMasters, *J. Magn. Magn. Mat.* 47&48 (1985) 51
- [Häfner83] H. U. Häfner, „Magnetostriktion von metallischen Seltenen-Erd-Verbindungen mit stabiler und instabiler Valenz“, *Dissertation Köln* (1983)
- [Haen87] P. Haen, J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay, G. Remenyi, *J. Low Temp. Phys.* 67 (1987) 391
- [Haen93] P. Haen, J.-M. Laurant, K. Payer, J.-M. Mignot, „Transport and Thermal Properties of f-Elektron Systems“, ed. G. Oomi et al.,

Plenum Press, New York (1993)

- [Haen95] P. Haen, A. de Visser, F. Lapierre, *Physica B* 211 (1995) 230
- [Hampel 93] K. G. Hampel, „Systeme Schwerer Fermionen: Spektroskopie der kollektiven Anregungen“, Dissertation, Verlag Harri Deutsch Bd.23 Frankfurt am Main (1993)
- [Hampel 94] K. G. Hampel, *Phys. Rev. Lett.* 72 (1994) 3386
- [Hanzawa87] K. Hanzawa, K. Yamada, K. Yosida, *J. Phys. Soc. Jpn.* 56 (1987) 678
- [Hellwege88] K.-H. Hellwege, „Einführung in die Festkörperphysik“, Springer-Verlag (1988)
- [Hess93] D. W. Hess, P. S. Riseborough, J. L. Smith, „Heavy-Fermion Phenomena“, *Encyclopedia of Applied Physics* 7 (1993) 435
- [Hiebl 84] K. Hiebl, C. Horvath, P. Rogl, M. J. Sienko, *Z. Phys. B* 56 (1984) 201
- [Hirst74] L. L. Hirst, *J. Phys. Chem. Solids* 35 (1974) 1285
- [Ikeda96] H. Ikeda, K. Miyake, *J. Phys. Soc. Jpn.* 65 (1996) 1769
- [Kaiser88] A. B. Kaiser, P. Fulde, *Phys. Rev. B* 37 (1988) 5357
- [Kambe95] S. Kambe, H. Suderow, J. Flouquet, P. Haen, P. Lejay, *Solid State Commun.* 95 (1995) 449
- [Kittel67] Ch. Kittel, „Introduction to solid state physics“, 3. edition, John Wiley & Sons Inc., New York (1967)
- [Kondo64] J. Kondo, *Progr.Theor.Phys.* 32 (1964) 37
- [Koskenmaki78] D. C. Koskenmaki, K. A. Gschneidner, Jr., „Cerium“, *Handbook on The Physics and Chemistry of The Rare Earths*, Vol. 1, ed. by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring, (1978) 337
- [Kouroudis99] I. Kouroudis, unveröffentlicht
- [Lacerda89] A. Lacerda, A. deVisser, P. Haen, P. Lejay, J. Flouquet, *Phys. Rev. B* 40 (1989) 8759
- [Lacerda90] A. Lacerda, Dissertation, Universität Grenoble (1990)
- [Lacerda91] A. Lacerda, A. de Visser, L. Puech, C. Paulsen, P. Haen, P. Lejay, J. Flouquet, *Physica B* 171 (1991) 312
- [Lawrence81] J. M. Lawrence, P. S. Riseborough, R. D. Parks,

- Rep. Prog. Phys. 44 (1981) 1
- [Lehmann87] P. Lehmann, Dissertation, Universität Louis-Pasteur (1987)
- [Leibfried55] G. Leibfried, „Gittertheorie der mechanischen und thermischen Eigenschaften der Kristalle“, Handbuch der Physik Bd. VII, Teil 1, Kristallphysik I, Springer-Verlag (1955)
- [Legvold63] S. Legvold, J. Alstad, J. J. Rhyne, Phys. Rev. Lett. 10 (1963) 509
- [Lenkewitz96] M. Lenkewitz, Dissertation, Shaker-Verlag Aachen (1996)
- [v.Löhneysen95] v.Löhneysen, Phys. Bl. 51 (1995) 941
- [Love44] A. E. H. Love, „A Treatise on the Mathematical Theory of Elasticity“, New York, Dover Publications (1944)
- [Ludwig78] W. Ludwig, „Festkörperphysik“, Akademische Verlagsgesellschaft Wiesbaden 1978
- [Lüthi80] B. Lüthi, „Interaction of Magnetic Ions with Phonons“, in Dynamical Properties of Solids, ed. by G. K. Horton, A. A. Maradudin, North Holland Publishing Company, Amsterdam (1980) 245
- [Lüthi85] B. Lüthi, J. Magn. Magn. Mat. 52 (1985) 70
- [Matsuhira97] K. Matsuhira, T. Sakakibara, H. Amitsuka, K. Tenya, K. Kamishima, T. Goto, G. Kido, J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 2851
- [Matsuhira99] K. Matsuhira, T. Sakakibara, A. Nomachi, T. Tayama, K. Tenya, H. Amitsuka, K. Maezawa, Y. Onuki, J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 3402
- [Melnicov82] N. I. Melnicov, Soviet Phys. JETP Lett. 35 (1982a) 414
- [Meulen91] H. P. van der Meulen, A. de Visser, J. J. M. Franse, T. T. J. M. Berendschot, J. A. A. J. Perenboom, H. van Kempen, A. Lacerda, P. Lejay, J. Flouquet, Phys. Rev. B 42 (1991) 814
- [Mignot88] J.-M. Mignot, J. Flouquet, P. Haen, F. Lapierre, L. Puech, J. Voiron, J. Magn. Magn. Mater. 76&77 (1988) 97
- [Millis87] A. J. Millis, P. A. Lee, Phys. Rev. B 35 (1987) 3394
- [Moreno00] J. Moreno, P. Coleman, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 342
- [Morin93] P. Morin, J. Rouchy, Phys. Rev. B 48 (1993) 256

- [Neifeld85] R. A. Neifeld, M. Croft, T. Mihalisin, C. U. Segre, M. Madigan, M. S. Torkachvili, M. B. Maple, L. E. DeLong, Phys. Rev. B 32 (1985) 6928
- [Newns84] D. M. Newns, N. Read, A. C. Hewson, „Moment Formation in Solids“, ed. W. J. L. Buyers, Plenum Press New York (1984)
- [Newns87] D. M. Newns, N. Read, Adv. Phys. 36 (1987) 799
- [Nicholson78] K. Nicholson, U. Häfner, E. Müller.Hartmann, D. Wohlleben, Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1325
- [Niksch85] M. Niksch, I. Kouroudis, W. Assmus, B. Lüthi, J. Magn. Magn. Mat. 47&48 (1985) 297
- [Nye60] J. F. Nye, „Physical Properties of Crystals“, Oxford Clarendon Press (1960)
- [Oda94] K. Oda, T. Kumada, K. Sugiyama, N. Sato, T. Komatsubara, M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. 63 (1994) 3115
- [Ohkawa89] F. J. Ohkawa, Sol. State Commun. 71 (1989) 907
- [Onuki92] Y. Onuki, I. Umehara, A.K. Albessard, T. Ebihara, K. Satoh, J. Phys. Soc. Jpn. 61 (1992) 960
- [Paulsen90] C. Paulsen, A. Lacerda, J. L. Tholence, J. Flouquet, Physica B 165-166 (1990) 433
- [Paulsen90a] C. Paulsen, A. Lacerda, L. Puech, P. Haen, P. Lejay, J. L. Tholence, J. Flouquet, A. de Visser, J. Low Temperatur. Phys. 81 (1990) 317
- [Pines66] D. Pines, P. Nozières, „The Theory of Quantum Liquids“, Vol. I: Normal Fermi Liquids, W. A. Benjamin, INC New York (1966)
- [Ponchet87] A. Ponchet, Dissertation, CNRS Grenoble (1987)
- [Probst78] C. Probst, J. Wittig, J. Magn. Magn. Mat. 9 (1978) 62
- [Puech88] L. Puech, J.-M. Mignot, P. Lejay, P. Haen, J. Flouquet, J. Voiron, J. Low Temp. Phys. 70 (1988) 237
- [Regnault88] L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, P. Lejay, J. Flouquet, Phys. Rev. B 38 (1988) 4481
- [Regnault90] L. P. Regnault, J. L. Jacoud, J. M. Mignot, J. Rossat-Mignot, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, Physica B 163 (1990) 606

- [Reissland73] J. A. Reissland, „The Physics of Phonons“, John Wiley & Sons Ltd., New York (1973)
- [Rhyne65] J. J. Rhyne, S. Legvold, Phys. Rev. 138 (1965) A 507
- [Rhyne65] J. J. Rhyne, S. Legvold, Phys. Rev. 140 (1965) A 2143
- [Rossat-Mignod88] J. Rossat-Mignod, L. Regnault, J. Jacound, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, A. Amato, J. Magn. Magn. Mat. 76&77 (1988) 376
- [Sakakibara95] T. Sakakibara, T. Tayama, K. Matsuhira, H. Mitamura, H. Amitsuka, K. Maezawa, Y. Onuki, Phys. Rev. B 51 [1995] 12030
- [Sampathkumaran86] E. V. Sampathkumaran, R. Vijayaraghavan, Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 2861
- [Schilling79] J. S. Schilling, Adv. Phys. 28 (1979) 657
- [Schrieffer66] J. R. Schrieffer, P. A. Wolff, Phys. Rev. B 149 (1966) 491
- [Sechovsky86] V. Sechovsky, L. Havela, F.R. deBoer, J.J.M. Franse, P.A. Veenhuizen, J. Sebek, J. Stehno, A.V. Andreev, Physica B 142 (1986) 283
- [Severing89] A. Severing, „Über inelastische Neutronenstreuung an 4f-instabilen Verbindungen“, Promotion Köln (1989)
- [Stevens52] K. W. H. Stevens, Proc. Phys. Soc. A 65 (1952) 209
- [Stumpf76] H. Stumpf, A. Rieckers, „Thermodynamik“ Bd.1, Vieweg&Sohn-Verlag, Braunschweig (1976)
- [Suhl65] H. Suhl, Physics 2 (1965) 39
- [Suzuki87] T. Suzuki, T. Goto, A. Tamaki, T. Fujimura, H. Kitazawa, T. Suzuki, T. Kasuya, J. Magn. Magn. Mat. 63&64 (1987) 563
- [Takke81] R. Takke, M. Niksch, W. Assmus, B. Lüthi, Z. Phys. B 44 (1981) 33
- [Thalmeier86] P. Thalmeier, P. Fulde, Europhysics. Lett. 1 (1986) 367
- [Thalmeier88] P. Thalmeier, J. Magn. Magn. Mat. 76&77 (1988) 299
- [Thalmeier91] P. Thalmeier, B. Lüthi, „The Electron-Phonon-Interaction in Intermetallic Compounds“, Handbook on The Physics and Chemistry of The Rare Earths, Vol. 14, ed. by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring, (1991) 225

- [Thompson85] J. D. Thompson, J. O. Willis, C. Godart, D. E. MacLaughlin, L. C. Gupta, Solid State Commun. 56 (1985) 169
- [Thurston64] R. N. Thurston, K. Brugger, Phys. Rev. 133, 6A (1964) 1604
- [Tremolet88] E. du Tremolet de Lacheisserie, B. Barabara, J. H. Henry, J. Magn. Magn. Mat. 71 (1988) L125
- [Tsunekawa97] M. Tsunekawa, S. Suga, A. Kimura, T. Matsushita, T. Muro, S. Ueda, H. Daimon, S. Imada, T. Nakatani, Y. Saitoh, T. Iwasaki, A. Sekiyama, A. Fujimori, H. Ishii, T. Miyahara, T. Hanyu, H. Namatame, M. Taniguchi, E. Shigemasa, O. Sakai, R. Takayama, R. Settai, H. Azuma, Y. Onuki, Solid State Commun. 103 (1997) 659
- [Tsvetlick83] A. M. Tsvetlick, P. B. Wiegmann, Adv. Phys. 32 (1983) 453
- [Voigt66] W. Voigt, „Lehrbuch der Kristallphysik“ Teubner, (1966)
- [deVisser90] A. deVisser, J. Franse, A. Lacerda, J. Flouquet, Physica B 163 (1990) 49
- [Wallace70] D. C. Wallace, Solid State Phys. 25 (1970) 301
- [Weber91] D. Weber, Elektron-Phonon-Kopplung im Kondo-Regime, Dissertation, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt/Main (1991)
- [Weißmantel79] Ch. Weißmantel, C. Hamann, „Grundlagen der Festkörperphysik“, Springer-Verlag Berlin (1979)
- [Wilks67] J. Wilks, „The properties of liquid and solid helium“, Clarendon Press, Oxford (1967)
- [Wohlfarth62] E. P. Wohlfarth, P. Rhodes, Philos. Magnetfeld. 7 (1962) 1817
- [Yamada91] H. Yamada, J. Phys. Condens. Mat. 3 (1991) 4115
- [Yamada92] H. Yamada, Physica B 177 (1992) 115
- [Yamagami93] H. Yamagami, A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. 62 (1993) 592
- [Yoshizawa86] M. Yoshizawa, B. Lüthi, K. Schotte, Z. Phys. B 64 (1986) 169

## Veröffentlichungen

Bruls, G.; Finsterbusch, D.; Kouroudis, I.; Wolf, B.; Wichert, D.; Lüthi, B.; Jansen, L.; Taillefer, L.; Physica B 223-224 (1996) 36  
*Ultrasound measurements of the B-T diagram of the heavy-fermion material  $UPt_3$  in very high magnetic fields.*

Wolf, B.; Hinkel, C.; Holtmeier, S.; Wichert, D.; Kouroudis, I.; Bruls, G.; Lüthi, B.; Hedo, M.; Inada, Y.; Yamamoto, E.; Haga, Y.; Onuki, Y.; J. Low Temp. Phys. 107 (1997) 421  
*Elastic properties of  $CeRu_2$ .*

Prokofiev, A.V.; Büllfeld, F.; Assmus, W.; Schwenk, H.; Wichert, D.; Löw, U.; Lüthi, B., Eur. J. Phys. B 5 (1998) 313  
*Magnetic properties of the low dimensional spin system  $(VO)_2P_2O_7$ : ESR and susceptibility.*

Büllfeld, F.; Prokofiev, A.V.; Assmus, W.; Schwenk H.; Wichert, D.; Löw, U.; Lüthi, B., Physica B 259-261 (1999) 969  
*Growth and magnetic properties of  $(VO)_2P_2O_7$ -single crystals.*

Haas, A.; Wichert, D.; Bruls, G.; Lüthi, B.; Balakrishnan, G.; Paul, D.Mck.; J. Low Temp. Phys. 114 (1999) 285  
*Elastic properties of superconducting stannides:  $Yb_3Rh_4Sn_{13}$  and  $Ca_3Rh_4Sn_{13}$ .*

Zherlitsyn, S.; Lüthi B.; Gusakov, V.; Wolf, B.; Ritter, F.; Wichert, D.; Barilo, S.; Shiryaev, S.; Escribe-Filippini, C.; Tholence, J.L.; Eur. J. Phys. B 16 (2000) 59  
*Structural instability and superconductivity in  $Ba_{1-x}K_xBiO_3$ .*

Zherlitsyn, S.; Lüthi B.; Gusakov, V.; Wolf, B.; Ritter, F.; Wichert, D.; Bruls, G.; Barilo, S.; Shiryaev, S.; Escribe-Filippini, C.; Tholence, J.L.; Physica C 341-348 (2000) 731  
*Ultrasonic investigation of structural instability in superconducting  $Ba_{1-x}K_xBiO_3$  single crystals.*

Prokofiev, A.V.; Assmus, W.; Wichert, D.; J. Cryst. Growth 220 (2000) 345  
*Crystal growth of the quasi-one dimensional spin magnet  $LiCuVO_4$ .*



## Danksagung

An dieser Stelle danke ich zuerst Herrn Prof. Dr. B. Lüthi und seinem Nachfolger Herrn Prof. Dr. M. Lang für die vielfältige Unterstützung meiner Arbeit, sowie der Bereitstellung der Mittel zu ihrer Verwirklichung.

Mein größter Dank für das Gelingen dieser Arbeit gilt im Wesentlichen Herrn Dr. habil. G. Bruls mit der Anregung zu diesen Experimenten, den vielen Diskussionen und der Betreuung meiner Arbeit, sowie Herrn A.V. Goltsev für die theoretischen Berechnungen und seinen geduldigen Erläuterungen, auch wenn ich seine Vorliebe zum Jazz nicht teilen mag.

Herrn I. Kouroudis sei gedankt für die Einweisungen in sein Messprogramm und des permanenten up-dates, sowie Frau Finsterbusch als Wissensquell.

Außerdem gilt mein Dank allen Mitgliedern des Physikalischen Institutes, neben den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Prof. Dr. Abmus („Die Waltons“), die mir fortwährend bei meiner Pobenpräparation behilflich waren, besonders den Herren B. Junk, der auch immer motivierend auf mich einwirkte („Jetzt aber auf auf“), H. Hassenpflug, A. Czyzewsky, B. Baas, S. Rapphahn und F. Isselbacher.

Für das Bereitstellen des Einkristalls danke ich Prof. Dr. Y. Onuki.

Diese Arbeit wurde von der DFG durch den SFB 252 gefördert.

## Lebenslauf

Name	Dirk Wichert
Geburtsdatum	15.01.1968
Geburtsort	Hanau
Familienstand	ledig
Eltern	Martin Wichert und Marlies Wichert, geb. Sowinski
Geschwister	Bruder, Frank Wichert
Staatsangehörigkeit	deutsch

## Schulbesuch

1974-1978	Besuch der Wilhelm Geibel Schule Grundschule in Hanau
1978-1987	Besuch der Otto Hahn Schule Gesamtschule in Hanau
5/1987	Abitur
15.1.68	geboren in Hanau als Sohn von Marlies, geb. Sowinski, und Martin Wichert
1974-1978	Besuch der Wilhelm-Geibel-Grundschule in Hanau
1978-1987	Besuch der Förderstufe und des gymnasialen Zweiges der Otto-Hahn-Schule in Hanau
20.5.1987	Abitur
1.10.1987- 31.12.1988	Wehrdienst
Okt. 1989	Beginn meines Studiums der Fachrichtung Physik-Diplom an der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt
12.05.1995	Abschluß Physik-Diplom Diplomarbeit am Physikalischen Institut der Johann Wolfgang Goethe-Universität unter Betreuung von Prof. Dr. B. Lüthi zum Thema: <i>„Magnetische Phänomene in Systemen Schwerer Fermionen“</i>
1.11.1995	Beginn meines Promotionsstudiums der Fachrichtung Physik am Physikalischen Institut der Johann Wolfgang Goethe-Universität unter Betreuung von PD Dr. G. Bruls