

Institut für Festkörperphysik
Fachrichtung Physik
Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
Technische Universität Dresden

**Untersuchung der magnetischen
Eigenschaften von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$
mittels Neutronenstreuung**

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
Doctor rerum naturalium

vorgelegt von
Enrico Faulhaber
geboren am 5. September 1976 in Dresden

Dresden 2008



1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. M. Loewenhaupt
2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. J. Wosnitza
3. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. T. Brückel

Eingereicht am 21.12.2007

Verteidigt am 22.2.2008

Kurzfassung

1979 wurde mit CeCu_2Si_2 erstmalig ein Schwere-Fermionen-Supraleiter entdeckt. Diese Verbindung, entdeckt von Steglich und Mitarbeitern, befindet sich nahe an einem quantenkritischen Punkt, an dem die magnetische Ordnung gerade unterdrückt wird. Der Abstand zu diesem Punkt kann sowohl durch Druck als auch durch Germaniumsubstitution auf dem Siliziumplatz variiert werden. Dabei treten neben der Supraleitung in CeCu_2Si_2 auch verschiedene magnetische Phasen bei höherem Germaniumgehalt auf. CeCu_2Si_2 ordnet magnetisch unterhalb von $T_N \approx 0.8$ K in einer Spindichtewelle, während das Schwere-Fermionen-System CeCu_2Ge_2 unterhalb von $T_N = 4.1$ K antiferromagnetisch ordnet.

In dieser Arbeit wurde die Substitutionsreihe $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ mittels Neutrorendiffraktion untersucht. Ausgehend von Proben mit hohem Germaniumgehalt von $x = 0.45$, deren magnetische Struktur detailliert untersucht wurde, wurden schrittweise die Eigenschaften von Proben mit kleinerem x erschlossen, um schließlich die (bis dato unbekannt) magnetische Struktur in CeCu_2Si_2 aufzuklären. Weiterhin wurden Untersuchungen zum Wechselspiel zwischen Magnetismus und Supraleitung durchgeführt. Hierzu wurde mit einem selbstentwickelten Aufbau die Wechselfeldsuszeptibilität *simultan* zu den Diffraktionsexperimenten aufgezeichnet. Durch die direkte Korrelation konnte nachgewiesen werden, dass in CeCu_2Si_2 keine mikroskopische Koexistenz von Supraleitung und magnetischer Ordnung vorliegt, sondern mikroskopische Phasenseparation.

Abstract

In 1979 the first heavy-fermion superconductor CeCu_2Si_2 was discovered by Steglich et al. The system is near a quantum critical point (QCP), where the magnetic order is just suppressed. The distance to the QCP can be varied with hydrostatic pressure as well as by germanium substitution on the silicon site. Next to the superconductivity in CeCu_2Si_2 one finds distinct magnetic phases while increasing the germanium content. CeCu_2Si_2 shows a magnetic order of a spin-density-type below $T_N \approx 0.8$ K, whereas the heavy fermion system CeCu_2Ge_2 orders below $T_N = 4.1$ K as an antiferromagnet.

The focus of this thesis is on neutron-diffraction in the system $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$. Starting with a sample with a high germanium content of $x = 0.45$, the magnetic structures are investigated in detail. Following a step-by-step approach, samples with reduced x are investigated subsequently to figure out the properties of pure CeCu_2Si_2 , which were not accessible before. Furthermore, the complex interaction between magnetism and superconductivity is investigated in detail. Using a specially designed setup, the *ac*-susceptibility could be recorded *simultaneously* during the neutron diffraction experiments. Due to the direct correlation between antiferromagnetic signals and diamagnetic features, the microscopic coexistence of superconductivity and magnetic order can be ruled out. Instead, a phase separation on the microscopic scale is found.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	3
2	Theoretische Einführung in die Phänomene	5
2.1	Elektronen im Festkörper	5
2.2	Kondo-Effekt, Kondo-Gitter	7
2.3	<i>RKKY</i> -Wechselwirkung, Leitungsbandpolarisation	8
2.4	Schwere Fermionen	10
2.5	Quantenphasenübergänge	12
3	Experimentelle Methoden	17
3.1	Das Streuexperiment	18
3.1.1	Neutronenstreuung	21
3.1.2	Resonante magnetische Röntgenstreuung	23
3.2	Strukturanpassung	26
3.3	Wechselfeldsuszeptibilität	27
3.3.1	Klassischer Aufbau	29
3.3.2	Verbessertes Design	31
3.3.3	Neutronenabschirmung	34
3.4	Proben	35
4	Modellsubstanz $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$	37
4.1	$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$	41
4.1.1	Propagationsvektor (D23)	43
4.1.2	Magnetische Satelliten bei tiefster Temperatur (PANDA)	52
4.1.3	Komplementäre Informationen: XRMS (ID20)	56

4.1.4	Lösung der magnetischen Struktur	64
4.2	Tetrakritischer Punkt bei $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$?	69
4.2.1	$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$	69
4.2.2	$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ (D15)	71
4.2.3	$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ (D23)	77
4.3	Zusammenfassung der Ergebnisse zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$	80
5	CeCu_2Si_2	85
5.1	A-Typ: Nachweis der magnetischen Ordnung	90
5.2	A/S-Typ: Supraleitung innerhalb der A-Phase	94
5.3	A+S: mikroskopische Phasenseparation	102
5.4	S-Typ: Antiferromagnetische Korrelationen	109
5.5	Zusammenfassung der Ergebnisse zu CeCu_2Si_2	111
6	Zusammenfassung und Ausblick	115
	Literaturverzeichnis	119
	Eigene Veröffentlichungen	129

Verwendete Symbole, Abkürzungen und Einheiten

$\vec{a} \cdot \vec{b}$	Skalarprodukt (Punktprodukt) der Vektoren \vec{a} und \vec{b}
$\vec{a} \times \vec{b}$	Kreuzprodukt zwischen den Vektoren \vec{a} und \vec{b}
$\pi - \pi, \pi - \sigma$	Polarisationsänderung während des Streuprozesses (π/σ = parallel/senkrecht zur Streuebene)
$\sigma = 4\pi \cdot b^2$	Streuquerschnitt für Neutronenstreuprozesse
$\sigma(\vec{q}) = 4\pi \cdot r_0^2 \left \int d^3r \rho(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right ^2$	Streuquerschnitt für Photonenstreuung ($\sigma(\vec{q} \rightarrow 0) = Z^2, Z = \text{Kernladungszahl}$)
$r_0 = \frac{e^2}{m_e c^2} = 2.82 \text{ fm}$	‘Thomsonsche Streulänge’ einzelner Elektronen
g_J	Landéfaktor
$s = \frac{\sin \Theta}{\lambda} = \frac{ \vec{q} }{4\pi}$	Streuparameter
$\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$	Basisvektoren der Einheitszelle (im Ortsraum)
$\vec{a}^* = 2\pi \frac{\vec{b} \times \vec{c}}{\vec{a} \cdot (\vec{b} \times \vec{c})}, \vec{b}^*, \vec{c}^*$	Reziproke Basisvektoren der Einheitszelle
\vec{G}	ein Vektor des reziproken Gitters
$\vec{\tau}$	Propagationsvektor im reziproken Raum, charakterisiert die räumliche Modulation (der Magnetisierung)
λ	Wellenlänge $\lambda = \frac{2\pi}{ \vec{k} }$
\vec{k}	Wellenvektor/-impuls (\vec{k}_i im Primärstrahl, \vec{k}_f im gestreuten Strahl)
\vec{q}	Streuvektor $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$
$t = \frac{T - T_c}{T_c}$	reduzierte Temperatur
ϖ	dimensionsloser Abstand vom Phasenübergang, beispielsweise $\varpi = (p - p_c) / p_c$

Abkürzung

SFS Schwere-Fermionen-System

r. l. u. Reziproke Gittereinheiten (reciprocal lattice units)

Größe	Einheiten
Temperatur T	1 K
Energie E	1 meV = $1.602 \cdot 10^{-22}$ J = 11.604 K
Wellenvektor \vec{k} , Streuvektor \vec{q}	1 Å ⁻¹ = 10^{10} m ⁻¹
Länge l	1 Å = 10^{-10} m = 100 pm = 0.1 nm
Streuquerschnitt σ	1 barn = 10^{-24} cm ² = 10^{-28} m ²
Streulänge b	1 fm = 10^{-15} m
Boltzmann-Konstante k_B	$k_B = 1.380662 \cdot 10^{-23}$ J/K = 86.17 μeV/K = (11.6 K/meV) ⁻¹

Wie im Englischen werden Dezimalzahlen mit Punkt zwischen ganzzahligem Anteil und Nachkommastellen geschrieben, z. B. $\pi = 3.1415 \dots$. Des Weiteren wird in den Millerschen Indizes die kristallographische Schreibweise, negative ganze Zahlen durch einen Überstrich zu kennzeichnen, benutzt (also z. B. $-1 = \bar{1}$).

1 Einführung

Supraleitung und magnetische Ordnung sind zwei kollektive Phänomene, denen in der Festkörperphysik mit großem Interesse begegnet wird. Gewöhnlich schließen sich beide Phänomene aus, da im Allgemeinen Magnetfelder paarbrechende Wirkung haben und somit die Cooperpaare zerstören, sodass sich keine Supraleitung ausbilden kann bzw. stark unterdrückt wird (BCS-Theorie). Aufgrund der Antagonie dieser Effekte ([Ginzburg57](#)) sind insbesondere Materialien hoch interessant, die beide Erscheinungen zeigen. In letzter Zeit wurden vermehrt intermetallische Verbindungen entdeckt, in denen Supraleitung dann auftritt, wenn eine magnetische Ordnung mittels eines äußeren Parameters, wie z. B. hydrostatischem Druck, vollständig unterdrückt ist. Diese magnetische Instabilität, an der die magnetische Ordnungstemperatur gerade Null ist und in deren Umgebung teilweise Supraleitung beobachtet wird, nennt man einen Quantenkritischen Punkt.

Diese Situation findet sich beispielsweise im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$. Hier kann man kontinuierlich von dem magnetisch ordnenden CeCu_2Ge_2 ausgehend ($T_N \approx 4.1 \text{ K}$) durch hydrostatischen Druck (bei $p \approx 9 \text{ GPa}$) oder isoelektronische Substitution von Germanium durch Silizium (bei CeCu_2Si_2) die magnetische Ordnung ($T_N \rightarrow 0$) unterdrücken. In der Nähe von $T_N \approx 0$ findet man hier Supraleitung. Kapitel [2.5](#) gibt eine kurze theoretische Einführung der genannten Phänomene.

Die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Supraleitung und Magnetismus erfordert detaillierte Kenntnis der mikroskopischen magnetischen Eigenschaften sowie (der Symmetrie) der beteiligten Ordnungsparameter. Zur Aufklärung magnetischer Strukturen und Anregungen sind Neutronenstreuungsmethoden prädestiniert. Diese sind jedoch nur bedingt geeignet, Supraleitung direkt zu untersuchen. Wechselfeldsuszeptibilität stellt hierfür eine geeignete, etablierte Methode dar. Al-

le benutzten Messmethoden werden in Kapitel 3 soweit vorgestellt, wie es für das Verständnis der späteren Ausführungen in dieser Arbeit nötig ist. Auf einen selbst entwickelten Aufbau zur Optimierung der Suszeptibilitätsmessung wird in Unterkapitel 3.3 eingegangen.

Eigene Neutronenstreuexperimente zur mikroskopischen magnetischen Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ werden in Kapitel 4 ausführlich dargelegt. Dabei werden sowohl der magnetische Propagationsvektor als auch die Intensität magnetischer Überstrukturreflexe illustriert und quantitativ analysiert. Insbesondere erforderte die Aufklärung der komplexen magnetischen Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ die Kombination verschiedener Streumethoden, nämlich Neutronen- und Röntgenbeugung. Auf die Lösung des magnetischen Strukturmodells wird ausführlich eingegangen. Ausgehend davon werden die Messungen an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ mit niedrigem Germaniumgehalt vorgestellt und diskutiert. Diese Messungen sind Grundlagen der Untersuchungen am reinen CeCu_2Si_2 .

Kapitel 5 stellt die Ergebnisse zur Wechselwirkung zwischen Supraleitung und Magnetismus in CeCu_2Si_2 näher vor. Da Neutronen den supraleitenden Zustand nicht direkt detektieren, halfen in-situ Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität während des Neutronenstreuexperiments, eine direkte Korrelation zwischen den supraleitenden und magnetischen Eigenschaften herzustellen. Insbesondere wird die Abhängigkeit der beobachteten Phänomene von einem externen Magnetfeld untersucht. Aufgrund der experimentellen Herausforderungen bei der Untersuchung der magnetischen Struktur in CeCu_2Si_2 wird eine Extrapolation der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ diskutiert.

Die gewonnenen Erkenntnisse und Ergebnisse zu Magnetismus und Supraleitung in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ werden zusammenfassend in Kapitel 6 dargestellt und überblicksartig diskutiert.

2 Theoretische Einführung in die Phänomene

Im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ treten nicht nur klassisches Schwere-Fermionen-Verhalten, sondern auch antiferromagnetische Ordnung und Supraleitung auf. Weiterhin befindet sich CeCu_2Si_2 in der Nähe eines quantenkritischen Punktes ([Gegenwart97](#); [Steglich96a](#); [Gegenwart98](#)), sodass sich eine Vielzahl ungewöhnlicher Phänomene durch Wechselwirkungen dieser Effekte ergibt. In den folgenden Unterkapiteln werden die Eigenschaften der schweren Fermionen sowie des Kondo-Effekts auszugsweise rekapituliert. Auch wird auf einige Auswirkungen eines quantenkritischen Punktes eingegangen. Detailliertere Einführungen sind beispielsweise in den Referenzen ([Jensen91](#); [Kittel99](#); [Mathur98](#); [Nolting86](#); [Rosch99](#); [Stanley99](#); [Vojta01](#); [Zwicknagl02](#); [Kotliar04](#)) zu finden. Für die Theorie der Supraleitung in Schwere-Fermionen-Systemen wird auf die Darlegungen in ([Thalmeier04](#)) verwiesen.

2.1 Elektronen im Festkörper

Die Dispersionsrelation für freie Elektronen ($E = \hbar^2 k^2 / 2m$) wird durch Berücksichtigung der Translationsinvarianz im kristallinen Festkörper modifiziert ([Kittel99](#)). Zum einen ist der Impuls nur noch *modulo* \vec{G} definiert. Das bedeutet, dass Elektronenimpulse lediglich bis auf ganzzahlige Vielfache der Basisvektoren des reziproken Raumes eindeutig sind. Diese Eigenschaft führt beispielsweise zu den so genannten ‘Umklapp-Prozessen’ und damit in Metallen zu einer Abnahme der elektrischen Leitfähigkeit mit steigender Temperatur. Andererseits bilden sich Energiebereiche aus, in denen sich Elektronen aufhalten können

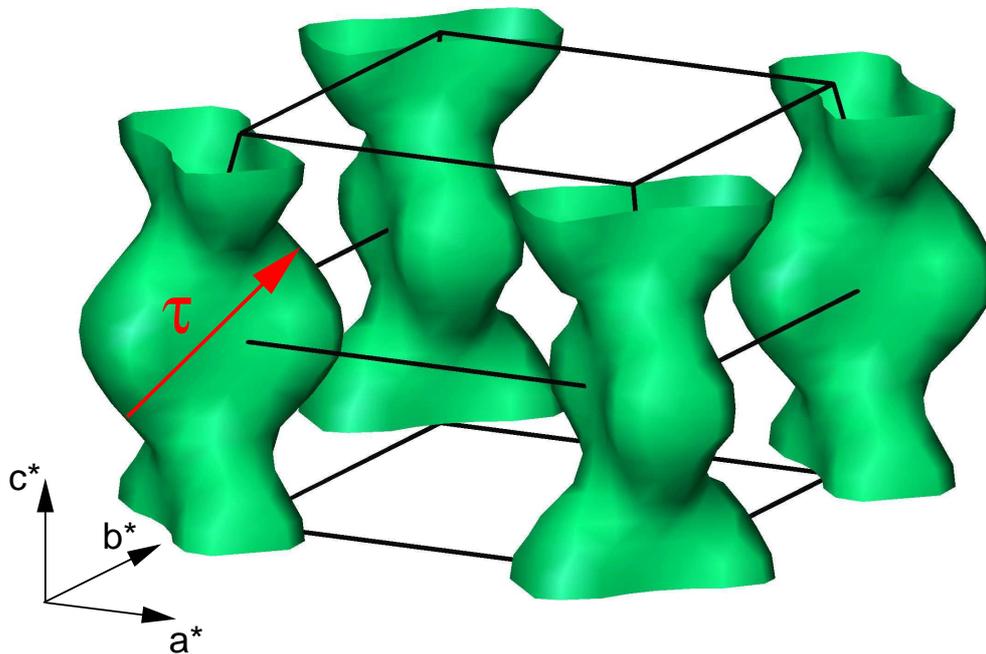


Abbildung 2.1: Teil der Fermi-Fläche der schweren Quasiteilchen in CeCu_2Si_2 mit eingezeichneten Achsen und Nestingvektor $\vec{\tau}$ (Stockert04).

(‘Bänder’) und Energiebereiche, die nicht von Elektronen erreicht werden können (‘Lücken’)¹. Aufgrund des Pauliprinzips können sich nicht alle Elektronen im Grundzustand niedrigster Energie befinden, sondern die Bänder werden (beginnend mit niedrigster Energie) gefüllt. Nach Enrico Fermi wird dieser Zustand des Elektronensystems auch Fermi-Flüssigkeit² genannt. Die höchste Elektronen-Energie im Grundzustand (also bei vernachlässigbarem Einfluss der Temperatur, $T = 0$) wird hierbei auch als Fermi-Energie³ E_F bezeichnet. Betrachtet man im reziproken Raum die Flächen konstanter Elektronen-Energie (d. h. diejenigen Punkte \vec{k} , für die $E(\vec{k})$ konstant ist), so ergeben sich (aufgrund mehrfacher Faltung durch $\vec{k} = \vec{k} \bmod \vec{G}$) üblicherweise sehr bizarr anmutend geformte Flächen. Die Fläche, die durch $E(\vec{k}) = E_F$ definiert wird, nennt man Fermi-Fläche. Existieren nun in einer Fermi-Fläche große parallele Bereiche, die durch denselben reziproken

¹Zum sogenannten Bändermodell, siehe auch (Kittel99).

²Im englischen Sprachraum ist ‘fermi liquid’ verbreitet.

³Die Fermie-Energie kann einige eV betragen, dies entspricht einer Temperatur von ca. 10000 K.

Gittervektor $\vec{\tau}$ getrennt sind, so spricht man von Fermi-Flächen-Nesting oder kurz Fermi-Nesting. Hierbei kann sich eine starke Wechselwirkung zwischen Elektronen mit Impuls $\vec{k} \bmod \vec{G}$ und Elektronen mit Impuls $(\vec{k} + \vec{\tau}) \bmod \vec{G}$ ausbilden, da viele mögliche Wechselwirkungspartner zur Verfügung stehen. Dies führt meist (unterhalb einer charakteristischen Ordnungstemperatur T_N) zur Ausbildung einer magnetischen Ordnung (Spindichtewelle)⁴ mit dem Propagationsvektor $\vec{\tau}$. Da die Bandelektronen (und nicht die Rumpfelektronen) an diesem Prozess beteiligt sind, spricht man auch von delokalisiertem bzw. itinerantem Magnetismus. Bild 2.1 zeigt zur Veranschaulichung einen Teil der Fermifläche von CeCu_2Si_2 mit eingezeichnetem Propagationsvektor $\vec{\tau}$ und Brillouinzone⁵.

2.2 Kondo-Effekt, Kondo-Gitter

Bringt man in ein unmagnetisches Metall wenige magnetische Atome (beispielsweise Eisenatome in eine Goldmatrix) und untersucht den elektrischen Widerstand, so beobachtet man mit sinkender Temperatur einen Anstieg des elektrischen Widerstandes bezogen auf das Verhalten des reinen Metalls. Dieser Effekt tritt schon bei kleinen Konzentrationen des magnetischen Atoms auf und wurde erstmals 1964 von Jun Kondo erklärt und später nach ihm benannt (Kondo64).

Bei hohen Temperaturen wird der elektrische Widerstand des Materials durch Streuung der Elektronen an den Phononen, den Gitterschwingungen der Atomkerne, dominiert. Senkt man nun die Temperatur, so nimmt dieser Effekt ab. Unterhalb einer charakteristischen Temperatur ist die Streuung der Elektronen an den magnetischen Atomen aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung jedoch stärker. Die Leitungselektronen bilden dabei eine Art Wolke um das magnetische Atom und schirmen das magnetische Moment ab. Die Abschirmung hat zur Folge, dass bei tiefen Temperaturen das ganze makroskopische System unmagnetisch wird. Diese Abschirm-Elektronen stehen aber nicht mehr für den Ladungstransport zur Verfügung und verstärken durch ihre Polarisation die Streurate der Elektronen und

⁴In einigen Systemen bildet sich stattdessen eine unmagnetische Ladungsdichtewelle.

⁵Die Brillouinzone ist die erste Wigner-Seitz-Zelle des reziproken Gitters und bildet eine Elementarzelle des reziproken Gitters.

erhöhen hierdurch den elektrischen Widerstand. Somit steigt der elektrische Widerstand, nach Durchlaufen eines Minimums⁶, wieder an. Es ergibt sich eine logarithmische Temperaturabhängigkeit, welche oft als Kriterium für die Festlegung der ‘Kondo-Temperatur’ verwendet wird⁷.

Die Energie, die benötigt wird, um den durch die Abschirmung gebildeten Singlet-Grundzustand aufzubrechen, wird auch als Kondo-Energie bezeichnet:

$$E_K \sim \frac{1}{N(E_F)} e^{-\frac{1}{JN(E_F)}} \quad , \quad (2.1)$$

mit der Spin-Spin-Kopplungsstärke J zwischen einem magnetischen Moment und einem Leitungselektronen-Spin sowie der Zustandsdichte an der Fermienergie $N(E_F)$.

Betrachtet man jetzt Kondo-Systeme mit immer kleinerem Abstand zwischen den magnetischen Atomen (beispielsweise durch Erhöhen der Konzentration der magnetischen Streuzentren), so kommt es zur Überlappung der ‘Abschirmwolken’ der einzelnen magnetischen Atome. In einem solchen Kondo-Gitter werden unterhalb einer bestimmten Temperatur, oftmals als Kohärenz-Temperatur bezeichnet, die magnetischen Streuzentren in die Wellenfunktion der Leitungselektronen integriert. Hierdurch sinkt die Streurrate ab, sodass unterhalb der Kohärenz-Temperatur der elektrische Widerstand sinkt und somit ein ausgeprägtes Maximum auftritt. Das Material verhält sich dann wieder wie eine Fermi-Flüssigkeit (mit renormierten Parametern). Eine Einführung in die (komplexe) Theorie ist beispielsweise in Referenz (Coleman06) zu finden.

2.3 RKKY-Wechselwirkung, Leitungsbandpolarisation

Die nach ihren Entdeckern Rudermann, Kittel, Kasuya und Yosida benannte RKKY-Wechselwirkung (Ruderman54; Kasuya56) beschreibt die Wechselwirkung

⁶oftmals Kondo-Minimum genannt

⁷Leider konnte man sich bisher nicht auf *eine* Definition einigen. Manchmal werden auch die Temperatur des Minimums oder (bei Kondo-Gittern) des Maximums des elektrischen Widerstandes als Kondo-Temperatur bezeichnet.

zweier lokalisierter magnetischer Atome über die Polarisation der Leitungselektronen.

Aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung J werden die Leitungselektronen in der Nähe eines magnetischen Momentes (Spins) I_i polarisiert. Dies führt zu einer Überabschirmung des lokalen Momentes und zu einer gedämpften, oszillierenden Leitungsbandpolarisation (siehe auch Abbildung 2.2). Ein zweites magnetisches Moment I_j in einem bestimmten Abstand \vec{r}_{ij} wird sich bevorzugt entgegen der dort vorherrschenden Polarisation orientieren (Nolting86, Kapitel 5.3). Als Kopplungskonstante ergibt sich für den isotropen Fall:

$$J_{RKKY}(r_{ij}) = \frac{J^2 k_F^6}{E_F} \frac{\hbar^2 V^2}{N^2 E_F^2 (2\pi)^3} F(2k_F r_{ij}) \quad , \quad (2.2)$$

$$\text{mit} \quad F(x) = \frac{\sin(x) - x \cos(x)}{x^4} \quad , \quad (2.3)$$

mit dem Fermi-Impuls $k_F = \sqrt{2mE_F/\hbar^2}$, der Anzahldicke der magnetischen Momente N/V sowie der Zustandsdicke an der Fermi-Energie $N(E_F)$. Somit kommt es, abhängig vom Abstand der magnetischen Atome, entweder zu einer ferroma-

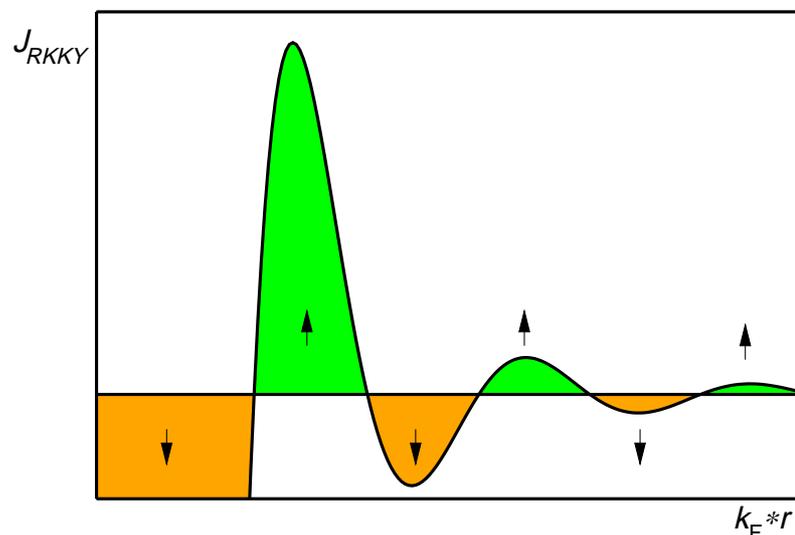


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der RKKY-Kopplungskonstante über dem Abstand der magnetischen Atome. Die resultierende Spinpolarisation ist durch Pfeile angedeutet.

netischen oder antiferromagnetischen Kopplung J_{RKKY} der beiden betrachteten Momente (siehe schematisches Bild 2.2 auf Seite 9)⁸. Im Gegensatz zum Kondo-Effekt handelt es sich hier um einen Effekt zweiter Ordnung mit hoher Reichweite. Diese Wechselwirkung führt zu einer magnetischen Ordnung unterhalb einer kritischen Temperatur⁹. Der Energiegewinn durch die Kopplung beträgt:

$$E_{RKKY} = k_B T_{RKKY} \sim J^2 N(E_F) \quad . \quad (2.4)$$

Insbesondere bei Atomen der Seltenen Erden¹⁰, im Weiteren 4f-Elemente genannt, wird die $RKKY$ -Kopplung oft beobachtet. Aufgrund der Delokalisierung der unvollständig gefüllten 4f-Schale hybridisieren diese 4f-Elektronen mit den Leitungselektronen (großes J) und zeigen somit einen starken $RKKY$ -Effekt.

Die Kopplungskonstante J kann wie beim Kondo-Effekt durch äußeren Druck oder chemische Substitution beeinflusst werden. Doniach untersuchte als erster theoretisch, was passiert, wenn in einem System sowohl Kondo-Effekt als auch $RKKY$ -Wechselwirkung präsent sind (Doniach77). Ist der Energiegewinn durch Bildung eines magnetischen Zustandes (über $RKKY$) größer als der Energiegewinn durch Ausbildung eines Singlet-Grundzustandes (durch Kondo), so ordnet das System magnetisch. Bild 2.3 auf Seite 11 vergleicht schematisch die Energieskalen von Kondo- und $RKKY$ -Wechselwirkung sowie die Ordnungstemperatur der resultierenden magnetischen Phase T_M in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J . Ist der Phasenübergang bei T_M zweiter Art, kann bei $T_K \approx T_{RKKY}$, d. h. bei $T_M \approx 0$, ein quantenkritischer Punkt (QKP) auftreten.

2.4 Schwere Fermionen

In den vorherigen Unterkapiteln wurden verschiedene Phänomene des Elektronensystems vorgestellt. Die kollektiven Abschirm- beziehungsweise Polarisations-Effekte der Leitungselektronen lassen sich durch Einführung von Quasiteilchen beschreiben. Dabei sind die Eigenschaften der Quasiteilchen nicht mehr an die

⁸Es kann allerdings auch der (seltene) Fall $J_{RKKY} = 0$ eintreten, sodass die Atome nicht miteinander koppeln.

⁹ T_C (T_N) bei (anti)ferromagnetischer Ordnung

¹⁰Lanthanoide: Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu

Eigenschaften der Konstituenten gebunden. Durch den Vergleich der typischerweise sehr flachen Dispersion der Quasiteilchen mit der Energie-Impuls-Beziehung eines freien Elektrons bzw. einer Fermi-Flüssigkeit erhält man ein Maß für die effektive Masse m^* . Diese Masse m^* korreliert jedoch nur grob mit der Anzahl der Konstituenten und beträgt häufig ein Vielfaches der Masse freier Elektronen m_e , $m^* = 100 - 1000 m_e$. Aufgrund ihrer hohen effektiven Masse, und da diese Quasiteilchen die Fermi-Dirac-Statistik erfüllen, werden sie als ein Schwere-Fermionen bezeichnet¹¹. Treten in einer (chemischen) Verbindung schwere Fermionen auf, so

¹¹im englischen Sprachgebrauch als ‘Heavy Fermions’ bezeichnet.

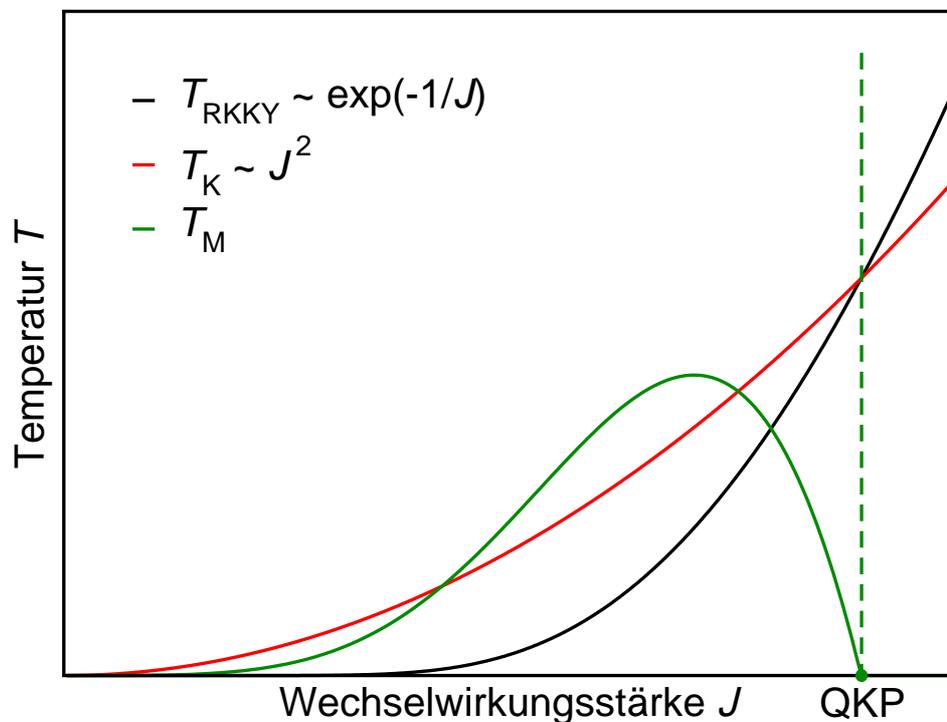


Abbildung 2.3: “Doniach-Diagramm”. Aufgetragen sind die Stärken von Kondo- und *RKKY*- Wechselwirkung über der Kopplungskonstante J sowie die Ordnungstemperatur der resultierenden magnetischen Phase T_{M} . T_{M} ist stark vergrößert dargestellt, normalerweise gilt $T_{\text{K}} \gg T_{\text{M}}$. Bei $T_{\text{K}} = T_{\text{RKKY}}$ kann ein quantenkritischer Punkt (QKP) auftreten.

spricht man von einem Schwer-Fermion-System (SFS).

Aufgrund ihrer Masse tragen die Quasiteilchen einen erheblichen Beitrag zur spezifischen Wärme C/T bei. Diesen Effekt macht man sich bei der Suche und Klassifikation von SFS zunutze. Extrapoliert man die spezifische Wärme C/T für $T \rightarrow 0$, so erhält man den Sommerfeld-Koeffizienten $\gamma = \lim_{T \rightarrow 0} C/T \sim N(E_F) \sim m^*$. Die Beiträge der Phononen sind für $T \rightarrow 0$ vernachlässigbar, somit ist γ ein verwertbares Maß für die effektive Masse m^* . Metalle haben typische Werte von $\gamma_{\text{Cu}} \approx 0.7 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$, von schweren Fermionen spricht man meist ab $\gamma_{\text{SFS}} \approx 400 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$, es wurden jedoch schon SFS mit weit über $\gamma = 1000 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ gefunden. Da die Quasiteilchen nur unterhalb einer bestimmten Korrelationstemperatur existieren, ergibt sich für hohe Temperaturen wieder das erwartete Verhalten ohne Quasiteilchen. Eine ausführlichere Einführung findet sich beispielsweise in Referenz (Coleman06).

2.5 Quantenphasenübergänge

In Abhängigkeit von äußeren Parametern ϖ ¹² kann Materie in verschiedenen Zuständen (Phasen) vorliegen. Dabei wird immer diejenige Phase den Grundzustand bilden, welche bei den gegebenen Parametern ϖ die niedrigste freie Energie (auch Gibbsche freie Energie genannt) $G = U - T S$ aufweist. Darin enthalten sind sowohl die innere Energie $U(p, V, x, \dots)$, als auch die Entropie S der entsprechenden Phase sowie die Temperatur T als Parameter. Durch die Abhängigkeit von der Temperatur kann keine Phase im gesamten Temperaturbereich stabil sein, da es immer eine Temperatur gibt, bei der eine andere Phase die gleiche freie Energie aufweist ($U_1 - T S_1 = U_2 - T S_2$). Weisen für bestimmte Parametersätze ϖ_c zwei verschiedene Phasen dieselbe freie Energie auf, sind also im Gleichgewicht, so spricht man von einem Phasenübergang. Hierbei ist zu beachten, dass es prinzipiell keinen Einfluss hat, welcher Parameter variiert wird, um den Phasenübergang zu durchlaufen, d. h. den Grundzustand von einer Phase zu einer anderen zu verändern. In der Literatur werden leicht verschiedene Definitionen der Art eines Phasenüberganges verwendet. Im Folgenden soll ein Phasenübergang zweiter Art so verstanden

¹²gemeint sind hier Zustandsgrößen wie z. B. Druck p , Temperatur T , Zusammensetzung x etc.

tisch geordneten und einem ungeordneten Zustand (Vojta01).

Folgt man dem mit (1) markierten Pfad, so findet man für hohe Temperaturen das thermisch ungeordnete Gebiet. Mit sinkender Temperatur nähert man sich dem (klassischen) Phasenübergang, d. h. $\Delta G = |G_2 - G_1| \approx 0$. In der Nähe dieses Phasenübergangs existieren Gebiete beider Phasen, solange die Energiedifferenz ΔG durch das thermische Spektrum geliefert werden kann. Diese Gebiete haben keine festen Ausmaße, sind jedoch immer kleiner als eine maximale Länge, die Korrelationslänge ξ . Betrachtet man nun einen Ausschnitt mit einer Größe $l < \xi$, so findet man, unabhängig von der Wahl von l , Selbstähnlichkeit, d. h. auf Längenskalen kleiner als ξ sieht das System immer statistisch gleich aus. Aufgrund der Natur des thermischen Spektrums sind diese Phasengebiete nicht statisch, sondern fluktuieren, d. h. sowohl Größe als auch Position verändern sich mit der Zeit. Hierbei findet man auch eine charakteristische Zeitskala, die Korrelationszeit τ_c . Betrachtet man die Korrelationslänge in der Nähe des Phasenüberganges ($T \approx T_c$ bzw. $t = (T - T_c)/T_c \approx 0$), so findet man ein Potenzgesetz $\xi \sim |t|^{-\nu}$ mit einer Divergenz am Phasenübergang, wie man es für klassisch kritische Phasenübergänge erwartet (siehe z. B. Referenz (Wilson75))¹⁴. Auch die Korrelationszeit zeigt ein Potenzverhalten: $\tau_c \sim \xi^z \sim |t|^{-\nu z}$. Der dynamische kritische Exponent z beschreibt hierbei die Kopplung der zeitlichen und räumlichen Fluktuationen. Man kann sich die Auswirkung von z so vorstellen, dass dem System weitere ‘zeitliche’ Dimensionen zur Verfügung stehen, in dem die Fluktuationen sich ausbreiten können. Aufgrund der divergierenden Korrelationslänge bzw. -zeit und der Selbstähnlichkeit des Systems sind am Phasenübergang die mikroskopischen Details des Systems irrelevant und man benötigt zur Beschreibung des Systems im Wesentlichen nur die effektive Dimensionalität des Systems $d_{\text{eff}} = d + z$ und der Fluktuationen. Aufgrund dieser Eigenschaft lassen sich alle Phasenübergänge letztlich wenigen so genannten Universalitätsklassen zuordnen (Stanley99).

Unterhalb der Ordnungstemperatur ist das System geordnet, bei $T \ll T_c$ treten auch keine Fluktuationen mehr auf. Erhöht man jetzt ϖ , betrachtet also den

¹⁴ Andere physikalische Eigenschaften zeigen ebenfalls ein Potenzverhalten (mit unterschiedlichen Exponenten). Darauf soll hier jedoch nicht weiter eingegangen werden.

mit (2) markierten Weg ($T > 0$) in Bild 2.4 auf Seite 13, so kann man in der Nähe des QKP Quantenfluktuationen beobachten. Diese haben eine charakteristische Energieskala $\hbar\omega_c \sim \tau_c^{-1}$ und dominieren das Verhalten solange $\hbar\omega_c > k_B T$. Bei Annäherung an den QKP (also für $\varpi \approx \varpi_c$) skaliert die Energie der Quantenfluktuationen wie $\hbar\omega_c \sim T^{\nu_z}$. Direkt am Quantenphasenübergang dominieren also die quantenkritischen Fluktuationen¹⁵. Für $\varpi \gg \varpi_c$ schließlich findet man ein quantenmechanisch ungeordnetes System vor. Wenn der Phasenübergang durch Variation von ϖ bei $T = 0$ durchlaufen wird, so treten keine thermischen Fluktuationen auf. Der Phasenübergang bei $T = 0$ vom geordneten zum ungeordneten Regime wird also lediglich durch die Quantenfluktuationen getrieben, woher der Quantenphasenübergang seinen Namen hat.

Senkt man jetzt für $\varpi \approx \varpi_c$ die Temperatur ab, so befindet man sich unterhalb einer kritischen Temperatur (deren Energie die maximale Energie der Quantenfluktuationen ist) im Bereich $\hbar\omega_c > k_B T$ der (per Konvention) ‘quantenkritisch’ genannt wird. In Abhängigkeit von der Temperatur ist der Existenzbereich dieses Gebietes (in ϖ) durch $\hbar\omega_c \sim |t|^{\nu_z} \approx k_B T$ vorgegeben und wird umso kleiner, je niedriger die Temperatur ist. Bei genügend kleiner Temperatur kann dieser Bereich so klein werden, dass er experimentell nicht mehr zugänglich ist. Für $T \rightarrow 0$ schliesslich erreicht man den durch Quantenfluktuationen dominierten Bereich nur bei $\varpi = \varpi_c$, d. h. am quantenkritischen Punkt (QKP). In diesem Bereich, in dem die Quantenfluktuationen dominieren, zeigen viele Messgrößen ein anderes Verhalten, beispielsweise zeigt der elektrische Widerstand oft eine Abweichung von $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$ mit einem anderen Exponenten. Über diese Anomalien ist der QKP indirekt auch bei $T > 0$ nachweisbar.

Eine ausführlichere theoretische Beschreibung erfolgt im Rahmen der Renormierungsgruppentheorie, deren Ausgangspunkte Skaleninvarianz, Universalität und Selbstähnlichkeit sind. Eine Einführung zu kritischen Phänomenen ist beispielsweise in (Stanley99) und Referenzen darin zu finden.

Betrachtet man nun einen Phasenübergang von einem magnetisch geordneten zu einem paramagnetischen Grundzustand, wie er z. B. im Doniach-Diagramm

¹⁵ $\hbar\omega_c \sim T^{\nu_z} > T$, da $\nu_z > 1$.

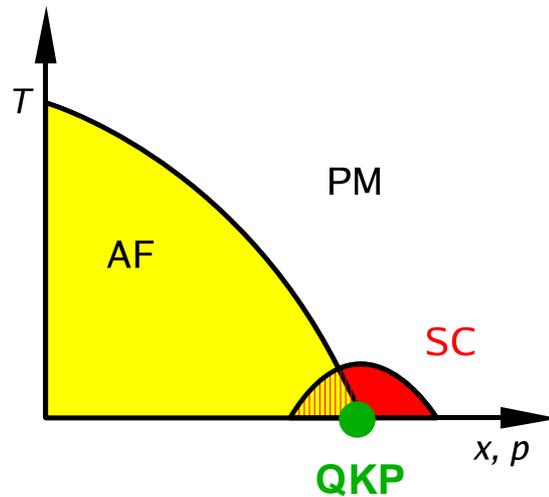


Abbildung 2.5: Schematisches Phasendiagramm mit einem quantenkritischen Punkt (QKP). Markiert sind der antiferromagnetische (AF), der paramagnetische (PM) und der (möglicherweise) supraleitende (SC) Bereich.

auftritt, so ergibt sich ein Bild ähnlich 2.5. Links unterhalb T_N befindet sich das System im magnetisch geordneten Zustand. Auf der rechten Seite findet sich der magnetisch ungeordnete Zustand. Dazwischen befindet sich der Quantenkritische Punkt bei x_c . Die nur in der Nähe von x_c auftretenden Quantenfluktuationen können nun wiederum andere Wechselwirkungen im System verstärken¹⁶. So wird zum Beispiel in einigen Schwere-Fermionen-Systemen in der Nähe des QKP Supraleitung beobachtet (Mathur98; Löhneysen07).

¹⁶ Falls mindestens drei Wechselwirkungen auftreten, von denen sich die zwei stärksten fast kompensieren, kann die dritte (meist sehr viel schwächere) Wechselwirkung das Verhalten in der Nähe des QKP dominieren.

3 Experimentelle Methoden

Physikern stehen eine Reihe von experimentellen Methoden zur Verfügung, um Untersuchungen festkörperphysikalischer Phänomene durchzuführen. Je nach Fragestellung erweisen sich bestimmte Methoden als besonders geeignet. Prinzipiell kann man zwischen mikroskopischen und makroskopischen Methoden unterscheiden. Zu den *makroskopischen* Methoden gehören beispielsweise Messungen der spezifischen Wärmekapazität, der thermischen Ausdehnung oder der magnetischen Suszeptibilität sowie die Bestimmung von Transportgrößen (elektrischer Widerstand, thermische Leitfähigkeit,...). Diese Methoden mitteln immer über große Teile der Probe. Im Gegensatz dazu konzentrieren sich *mikroskopische* Messmethoden auf die Bestimmung von physikalischen Eigenschaften auf atomarer Skala. Beispiele hierfür sind Rastermethoden (Rasterelektronenmikroskopie/-Spektroskopie), NMR, NEXAFS¹ sowie diverse Streumethoden. Idealerweise kombiniert man mikroskopische und makroskopische Messmethoden, um sowohl kleine Strukturen als auch gemittelte Eigenschaften bestimmen und vergleichen zu können.

In dieser Arbeit wurden hauptsächlich Streumethoden mit Messungen der magnetischen (Wechselfeld-) Suszeptibilität kombiniert. In den folgenden Unterkapiteln werden die einzelnen Methoden näher vorgestellt. Der Fokus liegt dabei auf der Rekapitulierung des für die gewonnenen Erkenntnisse erforderlichen Verständnisses.

Im untersuchten System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ wurden interessante magnetische Eigenschaften gefunden. Die mikroskopischen Untersuchungsmethoden sind auf Magnetismus unterschiedlich sensitiv und nicht alle erlauben die impulsabhängige Bestimmung magnetischer Eigenschaften, wie z. B. den Nachweis antiferromagne-

¹“Near Edge X-ray Absorption Fine Structure“-Spektroskopie

tischer Ordnung. Daher fiel die Wahl auf Neutronenstreuung (siehe Kapitel 3.1.1 ab Seite 21) zur Untersuchung der mikroskopischen magnetischen Eigenschaften. Für eine Probe wurden die Daten durch eine Untersuchung mittels resonanter magnetischer Röntgenstreuung (siehe Kapitel 3.1.2 ab Seite 23) ergänzt. Die in den untersuchten CeCu_2Si_2 Proben gefundene Supraleitung wurde größtenteils per Wechselfeldsuszeptibilität (siehe Kapitel 3.3 ab Seite 27) während der Streuexperimente in-situ untersucht.

3.1 Das Streuexperiment

In diesem Kapitel sollen die für das Verständnis der Arbeit relevanten Fakten zusammengetragen werden. Ausführlichere Ausarbeitungen dazu sind beispielsweise in den Referenzen ([Anderson06](#); [Lovesey84](#); [Squires78](#)) zu finden.

Abbildung 3.1 zeigt den schematischen Aufbau eines Diffraktometers. Der Aufbau ist für alle Strahlarten (Neutronen, Photonen, ...) ähnlich. Aus dem von einer Quelle erzeugten polychromatischen Strahl wird mittels eines Monochromators ein Strahl mit einer festen Wellenlänge (bzw. Energie) gewählt. Als Monochromatoren werden sehr oft Einkristalle unter Ausnutzung der Bragg'schen Streubedingung oder Geschwindigkeitsselektoren ('Chopper') verwendet. Nach Durchlauf diverser Strahlkorrektoren² (nicht dargestellt) trifft der Strahl auf die Probe. Die unter einem Winkel 2Θ gestreute Intensität wird mit einem Detektor eingefangen, der meist um die Probe bewegt werden kann. Es gibt jedoch auch Multidetektorinstrumente, bei denen an verschiedenen 2Θ -Positionen Detektoren angebracht sind. Dies erlaubt eine simultane Erfassung der Streuung für die gewählten Streuwinkel³. Spektrometer haben im Unterschied zu Diffraktometern zwischen Probe und Detektor noch einen Energieanalysator, um den Energieübertrag zwischen Strahl und Probe charakterisieren zu können. Dieser Analysator basiert (wie auch der Monochromator) meist auf der Bragg'schen Streuung an einem Kristall. Die Probenrotation ω wird für kristalline Proben benötigt, um die gewünschte Gittere-

²Linsen, Blenden, Spiegel, Polfilter, Leitfelder...

³Aufgrund ihrer gebogenen Form werden diese Multidetektoren oftmals "Bananendetektoren" genannt.

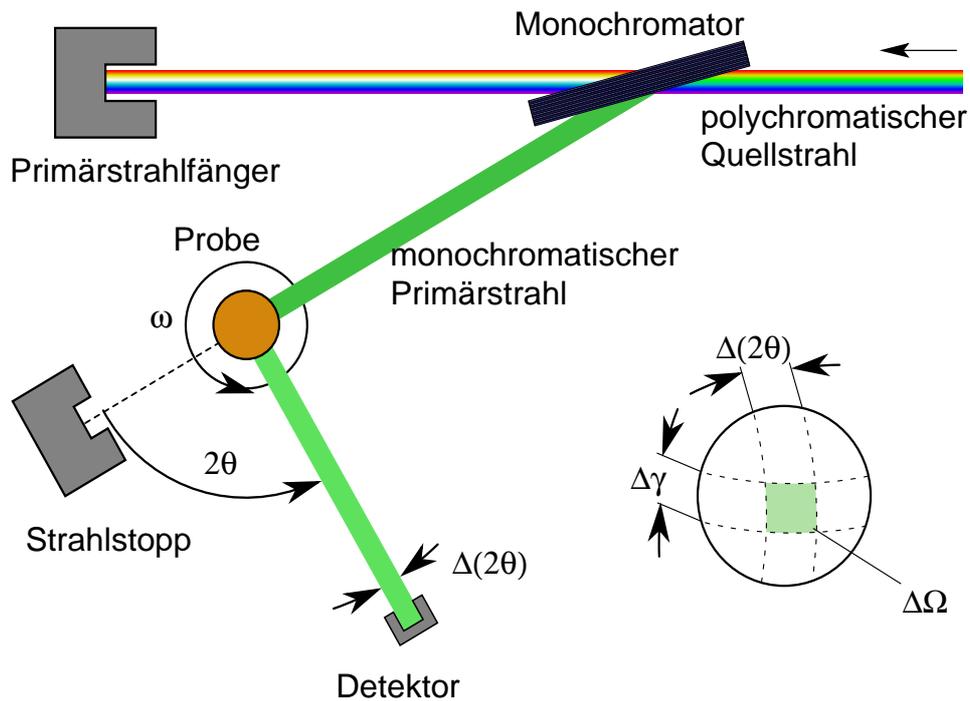


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines Diffraktometers. Aus dem polychromatischen Quellstrahl wird mittels eines Monochromators ein monochromatischer Primärstrahl gewonnen. Die Intensität des an der Probe gestreuten Strahles wird im Detektor ermittelt. Der Streuwinkel 2θ und die Probendrehung ω sind mit Pfeilen markiert. Der Erhebungswinkel γ charakterisiert die Detektorposition oberhalb bzw. unterhalb der dargestellten Streuebene. Das Raumwinkelelement des Detektors $\Delta\Omega \sim \Delta\gamma\Delta(2\Theta)$ ist ebenfalls skizziert (rechts im Bild).

bene für die Bragg'sche Beugung auswählen zu können. Die Probe selbst ist meist innerhalb eines speziellen Kryostaten angebracht. Dadurch können Experimente auch bei extremen Bedingungen (hohe Magnetfelder und tiefe Temperaturen) ausgeführt werden. Normiert man die Rate, mit der Teilchen in das Raumwinkelelement $d\Omega$ gestreut werden, mit der Rate, mit der Teilchen auf die Probe treffen, so erhält man den einfach differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma/d\Omega$. Der im Raumwinkel $d\Omega$ befindliche Detektor registriert eine dem differentiellen Wirkungsquer-

schnitt proportionale Zählrate bzw. Intensität I . Veränderliche Primärintensitäten werden durch eine Normierung der Streuintensität auf einen Primärstrahlmonitor berücksichtigt.

Zum Berechnen der Intensitäten ist es vorteilhaft, ein (experimentell relevantes) Koordinatensystem zu definieren:

$$\vec{e}_i = \vec{k}_i / |\vec{k}_i| \quad (3.1)$$

$$\vec{e}_f = \vec{k}_f / |\vec{k}_f| \quad (3.2)$$

$$\vec{e}_q = \vec{e}_x = (\vec{e}_f - \vec{e}_i) / (2 \sin \Theta) \quad (3.3)$$

$$\vec{e}_{\parallel} = \vec{e}_y = (\vec{e}_f + \vec{e}_i) / (2 \cos \Theta) \quad (3.4)$$

$$\vec{e}_{\perp} = \vec{e}_z = -(\vec{e}_f \times \vec{e}_i) / \sin \Theta \quad (3.5)$$

$$\vec{e}_{\sigma}^i = \vec{e}_{\sigma}^f = (0, 0, 1) = \vec{e}_z \quad (3.6)$$

$$\vec{e}_{\pi}^i = \vec{e}_x \cos \Theta + \vec{e}_y \sin \Theta \quad (3.7)$$

$$\vec{e}_{\pi}^f = \vec{e}_x \cos \Theta - \vec{e}_y \sin \Theta \quad (3.8)$$

$$\vec{e}_a = \sqrt{1/2}(-\sin \omega \vec{e}_x + \cos \omega \vec{e}_y - \vec{e}_z) \quad (3.9)$$

$$\vec{e}_b = \sqrt{1/2}(-\sin \omega \vec{e}_x + \cos \omega \vec{e}_y + \vec{e}_z) \quad (3.10)$$

$$\vec{e}_c = \cos \omega \vec{e}_x + \sin \omega \vec{e}_y \quad (3.11)$$

Hierbei liegt der Streuwinkel 2Θ zwischen \vec{k}_f und \vec{k}_i . Die Einheitsvektoren \vec{e}_i und \vec{e}_f liegen entlang des Primär- bzw. gestreuten Strahles. Die Vektoren \vec{e}_x und \vec{e}_y liegen senkrecht auf bzw. in der Netzebene und in der Streuebene, welche durch \vec{e}_i und \vec{e}_f aufgespannt wird. \vec{e}_z steht senkrecht auf der Streuebene. Der Impulsübertrag $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ während des Streuprozesses erfolgt in Richtung \vec{e}_q . Die Polarisationen \vec{e} sind für die beiden Richtungen senkrecht und parallel (σ und π) und vor bzw. nach dem Streuprozess (Indizes i und f) angegeben. Die normierten Einheitsvektoren des Kristallgitters der Probe \vec{e}_a , \vec{e}_b und \vec{e}_c sind für eine [001]-[110] Streuebene angegeben (mit Rockingwinkel ω). Der allgemeine Fall ist in Referenz (Lovesey96) angegeben⁴.

⁴In der angegebenen Referenz ist der Streuwinkel abweichend mit Θ statt 2Θ bezeichnet!

3.1.1 Neutronenstreuung

Für die Streuung unpolarisierter Neutronen ist der differentielle Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ gegeben durch (Anderson06; Lovesey84; Baruchel94, Kapitel V):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_N + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_M . \quad (3.12)$$

Die Indizes stehen hierbei für Streuung an nuklearen (N) bzw. magnetischen (M) Streuzentren. Des Weiteren wird der Streuprozess durch den Streuvektor \vec{q} charakterisiert, welcher von der Wellenlänge λ , dem Streuwinkel 2Θ und der Orientierung der Probe abhängt:

$$q = |\vec{q}| = \frac{4\pi \sin \Theta}{\lambda} . \quad (3.13)$$

Für Kristalle (Gittervektoren $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$, Basis B) lassen sich beide Terme in Gleichung (3.12) wie folgt ausdrücken:

Für nukleare Streuung ergibt sich:

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_N &= \left| \sum_{j \in B} \sum_{k \in \text{EZ}} b_j \exp(i\vec{q} \cdot (\vec{r}_j + \vec{r}_k)) \right|^2 \\ &= \frac{(2\pi)^3}{V_{\text{EZ}}} \sum_{\vec{G} \in \text{r.G.}} |F_N(\vec{q})|^2 \delta(\vec{q} - \vec{G}) , \end{aligned} \quad (3.14)$$

$$F_N(\vec{q}) = \sum_{j \in B} b_j \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_j) \exp(-W_j) . \quad (3.15)$$

Hierbei bezeichnet b_j die mittlere Streulänge des j -ten Atoms der Basis B an der Stelle \vec{r}_j . Die Abmessungen des Atomkernes sind sehr klein gegenüber den üblicherweise verwendeten Wellenlängen, sodass b_j nicht von q abhängt (isotrope Streuung). Die Elementarzellen EZ werden mittels Index k durchlaufen. \vec{G} bezeichnet einen reziproken Gittervektor (r. G.). Die Summe beinhaltet neben \vec{G} natürlich auch $-\vec{G}$. Das reziproke Gitter wird durch die reziproken Gittervektoren ($\vec{a}^* = 2\pi \frac{\vec{b} \times \vec{c}}{V_{\text{EZ}}}$, $\vec{b}^* = 2\pi \frac{\vec{c} \times \vec{a}}{V_{\text{EZ}}}$, $\vec{c}^* = 2\pi \frac{\vec{a} \times \vec{b}}{V_{\text{EZ}}}$)⁵ aufgespannt. Der nukleare Strukturfaktor beinhaltet auch den Debye-Waller Faktor $\exp(-W_j)$, welcher die temperaturabhängige Schwingungsamplitude der Atome um ihre Ruheposition beschreibt.

⁵In der Kristallographie wird üblicherweise eine andere Konvention verwendet: $\vec{a}^* = \frac{\vec{b} \times \vec{c}}{V_{\text{EZ}}}$, $\vec{b}^* = \frac{\vec{c} \times \vec{a}}{V_{\text{EZ}}}$, $\vec{c}^* = \frac{\vec{a} \times \vec{b}}{V_{\text{EZ}}}$

Aufgrund des Faktors $\delta(\vec{q} - \vec{G})$ in Gleichung (3.14) erhält man Reflexe an den Positionen $\vec{q} = \vec{G}$ des reziproken Gitters mit $F_N(\vec{G})$ als Strukturfaktor.

Um den Ausdruck für $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_M$ auszuschreiben, muss zunächst einmal die Magnetisierung $\vec{m}(\vec{r})$ an den Orten \vec{r}_j der magnetischen Atome modelliert werden:

$$\vec{m}(\vec{r}) = \left(\sum_{j \in B_M} \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) \right) \cdot \left(\sum_{\vec{\tau}} \vec{m}(\vec{\tau}) \exp(-i\vec{\tau} \cdot \vec{r}) \right) \quad , \quad (3.16)$$

mit $\vec{m}(-\vec{\tau}) = \vec{m}^*(\vec{\tau})$.

Hier wurde von der Fourierdarstellung Gebrauch gemacht. Der erste Term beschränkt die Magnetisierung auf die magnetischen Atome in der Basis B_M , die zweite Summe läuft über alle Propagationsvektoren $\vec{\tau}$, für die $\vec{m}(\vec{\tau}) \neq 0$ gilt. Da $\vec{m}(\vec{r})$ reellwertig ist, muss auch $\vec{m}(-\vec{\tau}) = \vec{m}^*(\vec{\tau})$ gelten. Die (reziproken) Vektoren $\vec{\tau}$, für die $\vec{m}(\vec{\tau}) \neq 0$ ist, beschreiben eine räumliche Modulation der Magnetisierungsdichte. Damit ergibt sich für den differentiellen magnetischen Wirkungsquerschnitt:

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_M &= \left| \sum_{j \in B_M} \sum_{l \in \text{EZ}} a_{jl}(\vec{q}) \exp(i\vec{q} \cdot (\vec{r}_j + \vec{r}_l)) \right|^2 \\ &= \frac{(2\pi)^3}{V_{\text{EZ}}} \sum_{\vec{G}_M \in \text{m.r.G.}} \sum_{\vec{\tau}} \left| \vec{F}_{M\perp}(\vec{q}, \vec{\tau}) \right|^2 \delta(\vec{q} - \vec{G}_M - \vec{\tau}) \quad , \quad (3.17) \end{aligned}$$

$$\vec{F}_{M\perp}(\vec{q}, \vec{\tau}) = \vec{e}_q \times \vec{F}_M \times \vec{e}_q = \vec{F}_M - \frac{\vec{q} \cdot \vec{F}_M \cdot \vec{q}}{|\vec{q}|^2} \quad , \quad (3.18)$$

$$\vec{F}_M(\vec{q}, \vec{\tau}) = \frac{\gamma r_0}{2} \sum_{j \in B_M} f_j(\vec{q}) \vec{m}(\vec{\tau}) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_j) \exp(-W_j) \quad . \quad (3.19)$$

Ausgenutzt wurde die Darstellung der δ -Funktion als $\delta(\vec{x}) = \sum_{\vec{k}} \exp(i\vec{x} \cdot \vec{k})$. Gleichung (3.19) definiert den magnetischen Strukturfaktor \vec{F}_M , der im Unterschied zu dem nuklearen Strukturfaktor F_N ein Vektor ist. Der Fakt, dass nur die zu \vec{q} senkrechte Komponente der Magnetisierung in den Streuprozess eingeht, wird durch Gleichung (3.18) beschrieben. B_M bezeichnet die magnetische Basis, die Summe über B_M läuft über alle magnetischen Streuzentren der Einheitszelle. Die Summe über \vec{G}_M läuft über alle Punkte des magnetischen reziproken Gitters (m. r. G.), welches nur durch die magnetischen Atome gegeben ist. Oft ist dieses Gitter gleich

dem reziproken Gitter aller Atome. Abweichungen ergeben sich u. a. für den Fall, dass kristallographisch äquivalente Atome nicht magnetisch äquivalent sind (siehe hierzu auch Kapitel 4.1.4 ab Seite 64 sowie Referenz (Frontzek)).

Man erkennt, dass der magnetische Strukturfaktor nur für $\vec{q} = \vec{G}_M \pm \vec{\tau}$ nicht verschwindet, d. h. es treten 'magnetische Satelliten' bei $\vec{G}_M \pm \vec{\tau}$ auf. Durch genaue Bestimmung der Positionen $\vec{G}_M \pm \vec{\tau}$ lassen sich somit oft auch die Propagationsvektoren $\vec{\tau}$ bestimmen. Zum einen lässt sich hierdurch eine antiferromagnetische Ordnung durch das Auftreten von magnetischen Satellitenreflexen nachweisen. Zum anderen ist die Intensitätsberechnung für die Bestimmung der magnetischen Struktur von Nutzen. Hierfür wird jedoch ein Ausdruck für den in Gleichung (3.19) verwendeten magnetischen Atomformfaktor $f_j(\vec{q})$ benötigt. Dieser ist im Wesentlichen die (impulsabhängige) fouriertransformierte Magnetisierungsdichte des Atoms j und ist für verschiedene Atomkonfigurationen in Form von Interpolationskoeffizienten in der Literatur zu finden, beispielsweise in den *International Tables for Crystallography* (Anderson06, Kapitel 4.4.5) teilweise basierend auf den Daten aus (Freeman79). In sphärischer Näherung gilt (Baruchel94):

$$f(\vec{q}) = f(q) = \langle j_0(s) \rangle + \frac{2-g}{g} \langle j_2(s) \rangle, \quad (3.20)$$

$$\text{mit } s = \frac{\sin(\theta)}{\lambda} \equiv \frac{|\vec{q}|}{4\pi},$$

mit dem Landéfaktor g . Die Erwartungswerte der Integrale werden wie folgt interpoliert:

$$\langle j_0(q) \rangle \approx A_0 \exp(-as^2) + B_0 \exp(-bs^2) + C_0 \exp(-cs^2) + D_0 \quad (3.21)$$

$$\langle j_2(q) \rangle \approx (A \exp(-as^2) + B \exp(-bs^2) + C \exp(-cs^2) + D) s^2 \quad (3.22)$$

$$\text{mit } A_0 + B_0 + C_0 + D_0 = 1 \quad . \quad (3.23)$$

3.1.2 Resonante magnetische Röntgenstreuung

Der Streuquerschnitt für nichtresonante Röntgenstreuung ist proportional zu der Anzahl der Elektronen Z eines Atoms. Die magnetische Photonenstreuung ist ein relativistischer Effekt und dadurch einen Faktor $\left(\frac{\hbar\omega}{m_e c^2}\right)^2$ schwächer im Vergleich zu (nichtmagnetischer) Ladungsstreuung. Diese 'magnetische' Intensität ist deshalb

sehr schwach, nichtresonante magnetische Röntgenstreuexperimente erfordern daher einen hohen messtechnischen Aufwand.

Lässt sich mit der Photonenenergie $\hbar\omega$ jedoch gerade ein Dipolübergang anregen, wobei die für Dipolübergänge üblichen Auswahlregeln $\Delta l = \pm 1$ und $\Delta m = \pm 1$ oder 0 gelten, so kommt es zu resonanter Röntgenstreuung. Dabei wird ein Elektron unter Absorption eines Photons auf das höhere Energieniveau angehoben. Der Wirkungsquerschnitt hierfür hängt stark von den beteiligten Wellenfunktionen und deren Polarisation ab. Anschließend kann unter Absorption eines weiteren Photons und Reemission von zwei Photonen (bzw. stimulierte Emission) das Elektron (oder ein anderes aus dem angeregten Niveau) wieder in das Ursprungsniveau zurückspringen. Der Wirkungsquerschnitt für diesen Prozess ist deutlich größer als für nichtresonante magnetische Photonstreuung. Hierdurch entstehen sowohl eine starke Strahlabsorption (verringerte Eindringtiefe) sowie eine (Resonanz-) Überhöhung der gestreuten Intensität um etwa $10^2 - 10^4$, welche den Faktor der relativistischen Effekte teilweise kompensiert.

Um diesen Verstärkungseffekt nutzen zu können, ist jedoch eine bestimmte, elementabhängige Wellenlänge erforderlich. Dies kann beispielsweise dazu genutzt werden, um in einer Substanz mehrere ‘Sorten’ magnetischer Atome unabhängig voneinander zu untersuchen (Pengra94). Der genaue Zusammenhang zwischen den Polarisationen der beteiligten Energieniveaus und der polarisationsabhängigen Streuintensität ist sehr komplex, siehe auch Referenzen (Blume85; Hannon88; Pengra94; Lovesey96). Je nach Atomkonfiguration sind auch Quadrupolübergänge beobachtbar. Diese treten oftmals bei leicht verringerter Photonenenergie $\hbar\omega$ auf und sind somit gut von den Dipolübergängen zu unterscheiden.

Nach Referenz (Pengra94) lässt sich die gestreute Intensität wie folgt darstellen:

$$I \sim \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \left(\frac{e}{m_e c^2} \right)^2 \left| \sum_j \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_j) f_j(\vec{k}_i, \vec{k}_f, \hbar\omega) \right|^2. \quad (3.24)$$

Der Vorfaktor enthält die Elektronenladung e , die Elektronenmasse m_e und die Lichtgeschwindigkeit c . Die Summe \sum_j läuft über alle Atome (Streuzentren) an den Orten \vec{r}_j . Im Gegensatz zur Neutronenstreuung wird hier mit $\hbar\omega$ die Energie der streuenden Teilchen (Photonen) bezeichnet. Die Impulse der einlaufenden und

gestreuten Photonenstrahlen werden mit \vec{k}_i und \vec{k}_f bezeichnet. Wieder ergibt sich der Streuvektor zu $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$. Im Weiteren soll das Augenmerk auf die Auswahlregeln, also die Fälle mit Intensität Null, gelegt werden, daher werden die Vorfaktoren nicht weiter berücksichtigt. Nach Referenz (Blume85) lässt sich f_j im Fall einer resonanten Dipolanregung, bis auf Vorfaktoren, wie folgt darstellen:

$$\begin{aligned}
 f_j^{\text{Dipol}} \sim & \vec{\epsilon}_f \cdot \vec{\epsilon}_i (F_{11} + F_{1-1}) \\
 & -i (\vec{\epsilon}_f \times \vec{\epsilon}_i) \cdot \vec{m}_j (F_{11} - F_{1-1}) \\
 & + (\vec{\epsilon}_f \cdot \vec{m}_j) (\vec{\epsilon}_i \cdot \vec{m}_j) (2F_{10} - F_{11} - F_{1-1}) \quad . \quad (3.25)
 \end{aligned}$$

Hierbei sind $\vec{\epsilon}_i = e_\pi, e_\sigma$ und $\vec{\epsilon}_f = e_\pi, e_\sigma$ die Polarisationen des Primär- bzw. gestreuten Strahles und \vec{m}_j gibt das magnetische Moment am Atom j an. Die Parameter F_{LM} , auf die hier nicht näher eingegangen wird, hängen stark von der Energie der Photonen sowie den konkreten Wellenfunktionen der beteiligten Zustände ab und repräsentieren die Stärke der beitragenden Übergänge (Blume85). Der erste Term in Gleichung (3.25) trägt nur zur Ladungsstreuung an den Positionen \vec{G} bei. Der zweite Term (linear in \vec{m}_j) beschreibt magnetische Streuung (falls $F_{11} \neq F_{1-1}$) und erzeugt Intensität an den Positionen $\vec{G} \pm \vec{\tau}$, ist also für die magnetischen Satelliten verantwortlich. Der dritte Term beinhaltet eine quadratische Abhängigkeit von \vec{m}_j und erzeugt Intensität auf den Positionen \vec{G} und $\vec{G} \pm 2\vec{\tau}$ (für eine einfache Modulation $\vec{m}_j \sim \cos(\vec{\tau} \cdot \vec{r})$ ist $\vec{m}_j^2 \sim \cos^2(\vec{\tau} \cdot \vec{r}) \sim [\cos(0) + \cos(2\vec{\tau} \cdot \vec{r})]$). Im Weiteren soll nur der zweite Term in Gleichung (3.25) (linear in \vec{m}_j) berücksichtigt werden.

Fasst man alle Kombinationen der Polarisationen des elektrischen Feldvektors der Photonen π und σ (parallel und senkrecht zur Streuebene) vor und nach dem Streuprozess zusammen, so lässt sich der zweite Term in Gleichung (3.25) bis auf Vorfaktoren wie folgt darstellen:

$$M_2 = \begin{pmatrix} \sigma - \sigma & \pi - \sigma \\ \sigma - \pi & \pi - \pi \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{k}_i \cdot \vec{m}_j \\ -\vec{k}_f \cdot \vec{m}_j & (\vec{k}_f \times \vec{k}_i) \cdot \vec{m}_j \end{pmatrix} \quad . \quad (3.26)$$

Hier bedeutet beispielsweise $\pi - \sigma$ die Änderung der Polarisation des Photons von ϵ_π (parallel zur Streuebene) durch den Streuprozess in ϵ_σ , also senkrecht zur Streuebene. Man erkennt, dass für $\vec{k}_i \perp \vec{m}_j$ kein Beitrag zur Intensität im $\pi - \sigma$ Streukanal generiert wird. Für $\vec{m}_j \parallel \vec{k}_i$ oder $\vec{m}_j \parallel \vec{k}_f$ ist hingegen der $\pi - \pi$ Streukanal ohne

Intensität. Aufgrund der Summe über j in Gleichung (3.24) ist die Auswertung bei einer nicht kollinearen magnetischen Struktur deutlich schwieriger.

3.2 Strukturanpassung

Die (magnetische) Struktur eines Systems aufzuklären, ist eine komplexe Angelegenheit. Zuerst werden die integralen Intensitäten $I(\vec{q}) \sim LP |f(\vec{q})|^2$ verschiedener reziproker Gitterpunkte (Anzahl: $N_{\text{exp.}}$) mittels Rockingscans⁶ bestimmt (siehe auch Referenz (Baruchel94, Kapitel V)). Anschliessend wird die Fläche unter der Kurve mittels Integration oder durch Gaußfits bestimmt. Diese Daten werden dann aufbereitet, um Einflüsse der Probe, (Absorption, Extinktion, ...) sowie geometrieabhängige Faktoren zu separieren. Auf diese Details wird hier nicht weiter eingegangen. Als Resultat erhält man das Betragsquadrat der Strukturamplitude für jeden untersuchten Reflex. Da die magnetische Strukturamplitude i. A. jedoch eine komplexe Zahl ist, besteht das Hauptproblem darin, die komplexe Phase zu bestimmen, um daraus die Struktur zu rekonstruieren. Man spricht in diesem Zusammenhang auch vom Phasenproblem der Rekonstruktion in der Diffraktion, welches nicht umgangen werden kann. Es kann also nicht einfach ‘eine Struktur ausgerechnet’ werden.

Ein weit verbreiteter und auch hier benutzter Ansatz besteht darin, das Problem unter Anwendung eines Ausschlussverfahrens umzukehren: Man modelliert die (magnetische) Struktur mittels eines Modells mit $N_{\text{th.}}$ Parametern und berechnet die Intensitäten $I_{\text{th.}}(\vec{q}_j)$ der $N_{\text{exp.}}$ experimentell untersuchten Reflexe \vec{q}_j . Als Güte des Modells wird oft die normierte Summe über die Abweichungsquadrate zwischen modellierten und gemessenen Intensitäten, χ^2 , verwendet:

$$\chi^2 = \frac{1}{N_{\text{exp.}} - N_{\text{th.}}} \sum_j \frac{[I_{\text{th.}}(\vec{q}_j) - I_{\text{exp.}}(\vec{q}_j)]^2}{\sigma_{\text{exp.}}(\vec{q}_j)^2} . \quad (3.27)$$

Es werden aber teilweise auch andere Gütekriterien herangezogen (gewichtete quadratische Abweichungen, R -Werte, etc.), auf die hier nicht näher eingegangen werden soll. Üblicherweise bedeutet ein hoher bzw. niedriger Wert des Gütekriteriums, dass das Modell die Daten schlecht bzw. gut beschreibt. Hierbei ist zu

⁶Dabei wird die Probe durch die Reflektionsbedingung gedreht (‘gerockt’).

beachten, dass verschiedene Kriterien bzw. deren Werte untereinander nicht vergleichbar sind.

Durch Variation der N_{th} Modellparameter und Vergleich der für verschiedene Parametersätze ermittelten Gütekriterien wird das bestmögliche Modell gesucht. Auch hier werden verschiedene Algorithmen verwendet, um die Modellparameter zu variieren. Hier sind zu nennen ‘Brute force’ (Abrastern eines d -dimensionalen Parameterbereiches), Downhill-Simplex (einfach zu implementieren), simulated annealing (zeitaufwändig) und Levenberg-Marquardt (sehr komplex, ‘state-of-the-art’). Eine detaillierte Beschreibung findet sich beispielsweise in Referenz ([Press02](#), Kapitel 10 und 15).

Die üblicherweise verwendeten Anpassungsprogramme decken ein breites Spektrum von Anwendungsfällen ab und sind daher sehr komplex. Um jedoch den speziellen Problemen im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ gerecht zu werden und Einblicke in die Prozedur der Strukturbestimmung und -modellierung zu erhalten, wurde ein eigenes Programm entwickelt. Dies erlaubt auch einfache Anpassungen, um beispielsweise Strukturbilder zu generieren.

3.3 Wechselfeldsuszeptibilität

Während eines Neutronenstreuexperimentes wird die Proben temperatur üblicherweise durch ein Probenthermometer bestimmt. Diese Thermometer sind zur Vermeidung von Strahlungsschäden außerhalb des Neutronenstrahles montiert. Sowohl die Wärmestrahlung auf die Probe als auch Heizeffekte, z. B. durch Cadmium-Abschirmungen, können eine Abweichung der wahren Probentemperatur von der gemessenen Temperatur bewirken. Es ist aber gerade bei physikalischen Effekten mit starker Temperaturabhängigkeit notwendig, die Probentemperatur genau zu bestimmen. Hier bietet sich die Verwendung der Probe selbst als Sekundärthermometer an.

Die Auswahl an Messgrößen, die in-situ ermittelt werden können ohne einen speziellen Aufbau zu erfordern, ist allerdings beschränkt und von den Probeneigenschaften abhängig. Einfache Möglichkeiten bieten beispielsweise der elektrische Widerstand, die Hallspannung und die Wechselfeldsuszeptibilität. Durch Messung

der (stark temperaturabhängigen) Messgröße ohne aktivierten Strahl wird eine Kalibrierung gewonnen, mit der während des Experiments die Proben­temperatur er­mittelt werden kann. Für Neutronenstreuexperimente werden große, voluminöse Proben bevorzugt. Diese weisen aber eine große Querschnittsfläche auf und erschweren dadurch die Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeit. Zu beachten ist ferner, dass integrale Messgrößen nur eine ‘gemittelte’ Proben­temperatur liefern können, also nicht auf lokale Temperaturvariationen, wie z. B. im Brennfleck eines Röntgenexperimentes, sensitiv sind.

Im System CeCu_2Si_2 bietet es sich an, den supraleitenden Zustand über den Diamagnetismus der Supraleitung zu charakterisieren. Am Rand der supraleitenden Phase (bei T_c bzw. $\mu_0 H_{c2}$) ändert sich das diamagnetische Signal sehr stark, somit kann der Zustand nahe des Randes bzw. die Nähe zum Rand sehr viel besser charakterisiert werden, als nur über die Bestimmung der Temperatur und Vergleich mit dem Phasendiagramm. Dies erlaubt darüber hinaus Aussagen, die über die einer reinen Temperaturmessung mittels Proben­thermometer hinausgehen. Weiterhin ist die integrale Größe Suszeptibilität sensitiv auf die Volumenanteile, wobei allerdings u. U. Abschirmeffekte auftreten und ggf. berücksichtigt werden müssen.

Zur experimentellen Bestimmung der magnetischen Suszeptibilität χ werden im Wesentlichen zwei Methoden angewendet:

1. **Magnetometer** bestimmen die Magnetisierung \vec{M} der Probe in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld $\mu_0 \vec{H}$. Für $\vec{M} \parallel \vec{H}$ ergibt sich χ dann als Ableitung $\chi = \partial M / \partial B$. Diese Messung ist in rein statischen Feldern möglich und wird auch als *dc*-Methode bezeichnet ($\chi = \chi_{\text{dc}}$).
2. **Suszeptometer** bestimmen χ , indem die Probe einem oszillierenden (*ac*) Magnetfeld ausgesetzt wird. Die Magnetisierung innerhalb der Probe variiert dadurch zeitlich und induziert in einer Spule eine der Suszeptibilität χ_{ac} proportionale Spannung. Diese Methode benötigt ein kleines magnetisches Wechselfeld und wird daher auch *ac*-Suszeptibilität oder Wechselfeldsuszeptibilität genannt.

Um *während* eines Neutronenstreuexperimentes, also *in-situ*, die Suszeptibilität der Probe charakterisieren zu können, wurde ein Spulensatz zur Bestimmung der Wechselfeldsuszeptibilität entwickelt. Die simultane Messung erlaubt auch eine

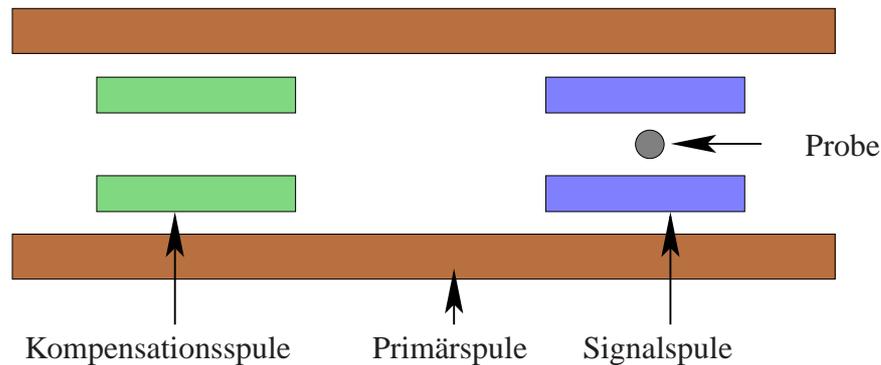


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau eines klassischen (*ac*) Wechselfeldsuszeptometers. Das durch die Primärspule erzeugte Magnetfeld induziert in den Sekundärspulen identische Spannungen. Die Probe sorgt durch ihre Magnetisierung für eine Asymmetrie der Induktionsspannungen. Durch antiserielle Verschaltung der Sekundärspulen wird der gemeinsame (Gleichtakt-)Anteil unterdrückt. Die resultierende Spannung wird mit einem Lock-In-Verstärker ermittelt und ist bei korrektem Abgleich proportional zur Suszeptibilität der Probe.

direkte Korrelation der Neutronenstreudaten mit dem Diamagnetismus (und somit den supraleitenden Eigenschaften), statt des Umweges, beide Größen über die Bestimmung von T und $\mu_0 H$ einander zuzuordnen. Somit sind stärkere Aussagen möglich, da der Umweg über eine weitere Messgröße entfällt.

3.3.1 Klassischer Aufbau

Der erste Aufbau des Spulensystems folgte dem Schema eines klassischen Wechselfeldsuszeptometers (Bild 3.2). Das Anregungsfeld wird von der mit Wechselstrom einer gewählten Frequenz f betriebenen Primärspule erzeugt. In den zwei Sekundärspulen wird dadurch die gleiche Spannung U_0 induziert. Aufgrund der antiseriellen Verschaltung kompensieren sich diese Spannungen. In einer der Spulen (Signalspule genannt) ist die Probe platziert. Die Magnetisierung der Probe ändert sich durch das Anregungsfeld, und durch die Magnetisierung der Probe wird

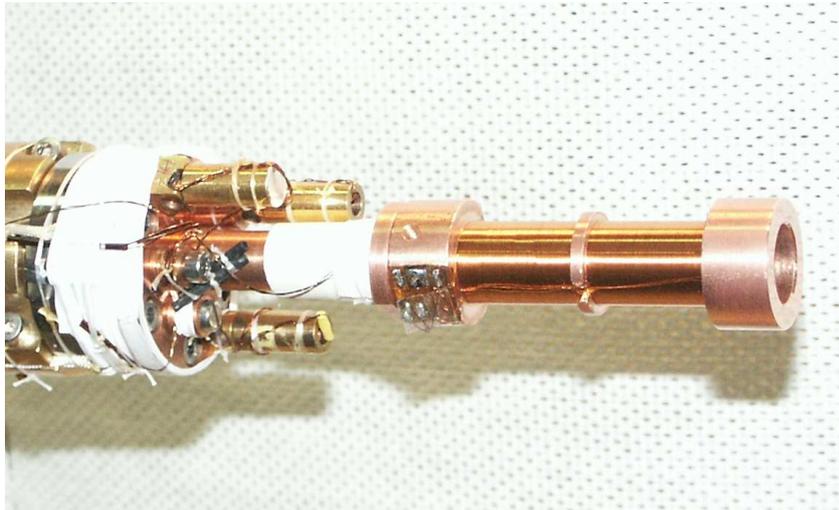


Abbildung 3.3: Erster Aufbau des Spulensystems, montiert an einem ^3He -Kryostaten. Die Probe befindet sich unsichtbar im Inneren. Man erkennt leicht die zwei Sekundärspulen. Die Primärspule wurde über beide Kammern gewickelt.

eine zusätzliche Spannung U_S in der Signalspule induziert. Diese Spannung wird durch die zweite Spule (Kompensationsspule genannt) jedoch nicht kompensiert. Die resultierende Differenzspannung $(U_S + U_0) - (U_0) = U_S$, welche mit einem Lock-In-Verstärker⁷ gemessen wird, ist bei korrektem Abgleich proportional zur Suszeptibilität.

Bild 3.3 zeigt den realisierten Aufbau, montiert an einem ^3He Kryostaten des Hahn-Meitner-Institutes (HMI) in Berlin. Der gesamte Aufbau besteht aus hochreinem Kupfer für den Spulenkörper und für den Probenhalter im Inneren. Die Wicklungen erfolgten mit handelsüblichem Kupferlackdraht. Beide einlagigen Sekundärspulen haben jeweils 200 Windungen, die zweilagige Primärspule 800 Windungen. Die Auswertung der Signale erfolgte mit einem Lock-In-Verstärker Modell EG&G 7265⁸. Der hohe Anteil von Störsignalen konnte mit einem Vorverstärker mit Bandpass Modell EG&G 5113 reduziert werden.

⁷selten auch Phasengleichrichter genannt

⁸Die Firma wurde inzwischen von Signal Recovery aufgekauft, die Modellnummern werden aber weiterhin verwendet

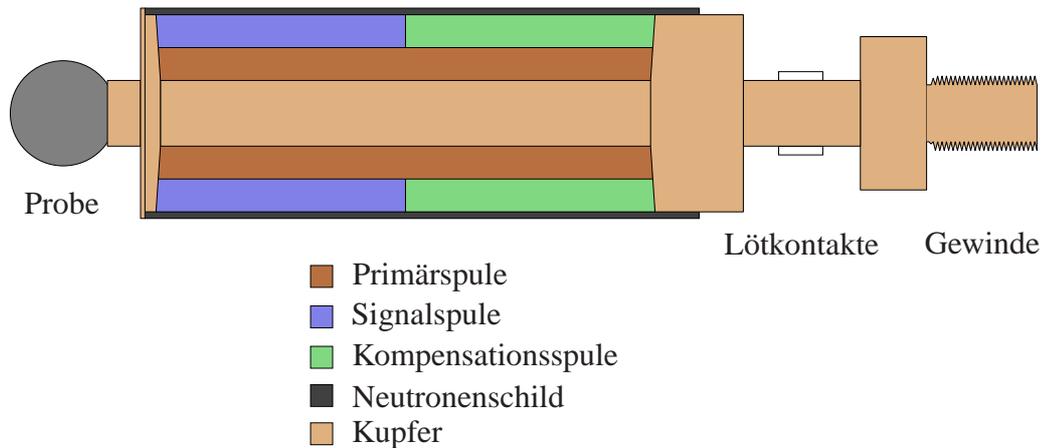


Abbildung 3.4: Aufbau des verbesserten Designs für die in-situ Suszeptibilitätsmessung. Die Probe wurde neben die Spulen platziert. Ein Neutronenschild unterdrückt inkohärente Streuung an den Spulen und dem Spulenkörper.

Während des Experiments wurden folgende Probleme bemerkt: Das Messsignal war aufgrund des geringen Füllfaktors und der geringen Windungszahl der Sekundärspulen sehr klein. Auch traten Wirbelströme auf, welche die Probe und den Spulenkörper aufheizten, sodass letztlich mit einem sehr kleinen Anregungsfeld gearbeitet werden musste. Zum anderen wurde ein erhöhter Untergrund in den Neutronenmessungen beobachtet, welcher auf die signifikanten Mengen inkohärenter Streuer (Kupfer, Wasserstoff in der Drahtisolation, ...) zurückgeführt wurde. Das Messsignal selbst wurde durch ein breites Spektrum an Störsignalen überlagert. Daher wurde ein zweites, verbessertes Design entworfen, welches diese Probleme reduziert.

3.3.2 Verbessertes Design

Bild 3.4 zeigt eine schematische Darstellung des verbesserten Spulensatzes. Abweichend von der klassischen Anordnung wird die Probe hier nicht innerhalb der Signalspule, sondern außerhalb platziert, sodass die Neutronen die Spule nicht durchdringen müssen. Neutronen, die die Spule dennoch treffen, werden durch

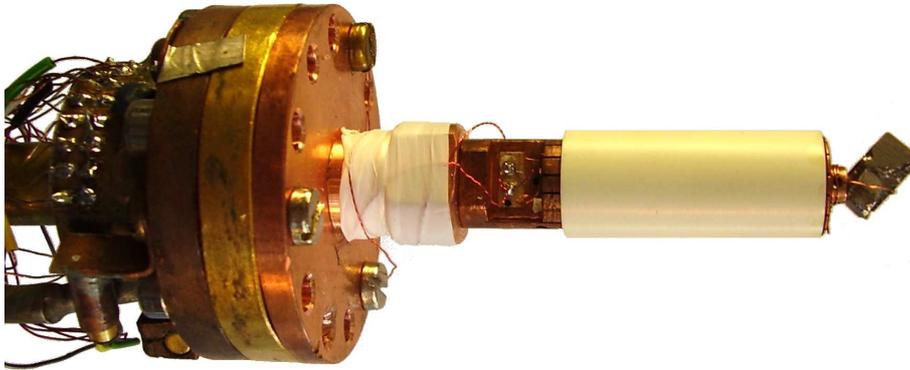


Abbildung 3.5: Bild des verwendeten Aufbaus während eines der Experimente am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble. Die Probe (rechts im Bild) ist mit *GE-Varnish* geklebt und zusätzlich mit Kupferdraht fixiert. Der Spulenkörper aus hochreinem Kupfer ist innerhalb der Spulen längs geschlitzt und mit Stycast 1266 stabilisiert⁹, um Wirbelströme zu reduzieren. Die Primärspule wurde mit $70\ \mu\text{m}$ NbTi-Supraleiterdraht ($T_c = 8.8\ \text{K}$) gewickelt, die Sekundärspulen mit $70\ \mu\text{m}$ Kupferlackdraht.

den Neutronenschild absorbiert. Durch den Aufbau bedingt ist sowohl das Anregungsfeld am Probenort inhomogen als auch der effektive Füllfaktor stark reduziert. Letzterer wird durch eine große Anzahl Sekundärwindungen kompensiert. Die Inhomogenität des Anregungsfeldes erlaubt keine Messung der *absoluten* Suszeptibilität und kann das Messsignal modifizieren. Für den vorgesehenen Einsatzzweck werden diese Einschränkungen jedoch in Kauf genommen. Einerseits wird eine Kalibrierungsmessung vorgenommen und andererseits sollte die absolute Suszeptibilität aus Labormessungen bekannt sein.

Bild 3.5 zeigt den realisierten Aufbau, wie er für ein Experiment am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble benutzt wurde. Der Spulenkörper besteht aus hochreinem Kupfer, damit auch bei sehr tiefen Temperaturen eine gute Wärmeleitfähigkeit sichergestellt wird, sodass Probe und Spulen gut gekühlt werden. Innerhalb der Primärspule ist der Spulenkörper längs geschlitzt, um Wirbelströme zu

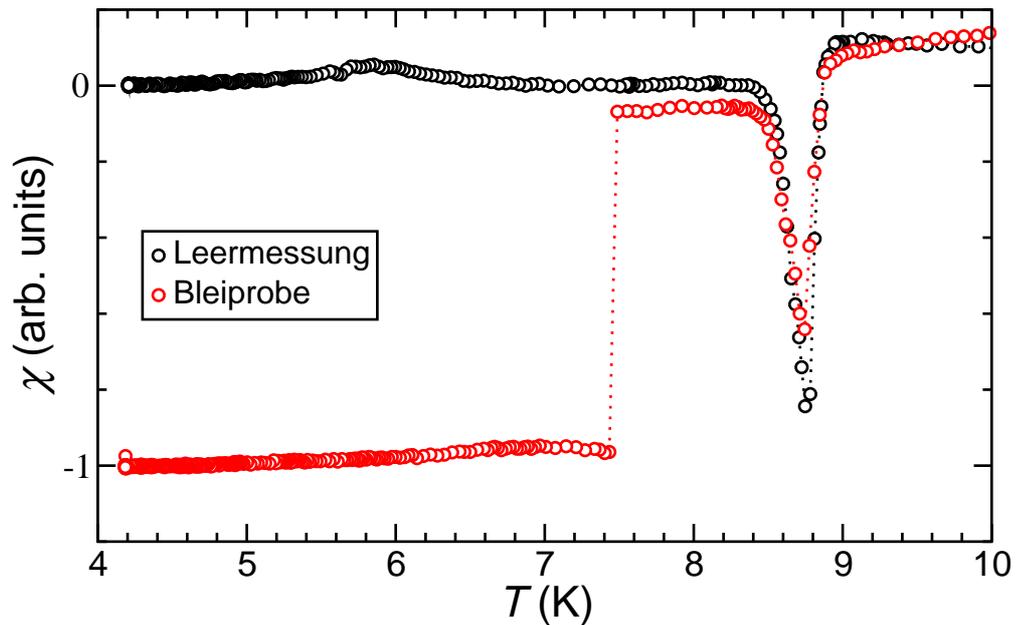


Abbildung 3.6: Messung einer Bleiprobe im Temperaturbereich $T = 4 - 10$ K. Die Supraleitung von Blei unterhalb von $T_c^{Pb} = 7.2$ K ist gut zu sehen. Die Anomalie bei etwa $T_c = 8.8$ K ist auf die einsetzende Supraleitung des Spulendrahtes der Primärspule zurückzuführen. Bei ca. 5.8 K wird vermutlich das Lötzinn supraleitend.

reduzieren. Aus Stabilitätsgründen wurde der entstehende Zwischenraum mit Stycast 1266⁹ ausgefüllt. Die Primärspule wurde direkt auf den Spulenkörper gewickelt, gefolgt von den Sekundärspulen. Dabei erfolgte jeweils eine Isolation mittels dünnem Zigarettenpapier, um Kurzschlüsse zu verhindern. Um die resistive Heizung der Primärspule zu vermeiden, wurde hierfür Supraleiterdraht verwendet. Der verwendete kupferummantelte NbTi-Supraleiterdraht hat eine Sprungtemperatur von $T_c = 8.8$ K. Für den anvisierten Temperaturbereich für Messungen von $T = 0.03 - 1$ K bestehen daher reichlich Reserven.

Bild 3.6 zeigt eine erste Messung einer Bleiprobe mit dem verbesserten Design in einem Heliumkannenkryostaten. Die Probe selbst maß nur ca. $1 \times 1 \times 1$ mm³. Der

⁹Stycast 1266 ist ein auf den Wärmeausdehnungskoeffizienten von Kupfer bei tiefen Temperaturen optimierter Zweikomponentenkleber.

Anregungsstrom durch die Primärspule betrug 1 mA und die Anregungsfrequenz 135 Hz. Die Messung selbst erfolgte mit dem o. g. Lock-In-Verstärker und Bandpass, um den Einfluss von Störsignalen zu reduzieren.

Unterhalb einer Temperatur von $T \approx 7.4$ K wurde eine stark negative Suszeptibilität ermittelt (rote Messpunkte). Durch den Vergleich mit einer Leermessung (schwarze Messpunkte) ist dieser Sprung mit der einsetzenden Supraleitung in Blei ($T_c^{Pb} \approx 7.2$ K) zu identifizieren. Der supraleitende Übergang der Primärwicklung zeigt sich bei $T_c \approx 8.8$ K. Bei $T \approx 5.8$ K weicht die Leermessung von dem erwarteten konstanten Wert ab. Dies ist vermutlich auf das Einsetzen von Supraleitung im Lötzinn der Lötkontakte zurückzuführen. Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass der Aufbau die Anforderungen bzgl. Signalamplitude und Auflösung erfüllt.

3.3.3 Neutronenabschirmung

Zur Abschirmung der Spulen wurde handelsübliches Bornitrid (BN) in Form eines Hohlzylinders (Länge $l = 23$ mm, Durchmesser $\varnothing = 9$ mm, Wandstärke $d = 0.8$ mm, Dichte $\rho \approx 2$ g/cm³) verwendet. Röntgenpulverdiffraktometrie ergab eine weitgehend amorphe Zusammensetzung, jedoch scheinen sich graphitartige Ringe mit einer Orientierung parallel zur Oberfläche auszurichten. Dies ist aufgrund der Herstellung durch einen CVD-Prozess¹⁰ verständlich.

Die Abschirmwirkung beruht auf der starken Neutronenabsorption des ¹⁰B-Isotops, welches in der Natur mit einer Häufigkeit von etwa 19.4 % vorkommt. Zur Bestimmung der Absorptionslänge $\mu = (\sigma n)^{-1}$ benötigt man die Atomdichte $n = \rho N_A / M_V$ mit der Massendichte ρ , der Avogadrozahl N_A und dem molaren Gewicht $M_V = 24.817$ g/mol. Hierbei ist $\sigma = 769$ barn der Absorptionsquerschnitt von BN. Dringt der Neutronenstrahl durch die Abschirmung der Dicke d , so tritt eine Intensitätsabschwächung $I/I_0 = \exp(-d/\mu)$ auf. Die Verwendung von isotopenreinem ¹⁰BN würde die Intensitätsabschwächung um mehrere Größenordnungen erhöhen, jedoch ist leider kein isotopenreines Bornitrid erhältlich.

Die Tabelle 3.1 zeigt zusammengefasst die charakteristischen Eigenschaften von Bornitrid (zusammengestellt aus den Referenzen (Pease52; Rudolph; Dianoux01)).

¹⁰Chemical Vapor Deposition

Material	Dichte ρ (g / cm ³)	Absorptionslänge μ (mm)	Abschwächung $I/I_0 = \exp(-0.8 \text{ mm} / \mu)$
hexagonales BN	2.27	0.227	$2.97 \cdot 10^{-2} \hat{=} 100:3$
kubisches BN	3.48	0.148	$4.55 \cdot 10^{-3} \hat{=} 220:1$
verwendetes BN	≈ 2	0.26	$5 \cdot 10^{-2} \hat{=} 20:1$

Tabelle 3.1: Übersicht über die Eigenschaften von Bornitrid in beiden kristallinen Modifikationen sowie der verwendeten amorphen Form. Natürliches Isotopengemisch hat einen Absorptionsquerschnitt $\sigma = 769$ barn.

Zum Vergleich enthält die Tabelle sowohl die Werte für Bornitrid in den kristallinen Modifikationen sowie des verwendeten amorphen BN. Man erkennt, dass die schwerer herstellbare kubische Modifikation aufgrund der höheren Atomdichte Neutronen stärker absorbiert. Jedoch bewirkt auch das verwendete Bornitrid eine für den vorgesehenen Einsatzzweck ausreichende Intensitätsabschwächung. Bei zweifachem Durchgang durch die Abschirmung ($d = 1.6$ mm) wird der Neutronenstrahl um mindestens den Faktor 400 abgeschwächt.

3.4 Proben

In dieser Arbeit wurden Neutronenstreuexperimente (Diffraction und elastische Streuung) an mehreren Einkristallen durchgeführt. Die $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ -Proben wurde von Micha Deppe, die CeCu_2Si_2 -Proben von H. S. Jeevan hergestellt und charakterisiert (beide Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe). Dabei kommt eine modifizierte Bridgeman-Technik mit Kupfer-Eigenfluss und nichtstöchiometrischer Einwaage zum Einsatz. Diese Methode ist notwendig, da $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ peritektisch wächst. Der Germaniumgehalt der $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ -Proben wurde mittels EDX-Analyse ermittelt. Die CeCu_2Si_2 -Proben wurden mittels Messungen der spezifischen Wärmekapazität und der Wechselfeldsuszeptibilität klassifiziert (Deppe04a; Jeevan). Da aufgrund der Probengröße nicht alle Messungen an den Neutronenproben durchführbar waren, wurde teilweise stattdessen ein benachbartes Stück aus demselben Batch charakteri-

3 Experimentelle Methoden

siert. Aus jedem Batch wurden auch weitere Proben für andere Experimente entnommen.

Probe	Klassifizierung	Masse m	ungefähre Größe (mm ³)
CeCu ₂ (Si _{0.55} Ge _{0.45}) ₂		570 mg	3 x 4 x 5
CeCu ₂ (Si _{0.64} Ge _{0.36}) ₂		668 mg	4 x 4 x 7
CeCu ₂ (Si _{0.82} Ge _{0.18}) ₂		1.63 g	5 x 5 x 7
CeCu ₂ Si ₂	A-Typ	350 mg	3 x 4 x 4
CeCu ₂ Si ₂	A/S-Typ	680 mg	4 x 4 x 6
CeCu ₂ Si ₂	A+S-Typ	5.6 g	8 x 8 x 18
CeCu ₂ Si ₂	S-Typ	2.0 g	6 x 8 x 8

Tabelle 3.2: Übersicht über die Eigenschaften der mittels Neutronendiffraktion untersuchten Proben.

4 Modellsubstanz

$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$

Nach der Entdeckung der Supraleitung im Schwere-Fermionen-System CeCu_2Si_2 wurde dieses neue Phänomen intensiv studiert ([Steglich79](#)). Analog zu anderen Cer-basierten Schwere-Fermionen-Systemen konkurriert langreichweitige antiferromagnetische Ordnung mit einem unmagnetischen Grundzustand. Das Verhältnis der Wechselwirkungen wird durch die Hybridisierung der Cer-4f-Momente mit den Leitungselektronen stark beeinflusst ([Donnevert98](#), und enthaltene Referenzen). Daher wurden auch andere Cer-basierte Systeme mit ThCr_2Si_2 -Struktur untersucht, beispielsweise CePd_2Si_2 und CeCu_2Ge_2 ([Mathur98](#); [Steglich96b](#)). In diesen Systemen bildet sich im Grundzustand eine langreichweitige antiferromagnetische Ordnung, die durch die Anwendung von hydrostatischem Druck p kontinuierlich unterdrückt wird ($T_N(p \rightarrow p_c) \rightarrow 0$). Zusätzlich findet man in der Nähe von p_c Supraleitung unterhalb T_c , wobei p_c und T_c für beide Systeme verschieden sind ([Jaccard92](#)). Dieses Verhalten wird auf einen quantenkritischen Punkt bei p_c zurückgeführt. Sieht man von (aufwändigen) Experimenten unter Druck ab, so bietet die isoelektronische Substitution von Silizium durch Germanium eine gute Möglichkeit, die kontinuierliche Entwicklung der interessanten Eigenschaften von CeCu_2Si_2 nachzuvollziehen.

CeCu_2Ge_2 hat unterhalb $T_N \approx 4.1 \text{ K}$ einen Fermi-Nesting dominierten ([Zwicknagl07](#)) antiferromagnetischen Grundzustand mit leicht reduzierten Momenten $\mu_{\text{ord.}} \approx 1 \mu_B$ ([Knopp89](#); [Krimmel97b](#)). Sparn und Mitarbeiter berichten über zwei Phasenübergänge innerhalb der magnetisch geordneten Phase ([Sparn97](#)). Der erste bei $T_1 \approx 2.4 \text{ K}$ deutet auf eine Spin-Reorientierung hin, der zweite bei $T_L \approx 1 \text{ K}$ ist vermutlich ein Lock-In-Phasenübergang.

CeCu_2Si_2 hingegen zeigt im Homogenitätsbereich unterschiedliche Eigenschaften: eine magnetische Phase (als A-Phase bezeichnet) unterhalb von $T_A \approx 0.8 \text{ K}$, Supraleitung (oft als S-Phase bezeichnet) mit einer probenabhängigen kritischen Temperatur $T_c = 0 - 0.7 \text{ K}$ oder beide Phänomene (im A/S-Typ), wobei die Supraleitung die A-Phase unterdrückt (Steglich96b). Die in Messungen der spezifischen Wärme gefundenen Anomalien deuteten ob ihrer vergleichbaren Größe darauf hin, dass schwere Quasiteilchen für beide Effekte verantwortlich sind (Steglich79; Bredl85).

Beide Substanzen haben die gleiche tetragonal innenzentrierte ThCr_2Si_2 -Struktur (I4/mmm), siehe auch #139 in den *International Tables for Crystallography* (Hahn06). Bild 4.1 zeigt eine Abbildung der tetragonalen Einheitszelle. Die Cer-Atome besetzen die Positionen in den Ecken und in der Mitte der Einheitszelle (Wyckhoff Position 2a). Kupfer-Atome sind mittig auf den Seitenflächen in der Höhe $1/4c$ und $3/4c$ positioniert (Wyckhoff Position 4d). Der einzige freie Parameter der Struktur ist die z -Position der auf den Seitenkanten plat-

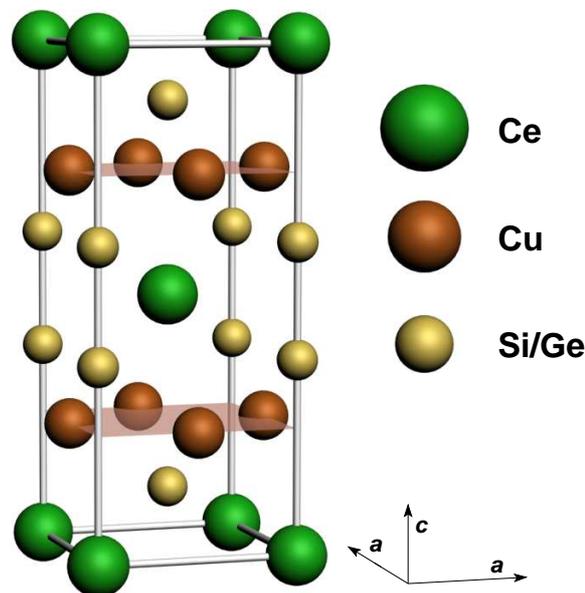


Abbildung 4.1: Einheitszelle von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$. In der innenzentrierten tetragonalen Einheitszelle sind zwei chemische Formeleinheiten enthalten.

zierten Silizium/Germanium-Atome (Wyckhoff Position 4e). Die Gitterparameter $a \approx 4.1 \text{ \AA}$, $c \approx 10.0 \text{ \AA}$ und $z \approx 0.37$ variieren nur schwach zwischen CeCu_2Si_2 und CeCu_2Ge_2 (Knebel96).

Da es im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ keine Mischungslücke gibt (Deppe04a), lässt sich also sehr gut die Entwicklung von einem magnetisch geordneten zu einem supraleitenden System untersuchen. Zu Beginn dieser Arbeit war der Erkenntnisgewinn durch die verfügbaren, meist polykristallinen Proben stark begrenzt. Zwar wurden Messungen an Einkristallen durchgeführt (Krimmel97a), jedoch waren diese sehr klein. Infolgedessen konnte, vom magnetisch geordneten System CeCu_2Ge_2 ausgehend, die magnetische Ordnung nur für $x \geq 0.6$ nachgewiesen werden (Knebel96; Krimmel97a).

Bild 4.2 zeigt das aus thermodynamischen Messungen an Polykristallen gewonnene (x, T) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ (Trovarelli97). Mehrere Phasenübergänge lassen sich in Abhängigkeit vom Germanium-Anteil x verfolgen.

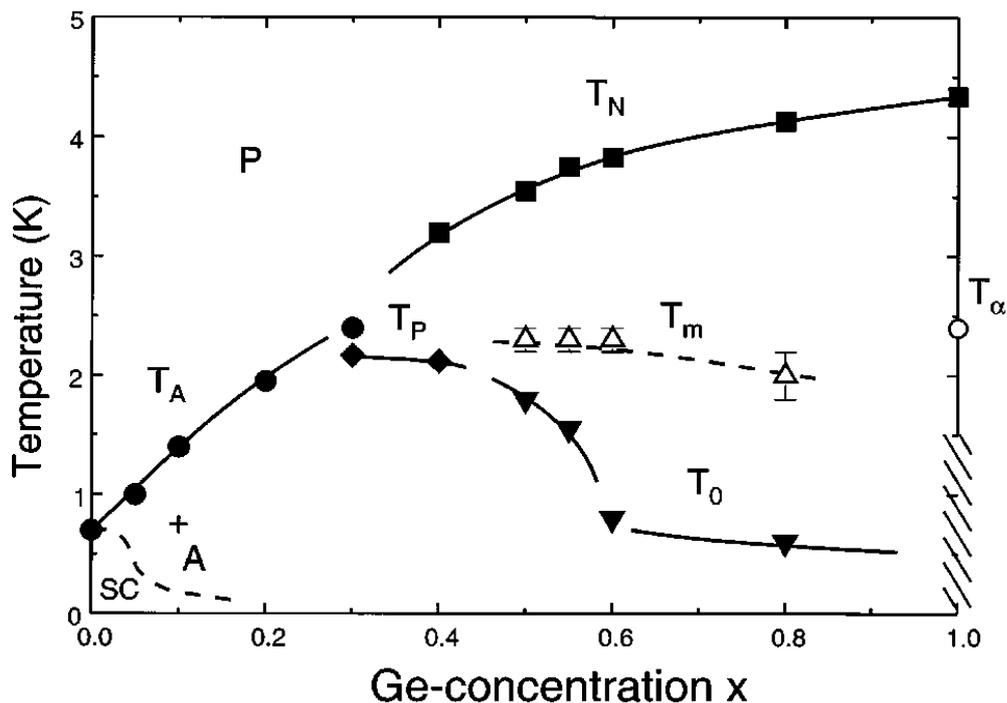


Abbildung 4.2: Magnetisches (x, T) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ aus (Trovarelli97).

Unterhalb der magnetischen Ordnungsübergänge, mit T_N bzw. T_A gekennzeichnet, wurden weitere Übergänge innerhalb dieser Phasen gefunden. Die höchste Phasenübergangstemperatur sowie das geordnete magnetische Moment steigen kontinuierlich mit wachsendem Germaniumgehalt x . Für $x > 0.6$ war die Natur des mit T_N bezeichneten Phasenübergangs mithilfe von Neutronenstreuexperimenten an Pulverproben als antiferromagnetische Ordnung mit stark reduziertem Moment bekannt (Knebel96; Krimmel97a). Dieser Nachweis gelang nicht für $x < 0.6$, so dass die Natur des Phasenübergangs lediglich als ‘magnetisch, da magnetfeldabhängig’ bekannt war.

Zu Beginn der vorliegenden Arbeit bestanden also zahlreiche offene Fragen. Die Natur der A-Phase war ebenso unbekannt, wie die Wechselwirkung, die zur Supraleitung führt. Inwieweit unterscheiden sich die magnetischen Strukturen innerhalb der geordneten Phase? Welchen Einfluss übt die Substitution auf die magnetischen Strukturen aus und wie sieht die Wechselwirkung zwischen Magnetismus und Supraleitung aus? Außerdem sind die von verschiedenen Arbeitsgruppen publizierten

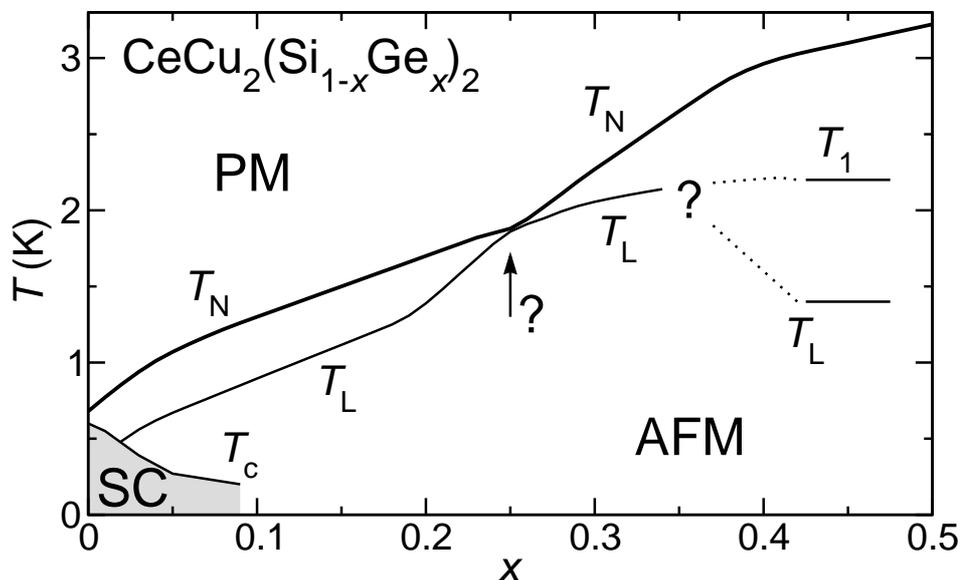


Abbildung 4.3: Magnetisches (x, T) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ für $0 \leq x \leq 0.5$. Zusammenstellung aus verschiedenen Messungen an Einkristallen (Deppe04b; Stockert05). Die Fragezeichen markieren offene Fragen: siehe Text.

Daten nicht überall konsistent (vergleiche beispielsweise die Phasendiagramme in den Referenzen ([Trovarelli97](#); [Knebel96](#); [Krimmel97a](#))). Essentiell zur Beantwortung dieser Fragen war jedoch die Aufgabe, Einkristalle genügender Größe mit definierten Eigenschaften reproduzierbar herzustellen. Dies gelang erst nach 2000 in der Arbeitsgruppe von Dr. Christoph Geibel¹.

Von dieser Arbeitsgruppe wurden auch die in dieser Arbeit untersuchten Einkristalle zur Verfügung gestellt. Da für $x \geq 0.6$ die Untersuchung der antiferromagnetischen Ordnung bereits durchgeführt war ([Knebel96](#)), konzentrierten sich unsere Untersuchungen auf das Gebiet $x < 0.6$. Hierzu wurden Einkristalle mit verschiedenen Zusammensetzungen hergestellt und charakterisiert ([Deppe04a](#); [Jeevan](#)). Makroskopische Messungen fanden innerhalb der magnetischen Phase T_N weitere Phasenübergänge für alle Proben, obgleich bei $x \approx 0.25$ die Übergangstemperaturen nahezu entartet sind. Bild 4.3 auf Seite 40 zeigt ein aus makroskopischen Messungen² erstelltes schematisches (x, T) -Phasendiagramm für $0 \leq x \leq 0.45$. Die Zusammenstellung erfolgte aus den Quellen in ([Deppe04b](#); [Stockert05](#)) und deren Referenzen.

Als erste Probe wurde ein Einkristall mit nominell $x = 0.5$ hergestellt, der mittels EDX-Analyse bestimmte Germaniumanteil beträgt nach Referenz ([Deppe04a](#)) jedoch $x = 0.45$. Kleinere Abweichungen im Prozentbereich zwischen nomineller und tatsächlicher Zusammensetzung wurden im gesamten System gefunden ([Deppe04a](#)). Fokus der Untersuchungen an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ war der Nachweis und die Bestimmung der magnetischen Ordnung mittels Neutronenstreuung, um dann schrittweise die Eigenschaften von Proben mit niedrigerem Germaniumgehalt und schlussendlich von CeCu_2Si_2 zu ermitteln.

4.1 $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$

Nachdem Einkristalle ausreichender Größe und Qualität durch die Arbeit von Micha Deppe¹ zur Verfügung standen ([Deppe04a](#)), machten die Untersuchungen am $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ -System große Fortschritte. Von Oliver Sto-

¹Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe

²u. a. elektrischer Widerstand, spezifische Wärme, Suszeptibilität und Magnetisierung

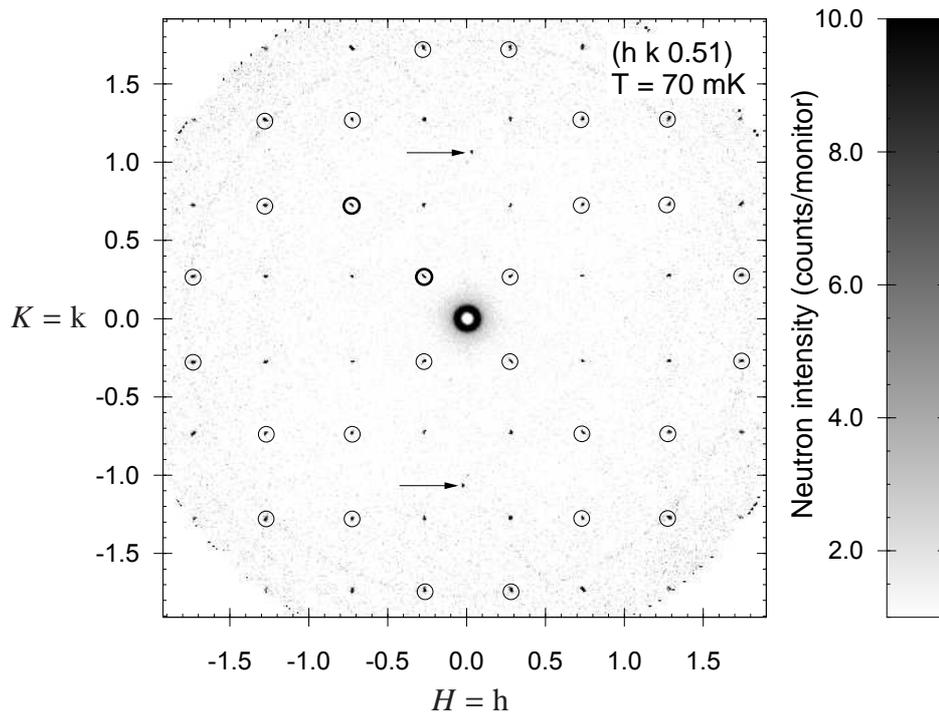


Abbildung 4.4: $(H K 0.51)$ -Streuebene von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ bei $T = 70 \text{ mK} \ll T_N \approx 3 \text{ K}$, aufgenommen bei $\lambda = 2.39 \text{ \AA}$ von O. Stockert am E2-Diffraktometer des HMI Berlin. Die magnetischen Satelliten, deren Ursprung in der $(H K 0)$ Ebene liegt, sind mit einem Kreis markiert. Aufgrund der hohen vertikalen Akzeptanz des Detektors sind auch die Reflexe mit $L = 0.49$ erfasst. Die Pfeile markieren Reflexe, die durch ein Fremdkorn erzeugt werden und nicht zur magnetischen Ordnung gehören. Der Propagationsvektor wurde zu $\vec{\tau} = (0.277 \ 0.277 \ 0.51)$ bestimmt (Stockert03).

ckert¹ wurde ein Experiment am Flat-Cone-Neutronendiffraktometer E2 des Hahn-Meitner-Institutes (HMI) in Berlin durchgeführt (Stockert03). Die Probe $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ wurde in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Entmischungskryostaten so befestigt, dass eine $(H K 0)$ -Primärstreuebene realisiert ist. Mittels Flat-Cone-Technik wurden (bei $\lambda = 2.39 \text{ \AA}$) die reziproken Ebenen $(H K L)$ mit $L = 0 - 1$ untersucht. Unterhalb von $T_N = 3.1 \text{ K}$ wurden bei $L \approx 0.5$ antiferromagnetische Satelliten gefunden. Bild 4.4 zeigt einen Ausschnitt der reziproken $(H K 0.51)$ -Ebene von

$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ bei $T = 70$ mK. Die Pfeile markieren Reflexe, die durch ein nukleares Fremdkorn erzeugt werden und nicht zur magnetischen Ordnung gehören (sie verschwinden nicht bei $T \gg T_N$). Bei tiefster Temperatur sind die Positionen der antiferromagnetischen Satelliten kompatibel mit einem einfachen Propagationsvektor $\tau = (\tau_H \tau_K \tau_L) = (0.277(1) \ 0.277(1) \ 0.51(3))$ mit $\tau_H = \tau_K$. Die Satelliten von Reflexen der $(H \ K \ 0)$ -Ebene sind in Bild 4.4 durch Kreise markiert. Aufgrund der hohen vertikalen Akzeptanz des Detektors wurden auch die Satelliten der $(H \ K \ 1)$ -Ebene bei $L = 0.49$ erfasst. Weiterhin konnte nur die H -Komponente des Propagationsvektors temperaturabhängig bestimmt werden.

Der erfolgreiche Nachweis antiferromagnetischer Satelliten in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ stellt den Startzeitpunkt dieser Arbeit dar. Ein Ziel dieser Arbeit war es, die magnetische Struktur bei einer Probe mit hohem μ_{ord} . (also z. B. $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$) zu bestimmen und hin zu $x \approx 0$ (d. h. reinem CeCu_2Si_2) zu extrapolieren. Die Bestimmung der magnetischen Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ stellte lange Zeit eine große Herausforderung dar. Nur durch die Kombination verschiedener Experimente konnte diese Frage gelöst werden. In den folgenden Unterkapiteln wird daher der beschrittene Weg zur Lösung der mikroskopischen magnetischen Struktur für $x = 0.45$ nachgezeichnet.

4.1.1 Propagationsvektor (D23)

Um den Temperaturverlauf des magnetischen Propagationsvektors und die (magnetische) Struktur genauer zu untersuchen, wurde ein Experiment am Einkristall-Diffraktometer D23 des ILL³ durchgeführt. Der Neutronendetektor dieses Instrumentes kann so positioniert werden, dass auch Braggreflexe außerhalb der horizontalen Streuebene vermessen werden können. Ein Einkristall aus $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ mit einer Masse von $m = 570$ mg wurde so auf einem Kupferpin befestigt, dass sich nach Einbau in einen ^3He -Kryostaten eine horizontale $(H \ H \ L)$ -Streuebene ergab. Die Wellenlänge betrug $\lambda = 1.2805 \text{ \AA}$. Nach Abkühlung auf $T = 4.2$ K und Bestimmung der Orientierung, wurde bei 150 (53 unabhängigen) zugänglichen nuklearen Braggreflexen ein Rockingscan durchge-

³Das Institut Laue-Langevin betreibt einen Hochfluss-Forschungsreaktor in Grenoble, Frankreich.

führt, um die integrale Streuintensität zu erhalten. Mit diesen Daten wurde die Kristallstruktur verfeinert, wobei sich eine sehr gute Anpassung ergab und die in der Literatur veröffentlichte I4/mmm Struktur bestätigt wurde. Auch der Parameter z dieser Struktur, die c -Position der Silizium/Germanium-Atome, bestätigt mit $z = 0.3874(15)$ die Literaturwerte (Knebel96).

Wie bereits in Kapitel 3.1.1 ab Seite 21 gezeigt, modifiziert eine ferromagnetische Komponente einer magnetischen Struktur nur die Intensität auf den nuklearen Braggreflexen, nicht jedoch die Intensität der antiferromagnetischen Satelliten. Um eine mögliche ferromagnetische Komponente der bereits gefundenen antiferromagnetischen Ordnung zu finden, wurden bei $T = 0.3$ K wiederholt die Intensitäten nuklearer Braggreflexe ermittelt, um Veränderungen aufzuspüren. Im Rahmen der Auflösung wurde keine ferromagnetische Intensität gefunden.

Weiterhin wurde bei tiefster Temperatur $T = 0.3$ K eine Auswahl von magnetischen Reflexen zentriert, um den magnetischen Propagationsvektor $\tau = (\tau_H \ \tau_K \ \tau_L)$ genauer zu bestimmen. Wie zuvor konnte die Relation $\tau_H = \tau_K$ bestätigt werden. Die H -Komponente des Propagationsvektors schwankte kaum, jedoch traten für τ_L Werte zwischen 0.49 und 0.51 auf. Dies wurde zunächst darauf zurückgeführt, dass aufgrund der großen c -Gitterkonstante und der relativ kleinen reziproken c^* -Achse die Auflösung in $(0 \ 0 \ L)$ -Richtung schlechter ist als in $(H \ H \ 0)$ -Richtung. Als Mittelwert über ca. 100 Reflexe ergab sich $\tau = (0.273(1) \ 0.273(1) \ 0.505(3))$ mit einem Fehler von weniger als 1%.

Daraufhin wurde anhand zweier ausgesuchter magnetischer Reflexe die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors bestimmt. Dazu wurden der Satellit des $(0 \ 0 \ 6)$ -Reflexes $(0.273 \ 0.273 \ 6.51)$ und der Satellit des $(2 \ 2 \ 0)$ -Reflexes $(1.727 \ 1.727 \ -0.51)$ verwendet. Bild 4.5 zeigt Rockingscans über diese Satelliten bei ausgewählten Temperaturen fernab von den bekannten Phasenübergängen. Im Weiteren werden diese Satelliten nach ihrem Ursprung sowie der Richtung bzgl. τ als 006+ und 220- bezeichnet. Diese Reflexe wurden gewählt, da sie eine hohe magnetische Intensität haben, ihre Vektoren im reziproken Raum nahezu senkrecht aufeinander stehen und beide im 2Θ -Bereich der höchsten Instrumentauflösung liegen. Die Verwendung hoch indizierter Reflexe bewirkt nur kleine Änderungen des Streuwinkels 2Θ bei einer Änderung des Propagationsvektors, jedoch starke Ände-

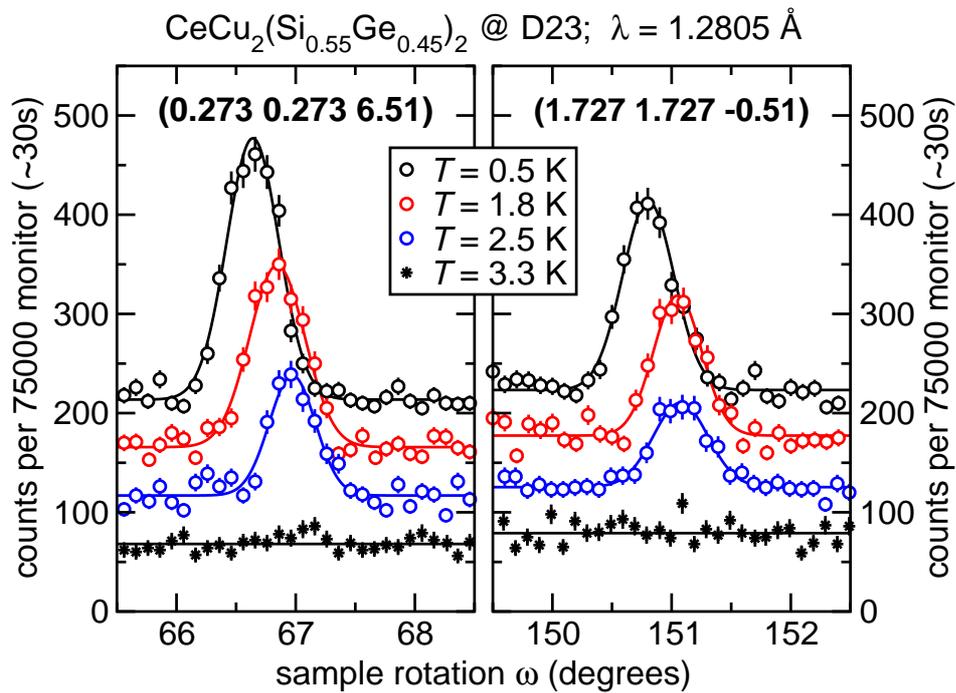


Abbildung 4.5: Rockingscans in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ bei ausgewählten Temperaturen fernab von einem Phasenübergang. Die ω -Position und Streuintensität der magnetischen Braggreflexe $(0.273 \ 0.273 \ 6.51)$ und $(1.727 \ 1.727 \ -0.51)$ verändern sich deutlich mit der Temperatur. Die Linien geben einen Gaußfit an die Rohdaten wieder. Die Kurven wurden um jeweils 50 Einheiten gegeneinander verschoben.

rungen im Rocking-Winkel ω . Da sich eine Änderung des Propagationsvektors auf die Position der untersuchten Reflexe unterschiedlich auswirkt, lässt sich aus den beobachteten ω -Verschiebungen später die Änderung des Propagationsvektors rekonstruieren. Daher können alle relevanten Informationen mit Rockingscans über beide Reflexpositionen bestimmt werden. Die Temperaturabhängigkeit wurde sowohl mit steigender als auch mit fallender Temperatur bestimmt. Dabei wurde nach der Temperaturstabilisierung noch eine Zeit lang gewartet, um die Probe sicher zu thermalisieren.

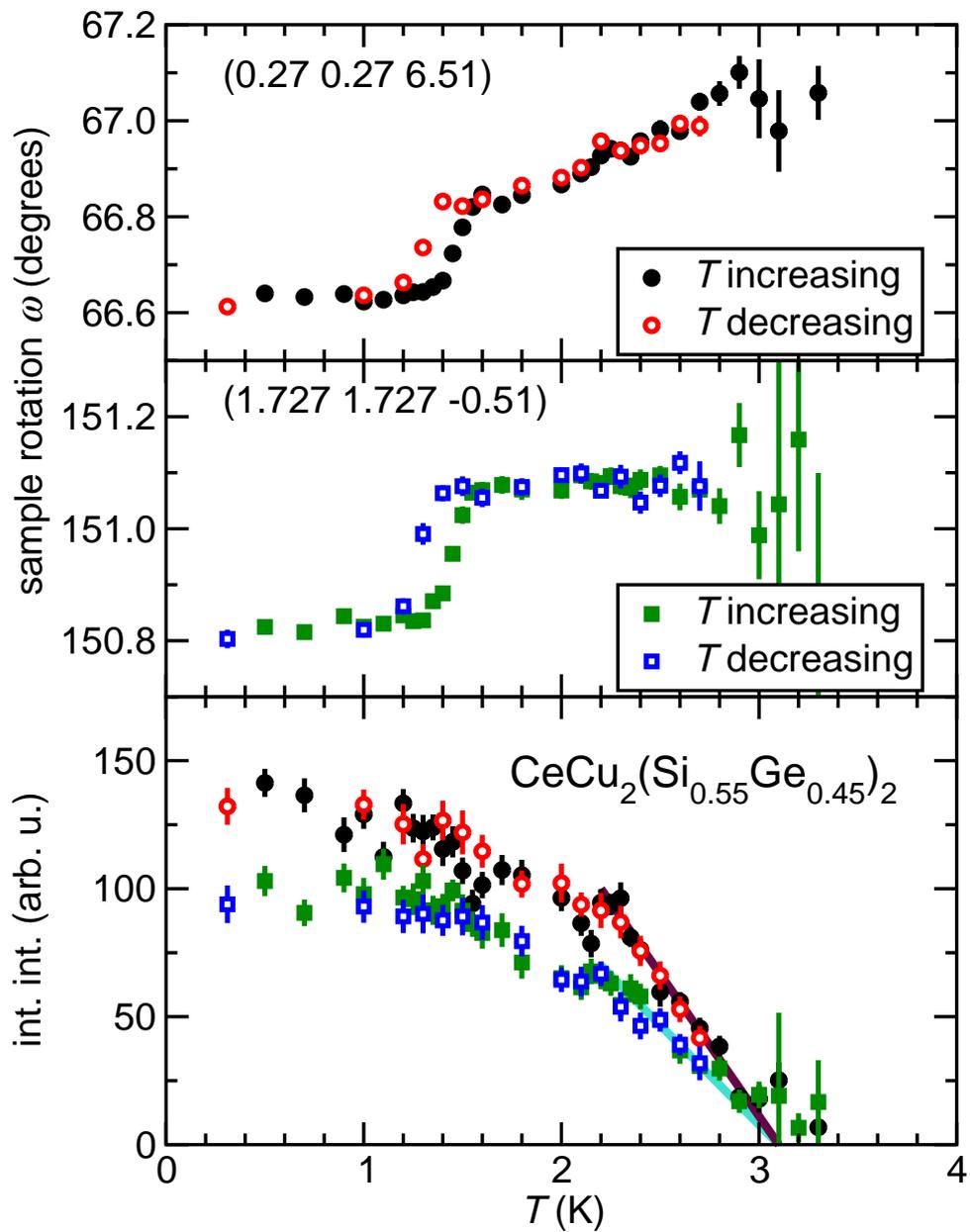


Abbildung 4.6: Temperaturabhängigkeit der ω -Position und Streuintensität der magnetischen Braggreflexe $(0.273\ 0.273\ 6.51)$ und $(1.727\ 1.727\ -0.51)$ in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$. Die Linien sollen den Verlauf unterhalb T_N verdeutlichen. (Instrument D23 (ILL Grenoble), Wellenlänge $\lambda = 1.2805\ \text{\AA}$.)

Beide Reflexe zeigten eine Temperaturabhängigkeit sowohl ihrer Position als auch ihrer Streuintensität. Bild 4.6 zeigt die Position und die integrale Intensität beider Reflexe als Funktion der Temperatur. Bei $T = 1.3 - 1.5$ K ist ein hysteretischer Sprung in der Reflexposition zu beachten. Die Hysterese weist auf einen Phasenübergang erster Ordnung hin. Unterhalb dieses Phasenübergangs sind sowohl die magnetische Intensität als auch der Propagationsvektor konstant. Letzteres Verhalten wird in der englischsprachigen Fachliteratur als ‘Lock-In transition’ bezeichnet, daher bekam der zugehörige Phasenübergang das Symbol T_L zugewiesen. Oberhalb T_L verändert sich die Reflexposition kontinuierlich und die magnetische Intensität nimmt langsam ab. Bei $T \approx 2.2 - 2.3$ K findet man eine leichte Anomalie sowohl in der Position als auch in der Intensität. Diese Temperatur entspricht dem Phasenübergang bei T_1 (siehe Phasendiagramm in Bild 4.3 auf Seite 40). Aus der Intensitätsänderung lässt sich auf eine Spin-Reorientierung bei T_1 schließen. Dieser Effekt ist auch an anderen magnetischen Braggreflexen, z. T. sogar stärker, beobachtbar. Beide Phasenübergangstemperaturen korrelieren sehr gut mit den Anomalien, die bei Messungen der thermischen Ausdehnung gewonnen wurden (Oeschler05). Bei der Néel-Temperatur $T_N \approx 3.1$ K schließlich verschwindet die magnetische Intensität. In der Nähe von T_N ist auch kritische Streuung beobachtbar, darauf wird hier nicht weiter eingegangen.

Mit dem bei tiefster Temperatur $T_0 = 0.3$ K ermittelten Propagationsvektor als Bezugspunkt lässt sich aus den ermittelten Positionsänderungen der 006+ und 220-Satelliten $\delta\omega$ die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors bestimmen. Im Folgenden werden die Positionsänderungen $\delta\omega(T) = \omega(T) - \omega(T_0)$ beider Satelliten (mit Indizes 006+ und 220- gekennzeichnet) sowie die Änderung der Komponenten des Propagationsvektors:

$$\delta\tau_H(T) = \tau_H(T) - \tau_H(T_0) \quad (4.1)$$

$$\delta\tau_L(T) = \tau_L(T) - \tau_L(T_0) \quad (4.2)$$

als zweikomponentige Vektoren betrachtet. Mit den Änderungen der Reflexpositionen $\delta\omega_{006+}(T)$ und $\delta\omega_{220-}(T)$ sowie den Ableitungen $\left(\frac{d\omega}{d\tau_H}\right)$ und $\left(\frac{d\omega}{d\tau_L}\right)$ für beide

Reflexe (006+ und 220-) lässt sich die temperaturabhängige Änderung des Propagationsvektors bezogen auf die Werte bei T_0 wie folgt bestimmen:

$$\begin{pmatrix} \delta\tau_H \\ \delta\tau_L \end{pmatrix} (T) = \begin{pmatrix} \delta\tau_H(T) \\ \delta\tau_L(T) \end{pmatrix} = \begin{vmatrix} \frac{d\omega_{006+}}{d\tau_H} & \frac{d\omega_{006+}}{d\tau_L} \\ \frac{d\omega_{220-}}{d\tau_H} & \frac{d\omega_{220-}}{d\tau_L} \end{vmatrix}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} \delta\omega_{006+} \\ \delta\omega_{220-} \end{pmatrix} (T) \quad . \quad (4.3)$$

Die Ableitungen $\frac{d\omega}{d\tau}$ werden hierbei nur für die Positionen bei T_0 ausgewertet. Da nur eine geringe Temperaturabhängigkeit ermittelt wird, ist diese lineare Näherung gerechtfertigt. Mit dem bei $T_0 = 0.3$ K bestimmten Propagationsvektor $\tau_0 = (0.273 \ 0.273 \ 0.505)$ als Bezugspunkt ergibt sich dann für die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors:

$$\begin{pmatrix} \tau_H(T) \\ \tau_L(T) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tau_H \\ \tau_L \end{pmatrix} (T) = \begin{pmatrix} \tau_H \\ \tau_L \end{pmatrix} \Big|_{T_0} + \begin{pmatrix} \delta\tau_H \\ \delta\tau_L \end{pmatrix} (T) = \tau_0 + \delta\tau(T) \quad . \quad (4.4)$$

Bild 4.7 zeigt den auf diese Art ermittelten Propagationsvektor in Abhängigkeit von der Temperatur. Die L Komponente des Propagationsvektors zeigt außer dem hysteretischen Sprung bei T_L im Rahmen der Fehlerbalken keine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit. Im Gegensatz dazu zeigt die H -Komponente oberhalb T_L eine fast lineare Temperaturabhängigkeit mit einer leichten Anomalie bei T_1 .

Ein weiteres Ziel dieses Experimentes war die Bestimmung der magnetischen Struktur. Dazu ist es notwendig, die Intensität einer großen Anzahl magnetischer Braggreflexe zu ermitteln. Die anschließende Strukturanpassung (siehe auch Kapitel 3.2 ab Seite 26) variiert dann die Parameter des Strukturmodells und versucht eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment zu erreichen. Zunächst wurde nur der Grundzustand betrachtet und Daten in der Tieftemperaturphase unterhalb von T_L gesammelt.

Aufgrund des Propagationsvektors $\vec{\tau} = (\tau_H \ \tau_H \ \tau_L)$ und der Kristallstruktur $I4/mmm$ ergeben sich 4 kristallographische T-Domänen (Nomenklatur entsprechend Referenz (Authier06)). Jede dieser T-Domänen erzeugt einen eigenen Satz von magnetischen Braggreflexen⁴. Aufgrund des *inkommensurablen* Propagationsvektors überlagern sich diese Reflexe nicht, sodass zu jedem Reflex eindeutig die Domäne bestimmt werden kann. Daher reichen zur Bestimmung der magnetischen

⁴z. B. $\pm(H + \tau_H; K + \tau_H; L + \tau_L)$ oder $\pm(H + \tau_H; K + \tau_H; L - \tau_L)$

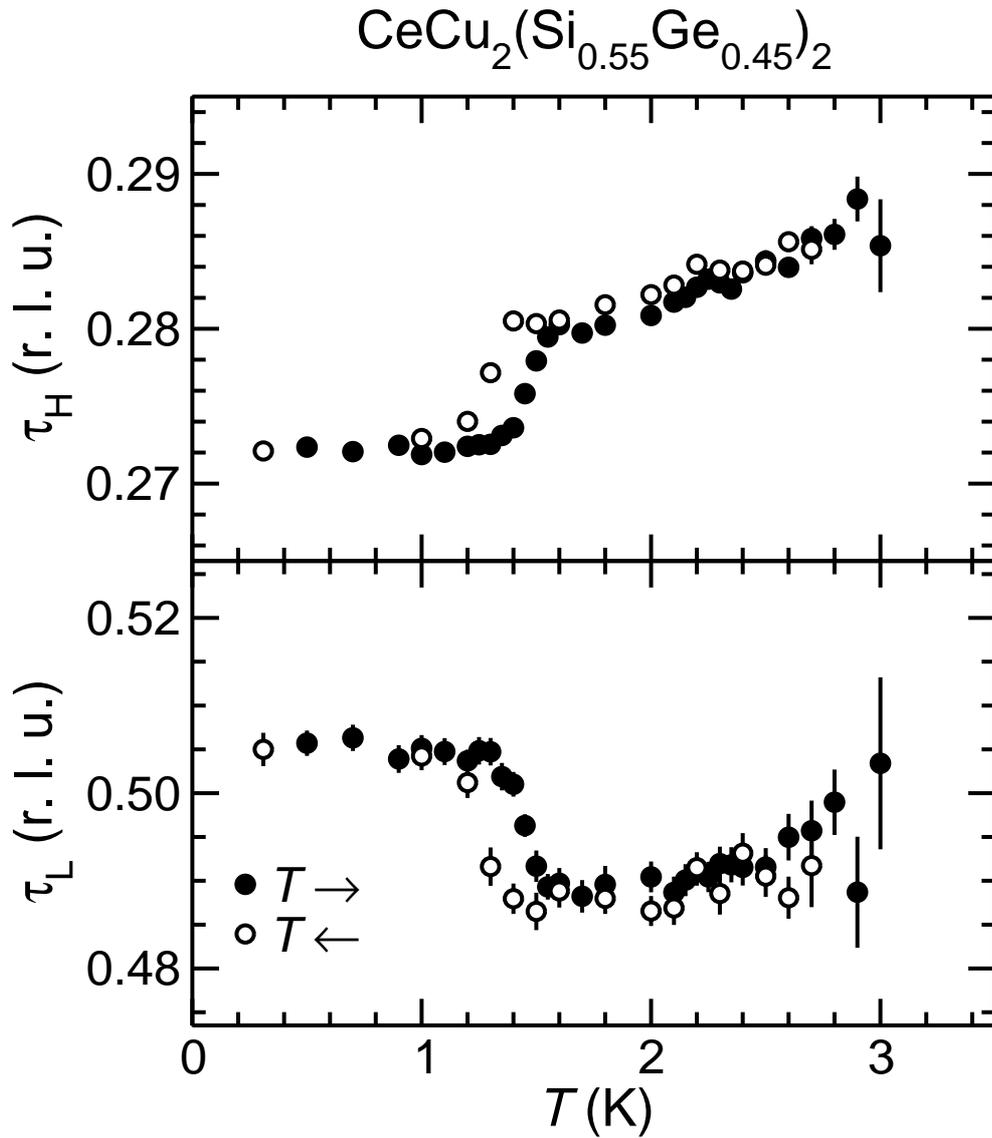


Abbildung 4.7: Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors $\tau = (\tau_H \tau_H \tau_L)$ für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$, bestimmt anhand der Reflexe $(0\ 0\ 6) + \tau$ und $(2\ 2\ 0) - \tau$, gemessen am D23 des ILL Grenoble bei $\lambda = 1.2805\ \text{\AA}$. Die Diagramme, oben für τ_H und unten für τ_L , sind so skaliert, dass beide den gleichen Bereich in absoluten reziproken Einheiten abdecken (Faulhaber04).

Struktur im Prinzip die Intensitäten aus einer Domäne. Um diese Aussage zu prüfen und da keine Gleichverteilung der Domänenbesetzung vorausgesetzt werden kann, wurden Information aus mehreren Domänen gesammelt. Die Intensitäten einer Domäne wurden fast vollständig ermittelt, aus anderen wurden jeweils einige symmetrieäquivalente magnetische Braggreflexe vermessen. Insgesamt wurden 374 Reflexe vermessen. Kombiniert man die Daten symmetrieäquivalenter Reflexe, so erhält man 68 Intensitätswerte. Der so ermittelte Datensatz zeigt eine außerordentlich gute Statistik, die Intensitäten sowohl von Friedelpaaren als auch von symmetrieäquivalenten Reflexen variieren nur im Rahmen der statistischen Fehler. Somit wurde eine gleichmäßige Domänenpopulation festgestellt. Systematische Abweichungen der Intensitäten aufgrund der Probenform wurden ebenfalls nicht beobachtet.

Aufgrund der hervorragenden Qualität des Datensatzes wurde optimistisch eine Bestimmung der Magnetstruktur versucht. Verschiedene Magnetstrukturen wurden getestet, aber die berechneten Intensitäten wichen immer deutlich von den gemessenen Werten ab, ohne dass eine Systematik erkennbar wurde. Somit blieb vorerst die erfolgreiche Anpassung der Magnetstruktur eine ungelöste Herausforderung. Bei der systematischen Suche nach möglichen Ursachen für die Diskrepanz zwischen Modell und Experiment drängten sich folgende Möglichkeiten in den Vordergrund:

Das Auftreten höherer harmonischer Satelliten an Positionen $2\tau, 3\tau \dots$, wurde im durchgeführten Experiment bereits ausgeschlossen. An Satelliten verschiedener Reflexe $(H K L)$ konnte an entsprechenden Positionen $(H K L) \pm (2\tau, 3\tau, \dots)$ keine Intensität nachgewiesen werden. Aufgrund der Statistik lässt sich jedoch hier nur die Abschätzung $I(2\tau, 3\tau, \dots) < 0.01I(\tau)$ angeben. Eine solch geringe Intensität auf höheren harmonischen Satelliten sollte sich jedoch nur in geringer Weise (durch die modifizierte magnetische Struktur) auf die Intensität der direkten Satelliten auswirken. Somit kann diese Möglichkeit ausgeschlossen werden.

Daraufhin wurde die Frage untersucht, ob sich die magnetische Struktur überhaupt mit nur einem Propagationsvektor beschreiben lässt, oder ob zwei oder mehr vonnöten sind (sogenannte *multi-k*-Strukturen)? Da keine weiteren Satelliten gefunden wurden, müsste eine solche Struktur also durch verschiedene Kombinationen von $(\pm\tau_H \pm \tau_H \pm \tau_L)$ als Propagationsvektoren modelliert werden. Diese

Strukturen zerfallen prinzipiell in zwei Klassen: Lässt sich die Struktur additiv modellieren, so treten nur Satelliten von einzelnen Propagationsvektoren auf (z. B. bei $(110)+\tau_1$ und bei $(110)+\tau_2$). Ist die Struktur jedoch im Kern multiplikativ, so treten auch (im Prinzip alle) Kombinationen der Propagationsvektoren auf. Eine solche Struktur würde also auch Intensität auf Positionen $(H K L)\pm(\tau_1 \pm \tau_2 \pm \dots)$ erzeugen. Dies kann jedoch durch vorhergehende Experimente ausgeschlossen werden. Somit blieb nur, die additiven Strukturen zu modellieren, aber auch dieser Ansatz führte nicht zum Erfolg.

Als nächster Punkt wurde überprüft, ob sich evtl. Satelliten überlagern. Sollten mehrere Satelliten auftreten, die sich überlappen, kann kein Modell die experimentellen Ergebnisse wiedergeben, welches pro Reflexposition genau einen Satelliten berechnet. Falls sich Reflexe überlappen, müsste die Summe ihrer Intensitäten berechnet werden. Die Beobachtung verschiedener, nahe beieinander liegender Werte für die L -Komponente des Propagationsvektors stützt diese These überlappender Reflexe. Es stellt sich hier nun die Frage, wie es zu einer solchen Situation kommen kann: Treten zwei sehr ähnliche Propagationsvektoren auf, könnten sich diese aufgrund der Instrumentauflösung überlappen. Um eine solche Struktur modellieren zu können, sind jedoch die genauen Werte der Propagationsvektoren und die Intensitäten ihrer Satelliten wichtig. Aufgrund der L -Komponente des Propagationsvektors von $\tau_L \approx 0.5$ könnten sich jedoch auch Satelliten z. B. des (110) und (111) Reflexes überlagern. Wie in Kapitel 3.1.1 ab Seite 21 in Gleichung (3.19) gezeigt, erzeugen nur die Punkte des reziproken Gitters der magnetischen Atome antiferromagnetische Satelliten. Die Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ ist innenzentriert, das zugehörige reziproke Gitter somit flächenzentriert. D. h. (111) ist im Gegensatz zu (110) kein Punkt des reziproken Gitters und kann somit keine antiferromagnetischen Satelliten erzeugen. Sollten diese auftreten, müsste (111) (und andere Positionen) zum reziproken Gitter der magnetischen Atome gehören. Dies ist nur möglich, sofern die Innenzentrierung der nuklearen Struktur nicht in der magnetischen Struktur enthalten ist, d. h. die Untergitter der Eck- bzw. Zentralatome (siehe auch Bild 4.1 auf Seite 38) bilden nichtäquivalente magnetische Strukturen. Es sind allerdings nicht viele Beispiele einer solchen Struktur bekannt.

Um die verbliebenen Fragen zu klären und damit die Probleme der Struktur-anpassung zu lösen, war ein Experiment nötig, welches die Frage überlappender antiferromagnetischer Satelliten klären kann. Dazu war eine deutlich höhere q -Auflösung als am D23 in der verwendeten Konfiguration nötig.

4.1.2 Magnetische Satelliten bei tiefster Temperatur (PANDA)

Um die Frage überlappender Satelliten zu beleuchten, wurde ein Experiment am PANDA-Spektrometer durchgeführt. Dieses Dreiachsenspektrometer für kalte Neutronen am Forschungsreaktor FRM-II in Garching wurde von unserer Arbeitsgruppe⁵ entwickelt und gebaut. Die nötige \vec{q} -Auflösung, um mögliche Satelliten trennen zu können, wurde durch starke Kollimation des Primärstrahles⁶ und eine kleine Blende im Primärstrahl erreicht. Die Verwendung kalter Neutronen mit einer Wellenlänge von $\lambda = 4.188 \text{ \AA}$ vergrößerte gegenüber dem Experiment am D23 die Streuwinkel und damit auch die Auflösung deutlich. Die Probe wurde wie in vorherigen Experimenten so eingebaut, dass eine $(H H L)$ -Streuebene realisiert wurde. Für dieses Experiment wurde ein $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Entmischungskryostat verwendet. Aufgrund von Regelproblemen konnten nur wenige Temperaturen ($T = 0.05; 0.8; 1.9; 2.5; 5.5 \text{ K}$) stabilisiert und für Messungen verwendet werden. Allerdings ist bei jeder dieser Temperaturen die Probe in einem stabilen Zustand und nicht in der Nähe eines Phasenüberganges.

Bild 4.8 zeigt zwei Rockingscans bei $T = 0.8 \text{ K}$ und 1.9 K an den Positionen der antiferromagnetischen Satelliten $(0.27 \ 0.27 \ 0.51)$ und $(0.73 \ 0.73 \ -0.51)$. In der Tieftemperaturphase bei $T = 0.8 \text{ K}$ werden *zwei* Reflexe beobachtet. Diese sind für den Fall (a) auch gut separiert, im Fall (b) tritt schon eine starke Überlagerung auf. Die Position des zusätzlichen Reflexes entspricht einem Propagationsvektor von $(0.27 \ 0.27 \ 0.49)$. Bei $T = 1.9 \text{ K}$, d. h. oberhalb des Lock-In-Phasenüberganges T_L , kann der zusätzliche Reflex nicht mehr nachgewiesen werden. Da die Braggreflexe sehr dicht beieinander liegen, gelang nur bei den Positionen der Reflexe $(0.273$

⁵Arbeitsgruppe Experimentalphysik, Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden

⁶Eine starke Kollimation verringert die Divergenz und erhöht dadurch die Auflösung. Leider wird die Intensität z. T. stark reduziert.

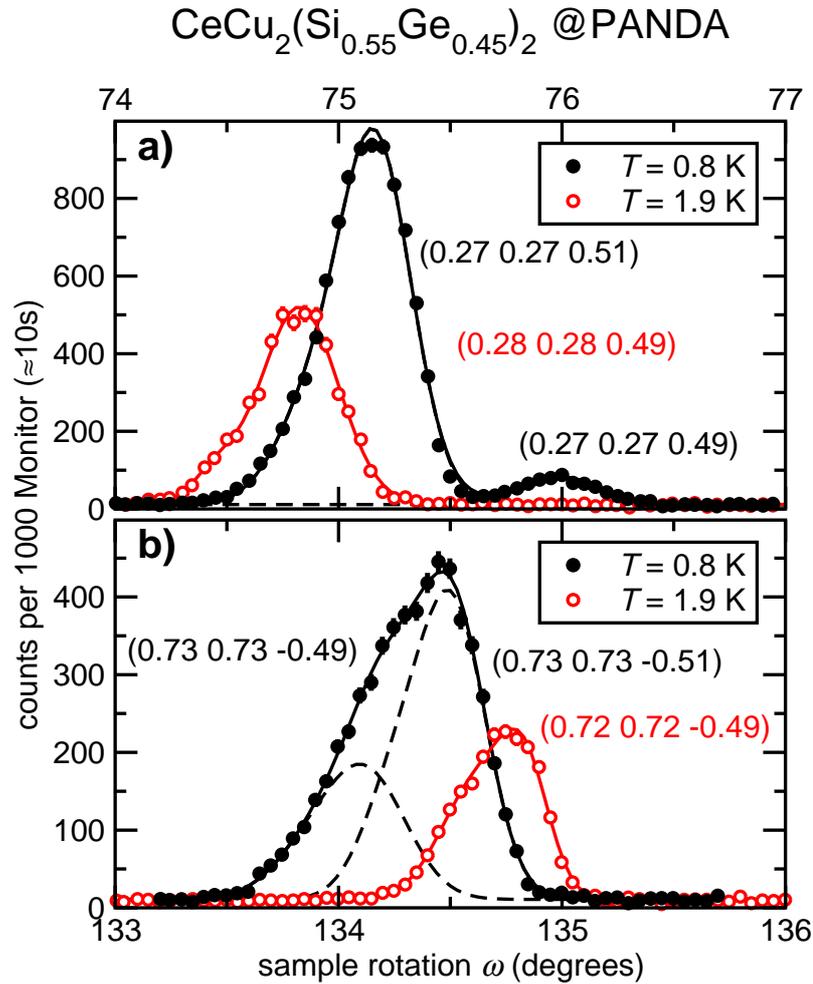


Abbildung 4.8: Überlappung magnetischer Satelliten in der Tieftemperaturphase ($T < T_L = 1.3 - 1.5$ K) von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$, bestimmt am PANDA (FRM-II) bei $\lambda = 4.188$ Å, im Vergleich zu der Mitteltemperaturphase ($T_L < T = 1.9$ K $< T_1 \approx 2.3$ K). Die beitragenden magnetischen Satelliten sind indiziert für die $(0.273 \ 0.273 \ 0.50 \pm 0.01)$ -Position (a) und die $(0.728 \ 0.728 \ 0.50 \pm 0.01)$ -Position (b). Die unterbrochenen Linien geben die einzelnen Satelliten wieder. Bei $T = 1.9$ K ist nur jeweils ein Satellit nachweisbar, während sich bei $T = 0.8$ K zwei antiferromagnetische Satelliten überlagern.

Nr.	Position	Intensität (willk. Einheiten)	Domäne
1	(0.272 0.272 0.51)	472 ± 12	+ + -
2	(0.272 0.272 0.49)	31.4 ± 0.9	+ + +
3	(0.272 0.272 -0.51)	323 ± 8	+ + +
4	(0.272 0.272 -0.49)	46 ± 1	+ + -
5	(0.728 0.728 0.51)	182 ± 5	--- (+ + +)
6	(0.728 0.728 0.49)	92 ± 3	-- + (+ + -)
7	(0.728 0.728 -0.51)	226 ± 6	-- + (+ + -)
8	(0.728 0.728 -0.49)	79 ± 2	--- (+ + +)

Tabelle 4.1: Mittels Gaußfits ermittelte Intensitäten an PANDA untersuchter Reflexe in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ bei $T = 50$ mK. In einem Rockingscan gemessene Reflexe sind gruppiert. Symmetrieäquivalente Reflexgruppen sind durch doppelte Linien getrennt.

0.273 0.51) und (0.728 0.728 0.51) sowie an symmetrieäquivalenten Positionen eine Trennung der beiden beitragenden Satelliten. Die berechnete Aufspaltung an den anderen untersuchten Positionen ist kleiner als die Instrumentauflösung und kann daher nicht direkt beobachtet werden.

Obwohl nur zwei Temperaturen unterhalb T_L stabilisiert werden konnten, war kein Unterschied zwischen den Rockingscans bei $T = 0.05$ K und 0.8 K feststellbar. Die quantitative Analyse der Intensitäten der Satelliten ist jedoch schwierig, da verschiedene Körner in der Probe enthalten sind. Jedoch ist die durch Körner verursachte Reflexverbreiterung von ca. 0.3° kleiner als die Aufspaltung der Reflexe von $\approx 0.8^\circ$ bzw. 0.4° und somit durch Überlagerung von Gaußprofilen modellierbar. Tabelle 4.1 zeigt die so ermittelten Intensitäten der beobachteten Satelliten. Für diese Positionen gilt, dass Reflexe mit $L = x.49$ stets eine kleinere Intensität zeigen als Reflexe mit $L = x.51$. Weiterhin ist die Intensität symmetrieäquivalenter Reflexe nicht gleich. Auch das Verhältnis der Intensität der in einem Rockingscan untersuchten Satelliten ist nicht konstant. Dies widerspricht ganz klar dem Modell zweier sehr ähnlicher Propagationsvektoren (mit $\tau_L = 0.49$ bzw. 0.51). Betrachtet man jedoch ein Modell mit gebrochener magnetischer Innenzentrierung, so treten

aufgrund der P4/mmm Struktur Satelliten aller $(H K L)$ -Punkte auf, deren Indizes durch ganze Zahlen gegeben sind⁷. Eine P4/mmm Struktur hat jedoch eine verkleinerte Brillouin-Zone. Somit liegt in diesem Fall nur der Propagationsvektor $(0.272 \ 0.272 \ 0.49)$ innerhalb der ersten Brillouin-Zone, sodass eine Veränderung der bisherigen Indizierung vorgenommen werden muss. Die in Tabelle 4.1 wiedergegebene Domänenbezeichnung spiegelt dies bereits wieder. Die Domänenbezeichnung gibt für jede Komponente des Propagationsvektors an, ob sie addiert (+) oder subtrahiert (–) werden muss, um die Position des Satelliten $(H \pm \tau_H; K \pm \tau_H; L \pm \tau_L)$ ausgehend von dem reziproken Vektor $(H K L)$ zu erhalten. Aufgrund des Friedel'schen Gesetzes lassen sich immer die zwei Domänen zusammenfassen, bei denen alle Vorzeichen invertiert sind. Somit fallen beispielsweise die Domänen '– – –' und '– – +' mit den Domänen '+ + +' und '+ + –' zusammen (in Tabelle 4.1 in Klammern dargestellt). Die beobachteten Intensitätsunterschiede lassen sich jetzt sehr gut auf eine unterschiedliche Domänenbesetzung zurückführen: Die mit '+ + +' gekennzeichnete Domäne ist nur $\approx 75\%$ so stark besetzt, wie die '+ + –' Domäne. Des Weiteren stimmen die Verhältnisse der Intensitäten $(4)/(1)$ und $(2)/(3)$ sowie $(8)/(5)$ und $(6)/(7)$ jeweils sehr gut überein:

$$\frac{I(4)}{I(1)} = \frac{I(2)}{I(3)} \approx \frac{1}{10} \quad \text{und} \quad \frac{I(8)}{I(5)} = \frac{I(6)}{I(7)} \approx \frac{5}{12} . \quad (4.5)$$

Diese Übereinstimmung kann als weiteres Indiz für das Modell P4/mmm und die o. a. ungleiche Domänenbesetzung gewertet werden.

Die geringen noch auftretenden und noch nicht erklärten Abweichungen der Intensitäten können verschiedene Ursache haben: Die wahrscheinlichste Ursache ist eine ungleichmäßige Probenbeleuchtung aufgrund der kleinen Primär- und Sekundärstrahlblenden. Auch könnten die Domänen nicht gleichmäßig verteilt, sondern 'lokalisiert' auftreten, sodass die gestreuten Neutronen unterschiedlich lange Wege durch die Probe nehmen und aufgrund der Absorption die Intensität modifizieren. Schließlich könnten die Beiträge der beobachteten Körner evtl. nicht gut genug getrennt worden sein.

Zusammenfassend lassen sich jetzt die im D23-Experiment (siehe Kapitel 4.1.1

⁷ In der I4/mmm Struktur treten nur reziproke Gitterpunkte $(H K L)$ mit $H + K + L = 2n$ und $n \in \mathbb{Z}$ auf, in der P4/mmm Struktur entfällt die Bedingung.

ab Seite 43) erhaltenen Ergebnisse besser verstehen: Durch die Überlagerung jeweils zweier Satelliten aus unterschiedlichen Domänen mittelt sich die Intensität, sodass die Daten eher auf eine Gleichbesetzung der Domänen deuten. Zum anderen ergibt sich bei der Positionsbestimmung eine durch die Intensitäten gemittelte Position, wodurch die beobachtete Variation der L Komponente des Propagationsvektors von $\tau_L = 0.49 - 0.51$ verstanden werden kann.

Der am D23 ermittelte Datensatz wurde daraufhin erneut untersucht. Aufgrund der Auflösung am D23 überlagern sich jeweils zwei Satelliten, sodass eine Struktur Anpassung nur gelingen kann, wenn die Summe der berechneten Intensitäten mit den gemessenen verglichen wird.

Eine Anpassung aller untersuchten Reflexe findet jedoch als beste Lösung eine kollineare Struktur mit $I4/mmm$ und $\tau = (0.27 \ 0.27 \ 0.51)$. Da in der Tieftemperaturphase aber zusätzliche Satelliten auftreten, kann dieser Strukturvorschlag ausgeschlossen werden. Die Frage nach der magnetischen Struktur bleibt also weiterhin offen. Hierfür muss herausgefunden werden, ob das Modell $P4/mmm$ oder zwei verschiedene Propagationsvektoren die magnetische Struktur korrekt beschreiben.

Um diese Frage zu klären, eignet sich die resonante magnetische Röntgenstreuung⁸, da sie zur Neutronenstreuung komplementäre Informationen über die Momentrichtungen enthält. Daher wurde schon zeitig ein Experiment am Synchrotronzentrum ESRF⁹ in Grenoble durchgeführt.

4.1.3 Komplementäre Informationen: XRMS (ID20)

Das Synchrotron der ESRF erzeugt sehr intensive Röntgenstrahlen. Da keine Erfahrungen bzgl. auftretender Heizeffekte bei einem Synchrotronexperiment vorhanden waren, wurde eine in-situ Bestimmung der Proben temperatur angestrebt.

Der elektrische Widerstand in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ ist unterhalb $T_N \approx 3.1$ K sehr stark temperaturabhängig (siehe auch Referenz (Steglich96a)), daher eignet sich die Probe selbst als Thermometer. Eine dünne, einkristalline Scheibe mit der Oberfläche senkrecht zur kristallographischen c -Achse wurde mit GE so auf einen Probenhalter aus Kupfer aufgeklebt, dass eine $(H \ H \ L)$ -Streuebene realisiert wur-

⁸in der Fachliteratur auch als ‘X-ray resonant magnetic scattering’ bezeichnet

⁹European Synchrotron Radiation Facility

de. Die elektrische Kontaktierung der Probe erfolgte in Vierpunkttechnik, zur elektrischen Isolation wurde eine dünne Lage Zigarettenpapier zwischen Probe und Probenhalter eingeklebt.

In einem ^3He -Kryostaten kühlte die Probe auf den anvisierten Temperaturbereich $700 \text{ mK} \leq T \leq 4 \text{ K}$ ab. Der Kryostat war an einem Vierkreisgoniometer befestigt, wie es oft für Röntgenstreuexperimente verwendet wird. Der horizontal polarisierte, monochromatische Photonenstrahl tritt durch Berylliumfenster in den Kryostat und trifft dann auf die Probe. In der horizontalen Streuebene befindet sich auch der Detektor mit Polarisationsanalysator, welcher alternativ die horizontal oder vertikal polarisierten Photonen erfasst. Auf diese Art kann sowohl der $\pi - \pi$ - als auch der $\pi - \sigma$ -Streukanal gemessen werden. Zur Verstärkung des bei nichtresonanter magnetischer Röntgenstreuung sehr schwachen Signals wurde die Resonanz an der Cer- L_{II} -Absorptionskante benutzt. An der Cer- L_{III} -Kante konnte keine Resonanz nachgewiesen werden.

Zur Abschätzung des Heizeffektes wurde bei abgeschaltetem Photonenstrahl eine temperaturabhängige Messung des elektrischen Widerstandes der Probe durchgeführt. Bild 4.9 zeigt die so erhaltene Kalibrierungsmessung des elektrischen Widerstandes in Abhängigkeit von der Temperatur. Die relativ große Widerstandsänderung zeigt, dass durch Verwendung der Probe als Thermometer eine gute Bestimmung der (mittleren) Proben­temperatur möglich ist.

Zuerst wurde die Probe auf Basistemperatur $T \approx 0.73 \text{ K}$ abgekühlt. Nach dem Einschalten des Röntgenstrahles stieg der Widerstand sehr stark an. Dies zeigte eine erhöhte Proben­temperatur außerhalb des gewünschten Temperaturbereichs (unterhalb $T_{\text{L}} \approx 1.3 \text{ K}$) an. Daher wurde ein Strahlabschwächer (Attenuator) in den Strahlengang gebracht und damit die Intensität des Primärstrahles soweit reduziert, bis die durch in-situ Messung bestimmte mittlere Proben­temperatur nur ca. 100 mK oberhalb der Basistemperatur lag. Aufgrund der stark reduzierten Intensität (ca. Faktor 150 durch den Strahlabschwächer) und der sehr guten q Auflösung war die Suche nach dem magnetischen Satelliten sehr aufwändig. Nachdem der magnetische $(-1.27 -1.27 6.49)$ Reflex im $\pi - \sigma$ -Streukanal gefunden wurde, erfolgte eine systematische Variation des Strahlabschwächers, um einen Wert zu finden, bei dem

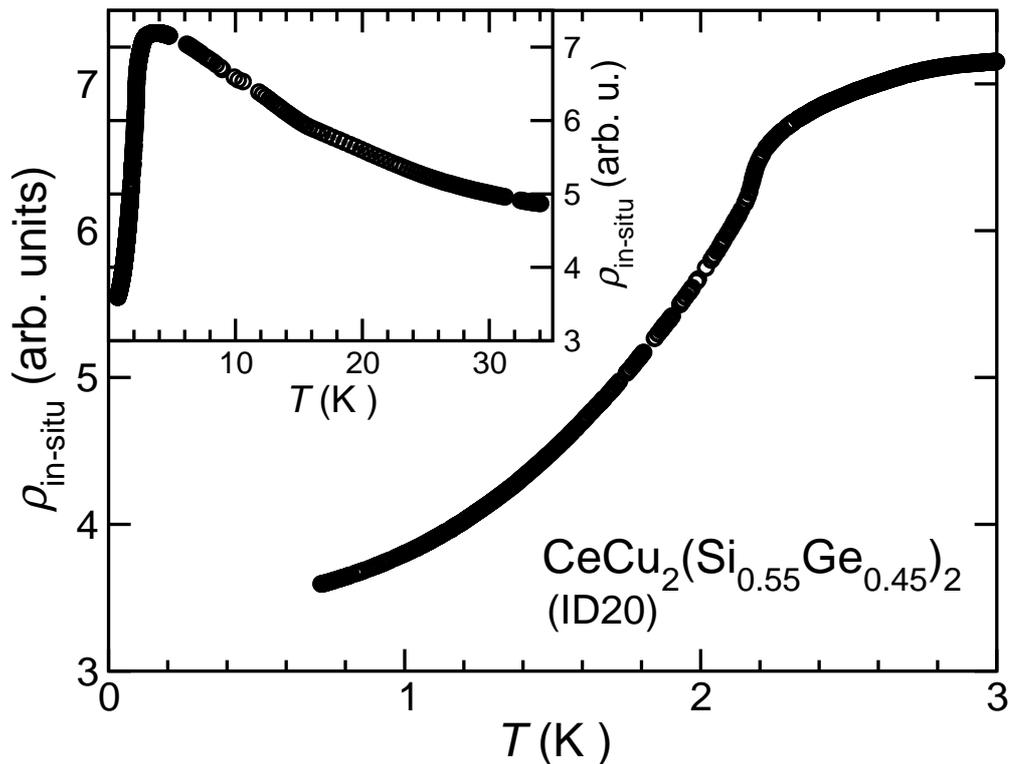


Abbildung 4.9: In-situ Kalibrierungsmessung des elektrischen Widerstandes $\rho(T)$ von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ am ID20 ohne Primärstrahl. Die kleine Grafik zeigt den gesamten untersuchten Temperaturbereich.

die Strahlheizung genügend klein, jedoch die gestreute Intensität möglichst groß ist.

Bild 4.10 soll das verwendete Verfahren verdeutlichen. Die Intensität des Primärstrahles nach dem Strahlabschwächer wurde mittels eines Primärstrahlmonitors bestimmt. Die gestreute Intensität des magnetischen Satelliten (-1.27 -1.27 6.49) ist in Bild 4.10a über der Stärke des Primärstrahles aufgetragen, der simultan ermittelte elektrische Widerstand der Probe in Teilbild 4.10b. Korreliert man jetzt den elektrischen Widerstand mit der Kalibrierungsmessung aus Bild 4.9 (Teilbild 4.10c), so erhält man eine ‘gemittelte Probentemperatur’. Über dieser Temperatur lässt sich jetzt wieder die gestreute Intensität auftragen (Teilbild 4.10d).

Der Betriebsmodus (16-bunch) des Synchrotrons bedingt eine starke zeitliche Variation der Primärintensität um einen Faktor ≈ 2.1 . Daher wurde nicht einfach die höchste Primärstrahlintensität gewählt, bei der noch magnetische Intensität

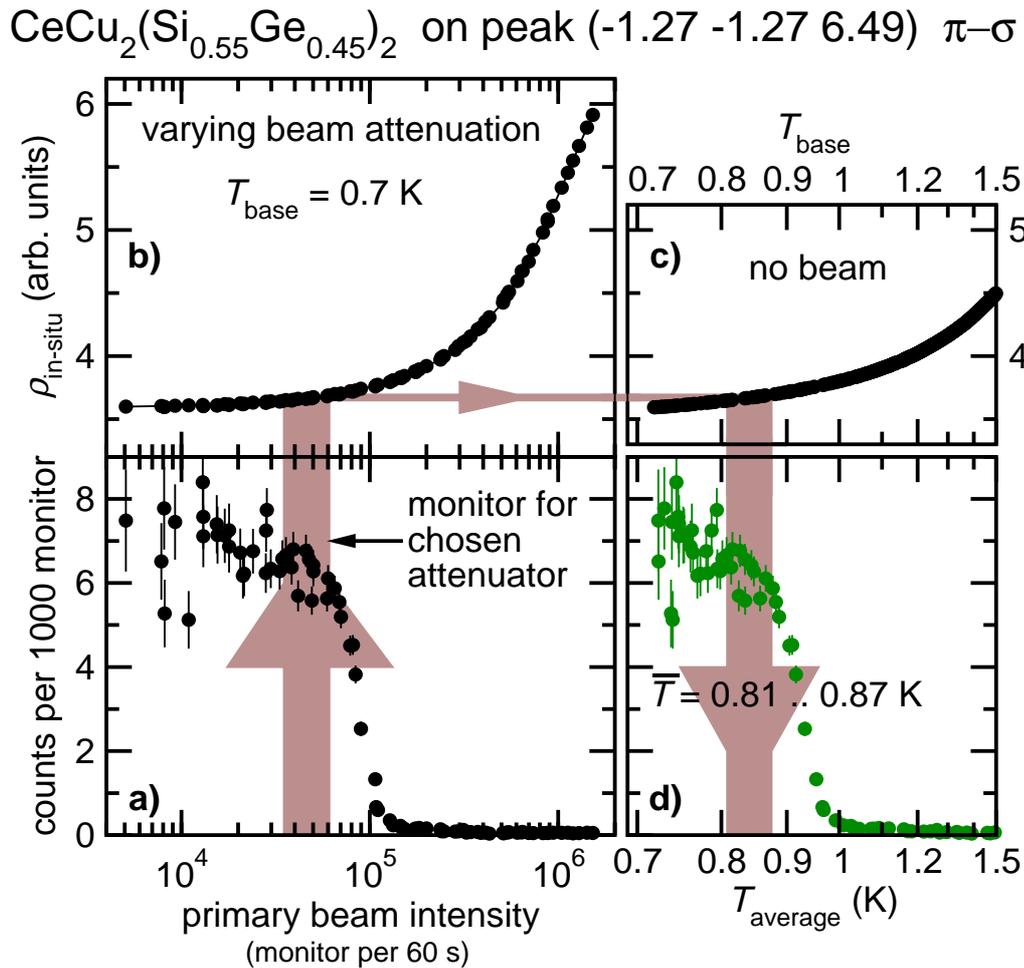


Abbildung 4.10: a) Intensität des magnetischen $(-1.27 -1.27 6.49)$ Satellitenreflexes und b) simultan ermittelter Probenwiderstand aufgetragen über der Strahlintensität nach dem Strahlabschwächer, c) Referenzmessung des elektrischen Widerstandes ohne Bestrahlung der Probe, d) Intensität des magnetischen Satelliten über der extrapolierten gemittelten Proben temperatur. Details siehe Text.

nachweisbar war. Stattdessen wurde der Strahlabschwächer so eingestellt, dass die Probe immer in dem Temperaturbereich ist, in dem magnetische Streuung beobachtet wird. Diese Einstellung entspricht dem farblich markierten Bereich in Bild 4.10, wodurch auch die Variation der Primärstrahlintensität sehr gut sichtbar wird. Der verwendete Strahlabschwächer führt nur noch zu einer Schwächung des Pri-

	min	max
Primärintensität (s^{-1})	$4.0 \cdot 10^5$	$8.5 \cdot 10^5$
Monitor nach Strahlabschwächer (s^{-1})	$3.1 \cdot 10^4$	$6.5 \cdot 10^4$
normierte Streuintensität	$5.5 \cdot 10^{-3}$	$7.0 \cdot 10^{-3}$
Widerstand (willk. Einh.)	3.6475	3.6945
mittlere Proben­temperatur (K)	0.808	0.874

Tabelle 4.2: Bandbreite experimentell wichtiger Größen nach Optimierung des Strahlabschwächers.

märstrahles um etwa den Faktor 50. Die Eckdaten dieses Bereiches sind in Tabelle 4.2 kurz zusammengefasst. Durch die Optimierung des Strahlabschwächers wurde zwar die Temperatur im Streuvolumen leicht erhöht, aber die Intensität konnte um den Faktor 3 gesteigert werden. Mit dem so optimierten Aufbau konnten weitere Untersuchungen durchgeführt werden.

Nach Wechseln der Polarisationsanalyse auf $\pi - \pi$ -Geometrie war auch die magnetische Intensität des (-0.27 -0.27 6.49)-Satelliten nicht mehr nachweisbar. Dafür wurde, nach einigem Suchen, Intensität auf der Position (-0.27 -0.27 6.51) nachgewiesen. Diese Positionen sind kompatibel zu den am PANDA beobachteten (siehe Kapitel 4.1.2 ab Seite 52).

Um Artefakte auszuschließen, wurde an beiden Positionen für jede Polarisation ein Resonanzscan durchgeführt. Dazu wurde die Energie der Röntgenstrahlung variiert, um den Resonanzeffekt nachzuweisen. Bild 4.11 zeigt den so nachgewiesenen Resonanzeffekt der magnetischen Satelliten (-0.27 -0.27 6.51) und (-0.27 -0.27 6.49). Überraschenderweise zeigt der magnetische (-0.27 -0.27 6.51)-Satellit nur im $\pi - \pi$ -Streukanal Intensität. Im Gegensatz dazu ist der (-0.27 -0.27 6.49)-Reflex nur im $\pi - \sigma$ -Streukanal nachweisbar. Des Weiteren wurde in Azimutscans¹⁰ keine systematische Intensitätsänderung gefunden. Dies kann als Indiz gewertet werden, dass die Spinanordnung nicht planar oder koaxial ist.

Aus früheren Experimenten ist bekannt, dass verschiedene magnetische Phasen unterhalb von T_N auftreten. Weiterhin wurde bereits die Aufheizung der Pro-

¹⁰Dabei wird die Probe um den Streuvektor als Drehachse gedreht.

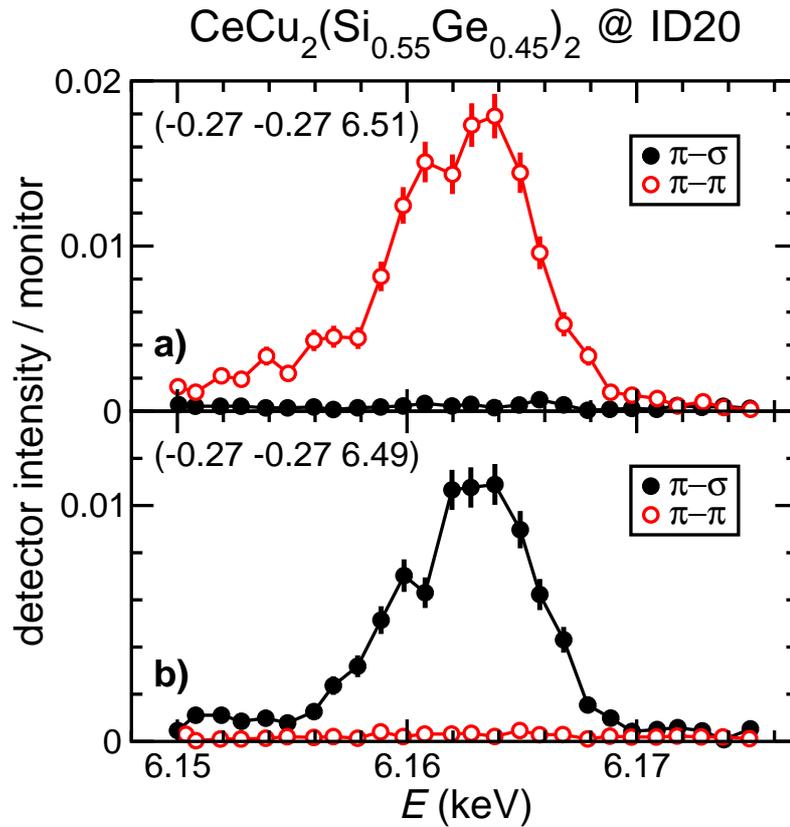


Abbildung 4.11: Die Intensität der magnetischen Satelliten $(-0.27 -0.27 6.51)$ (a) und $(-0.27 -0.27 6.49)$ (b) für beide Streukanäle in Abhängigkeit von der Photonenenergie bei $T_{\text{average}} = 0.81$ K. Die Intensitätsverstärkung durch den Resonanzeffekt ist deutlich sichtbar.

be durch den intensiven Röntgenstrahl diskutiert. Für die weitere Betrachtung ist es daher sehr wichtig zu wissen, ob die beiden beobachteten Satelliten aus der gleichen Phase stammen. Hierzu wurden bei verschiedenen (ansteigenden) Basistemperaturen Rockingscans über beide Reflexpositionen durchgeführt. Bild 4.12 zeigt die mittels Gaußfits gewonnene Intensität beider Reflexe in Abhängigkeit von der mittleren Proben temperatur T_{average} , die wie zuvor über den in-situ ermittelten Widerstand bestimmt wurde. Aufgrund von Regelproblemen konnte die Basistemperatur des Kryostaten nur in Stufen variiert werden. Die jeweils bestimmte gemittelte Proben temperatur betrug $T_{\text{average}}^{\pi-\pi} = 0.80; 0.99; 1.08; 1.13$ K sowie

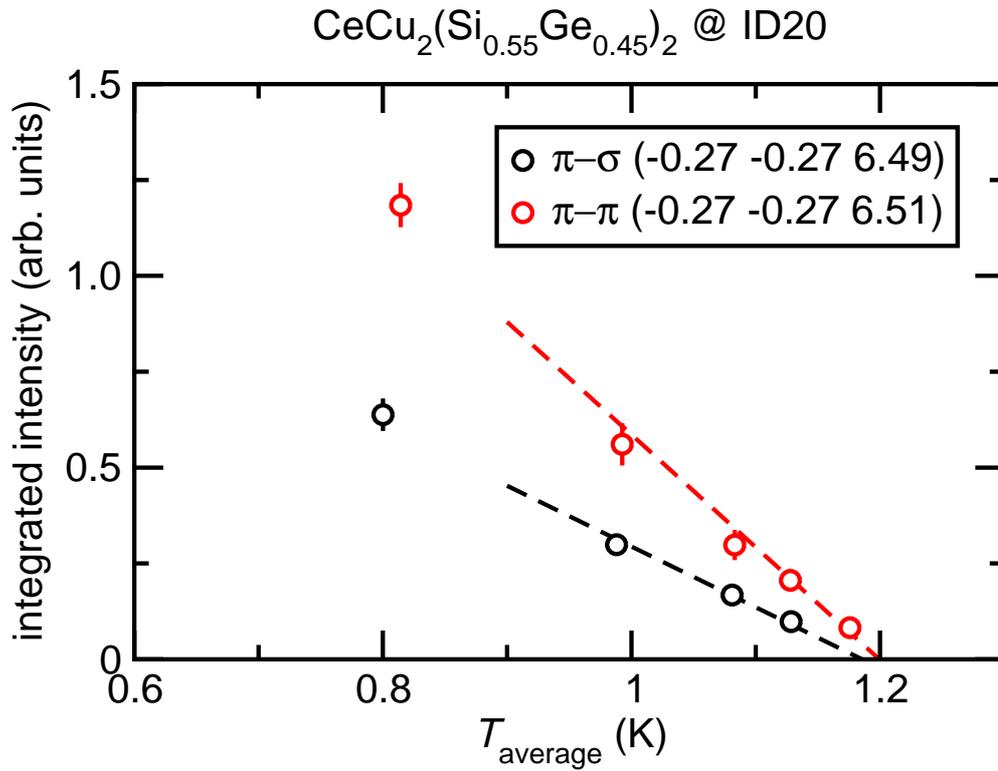


Abbildung 4.12: Durch Rockingscans bestimmte magnetische Intensität in Abhängigkeit von der mittleren Temperatur T_{average} . Die Intensität beider Reflexe verschwindet bei der gleichen Temperatur $T \approx 1.2$ K, sie stammen also aus der gleichen Phase.

$T_{\text{average}}^{\pi-\sigma} = 0.81; 0.99; 1.08; 1.13; 1.18$ K. Die Intensitäten beider Reflexe fallen linear mit wachsender Temperatur, um schließlich bei einer extrapolierten Temperatur von $T \approx 1.2$ K zu verschwinden. Da beide Reflexe bei der gleichen Temperatur verschwinden, ist davon auszugehen, dass sie derselben magnetischen Phase entspringen. Da bereits ausgeschlossen wurde, dass die zwei beobachteten Satelliten aufgrund von zwei leicht unterschiedlichen Propagationsvektoren auftreten, muss noch der Fall einer reduzierten Symmetrie der magnetischen Struktur (Modell P4/mmm) untersucht werden.

Betrachtet man Gleichung (3.26) in Kapitel 3.1.2 auf Seite 23, so stellt man fest, dass die Intensität im $\pi - \sigma$ -Kanal für eine Momentanordnung senkrecht zur Streu-

ebene spricht (also $\vec{m} \parallel [1 \bar{1} 0]$). Wie bereits in Kapitel 4.1.2 ab Seite 52 gezeigt, entspringen die beiden beobachteten Satelliten aus zwei verschiedenen Domänen. Diese zwei Domänen gehen jedoch durch eine Spiegelung an der Ebene senkrecht zur $[1 1 0]$ -Richtung ineinander über. Eine solche Spiegelung lässt aber eine Momentrichtung parallel zur $[1 \bar{1} 0]$ -Richtung unverändert. Folglich müsste der zweite Satellit $(-0.27 -0.27 6.51)$ ebenfalls Intensität im $\pi - \sigma$ -Kanal aufweisen. Dies entspricht nicht der Beobachtung: dieses Ergebnis schließt die Möglichkeit einer planaren oder coaxialen Spinanordnung aus. Somit müssen die magnetischen Momente in einer nicht-kollinearen Struktur vorliegen, welche kein magnetisches Innenzentrum hat und dennoch alle beobachteten Satelliten generiert.

Ausgehend von ähnlichen Ergebnissen für Gadoliniumverbindungen in (Kreyssig), bei denen die magnetischen Momente in Form ineinander geschachtelter Spiralen mit gegenläufigem Drehsinn vorliegen, wurde ein solches Modell für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ ausgearbeitet. Für die Zuordnung der magnetischen Cer-Atome zu den zwei magnetischen Untergittern gilt, dass die Eckatome dem einen Untergitter und die Zentralatome dem anderen Untergitter zuzuordnen sind. Dies lässt sich auch als eine zweiatomige Basis magnetisch nichtäquivalenter Atome in einem primitiv tetragonalen Gitter $P4/mmm$ beschreiben. Dabei stellte sich heraus, dass durch das Ineinanderstapeln der Spiralen, unter Berücksichtigung der magnetischen Domänen, die Intensitäten im $\pi - \sigma$ - bzw. $\pi - \pi$ -Kanal bei den beobachteten Satelliten vertauschen sollten, was genau der Beobachtung entspricht. Die magnetische Struktur zerfällt also in zwei ineinander geschachtelte, primitiv tetragonale Gitter, auf denen die magnetischen Momente jeweils spiralartig angeordnet sind, wobei der Drehsinn der Spiralen alterniert.

Nach der Klärung der Anordnung der magnetischen Momente reduzierten sich die offenen Fragen jetzt auf die Momentrichtungen. Daher wurde, unter Berücksichtigung der neu gefundenen Bedingungen, eine erneute Anpassung der Neutronenstreudaten vorgenommen.

4.1.4 Lösung der magnetischen Struktur

In keinem der Experimente wurden höhere harmonische Satellitenreflexe beobachtet. Folglich muss die magnetische Struktur allein mit einfachen Sinus- und Kosinus-Funktionen des Produktes aus Propagationsvektor $\vec{\tau}$ und Ort \vec{r} modelliert werden können. Das magnetische Moment μ am Ort \vec{r} muss sich daher wie folgt beschreiben lassen:

$$\vec{\mu}(\vec{r}) = \vec{\mu}_0 \cdot \sin(\vec{r} \cdot \vec{\tau}) + \vec{\mu}_1 \cdot \cos(\vec{r} \cdot \vec{\tau}) \quad . \quad (4.6)$$

Hierbei spannen die beiden Parameter $\vec{\mu}_0$ und $\vec{\mu}_1$ die Ebene auf, in der das magnetische Moment rotiert und der Propagationsvektor $\vec{\tau}$ gibt an, mit welcher Raumfrequenz und in welcher Richtung sich die Struktur wiederholt. Für Spiralen geht man üblicherweise von $|\vec{\mu}_0| = |\vec{\mu}_1|$ aus, sodass der Betrag des magnetischen Momentes immer gleich ist und sich nur seine Richtung ändert. Als Spezialfälle bekannt sind die transversale Spirale (meist einfach nur Spirale genannt) bei der $\vec{\tau} \perp \vec{\mu}_0 \perp \vec{\mu}_1 \perp \vec{\tau}$ gilt, die Zykloide mit $\vec{\tau} \parallel \vec{\mu}_0 \perp \vec{\mu}_1 \perp \vec{\tau}$ und die transversale/longitudinale Sinusmodulation mit $\vec{\mu}_1 = 0$ und $\vec{\mu}_0 \perp \vec{\tau}$ (transversal) bzw. $\vec{\mu}_0 \parallel \vec{\tau}$ (longitudinal). Mit diesem Ansatz in Gleichung (4.6) lassen sich also alle antiferromagnetischen Strukturen darstellen, die keine höheren harmonischen Satelliten zeigen.

Wie durch das Experiment ID20 bekannt, muss die magnetische Struktur spiralarartig sein, d. h. $\vec{\mu}_0 \neq 0$ und $\vec{\mu}_1 \neq 0$ sowie aus zwei ineinander gestapelten Spiralen mit gegenläufigem Drehsinn bestehen. Dies gelingt am besten, wenn man die zwei magnetischen Untergitter beispielsweise den Eck- bzw. Zentralatomen der I4/mmm-Struktur zuordnet, also eine zweiatomige Basis $(000) + (\frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \ \frac{1}{2})$ in einem primitiv tetragonalen Gitter P4/mmm wählt.

Mit diesem Wissen wurde ein neuer Versuch der Modellanpassung des am D23 bestimmten Datensatzes durchgeführt. Die Anpassung gelang nach Einführung eines zusätzlichen Gewichtes $w \sim \cos(q \cdot 1 \text{ \AA})$ gut¹¹, auch hatte die Auswahl nur eines Teils der Messwerte das (im Rahmen der Fehler) gleiche Ergebnis zu Folge: Die beiden Parameter $\mu_0 \parallel [0.775(5) \ 0 \ 0.635(5)]$ und $\mu_1 \parallel [0 \ 0.830(5) \ 0.555(5)]$ beschreiben eine Zykloide mit der Momentrichtung senkrecht zu $[\overline{10} \ 8 \ 5]$ also fast

¹¹Dies ist wahrscheinlich auf eine (falsche) Überkorrektur der Intensitätswerte zurückzuführen. Das Gewicht w dämpft diesen Effekt, sodass eine Anpassung eher gelingt.

parallel zu $[\bar{2} 2 1]$ (in relativen Gittereinheiten). Der sehr gute Wert $R_w = 3\%$ der Anpassung ($R_w = 8\%$ ohne Gewicht) signalisiert eine sehr gute Übereinstimmung des Modells mit den experimentellen Daten (Jansen94).

Bild 4.13 zeigt eine $[x x y]$ -Ebene der so modellierten magnetischen Struktur, bei der die Richtungen der magnetischen Momente durch rote Pfeile dargestellt sind. Die Berechnung erfolgte als eine kommensurable magnetische Struktur mit einer magnetischen Elementarzelle, die gegenüber der chemischen Elementarzelle in a -Richtung siebenfach und in c -Richtung elffach vergrößert ist. Die magnetische Elementarzelle ist in Bild 4.13 als schwarzer Rahmen dargestellt, die chemische Elementarzelle ist grau gerahmt. Zur besseren Unterscheidung sind die beiden Atome der magnetischen Basis grün bzw. gelb gefärbt. Der zur Darstellung verwendete kommensurable Propagationsvektor $\tau' = ({}^2/7 \ {}^2/7 \ {}^5/11) \approx (0.286 \ 0.286 \ 0.455)$ weicht nur leicht von dem beobachteten Propagationsvektor $\tau = (0.27 \ 0.27 \ 0.49)$ ab, welcher sich kommensurabel nur mit einer deutlich größeren magnetischen Elementarzelle¹² darstellen ließe.

Da die magnetische Struktur nicht länger innenzentriert ist, ergibt sich eine Verkleinerung der ersten Brillouin-Zone (d. h. der Wigner-Seitz-Zelle des reziproken Gitters). Der Unterschied ist in Bild 4.14 dargestellt. Die normale Brillouin-Zone der innenzentrierten Struktur ist in rot dargestellt, die reduzierte Brillouin-Zone in blau. Da sich die reduzierte Brillouin-Zone nur noch von $-\bar{c}^*/2$ bis $\bar{c}^*/2$ erstreckt (blau) statt von $-\bar{c}^*$ bis \bar{c}^* (rot), liegt der reziproke Vektor $(0.27 \ 0.27 \ 0.51)$ außerhalb und kann somit nicht der Propagationsvektor sein, der per Definition in der Brillouin-Zone liegt. Durch Zurückfaltung in die reziproke Elementarzelle erhält man als Propagationsvektor $\vec{\tau} = (0.27 \ 0.27 \ 0.49)$. Somit ist der am D23 beobachtete ‘Sprung’ der L -Komponente des Propagationsvektors, τ_L , durch die Überlagerung von Satelliten an den Positionen $(x.49)$ und $(x.51)$, sowie die begrenzte Auflösung am D23 hervorgerufen und spiegelt nicht die Physik wieder. Dies erklärt sowohl die Variation der beobachteten Positionen (Kapitel 4.1.1 ab Seite 43), als auch den von 0.49 bzw. 0.51 abweichenden Mittelwert für τ_L . Die L -Komponente des Propagationsvektors ist somit unterhalb von $T_1 \approx 2.3 \text{ K}$ konstant mit $\tau_L = 0.49$.

¹²Entlang der a -Richtung siebenunddreißigfach und entlang der c -Richtung neunundvierzigfach vergrößert: $\tau \approx ({}^{10}/37 \ {}^{10}/37 \ {}^{24}/49)$.

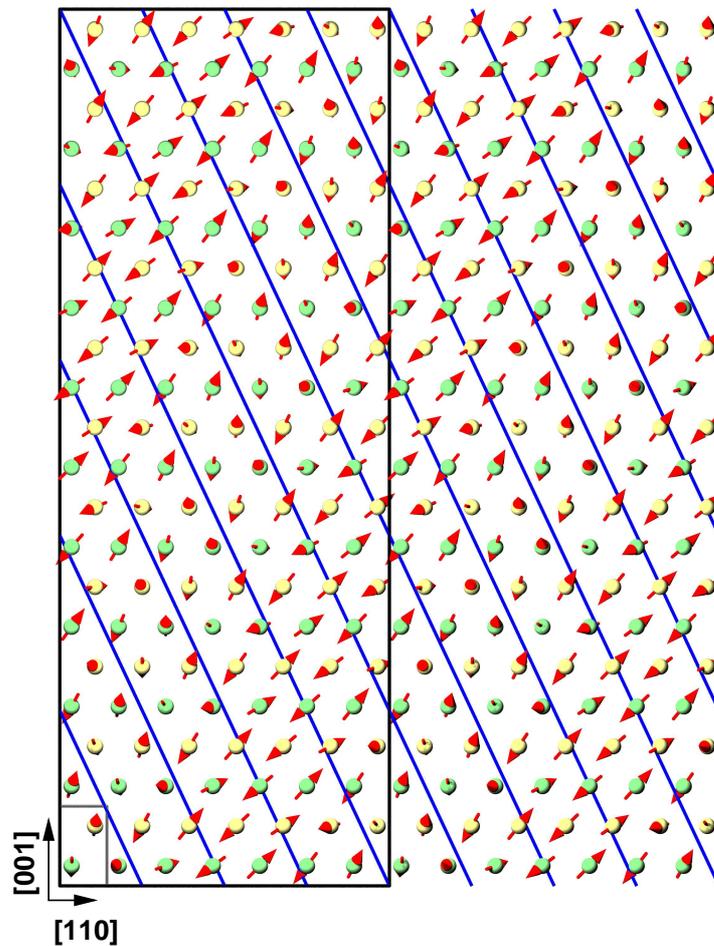


Abbildung 4.13: Schematische Darstellung der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ in der $[x x y]$ -Ebene, berechnet für einen kommensurablen Propagationsvektor $\tau' = (2/7 \ 2/7 \ 5/11)$. Die verwendete magnetische Elementarzelle (schwarz gerahmt) ist gegenüber der chemischen Elementarzelle (grau gerahmt) in a - bzw. c -Richtung siebenfach bzw. elffach vergrößert. Die beiden Basis-Atome sind grün bzw. gelb eingefärbt. Die Orientierung der Momente ist durch rote Pfeile angedeutet. Blaue Linien markieren die Ebenen gleicher geometrischer Phase ($\vec{\tau} \cdot \vec{r} = n * 2\pi$ mit $n \in \mathbb{Z}$), senkrecht dazu findet die Propagation statt. Der Linienabstand entspricht dabei einer Periode.

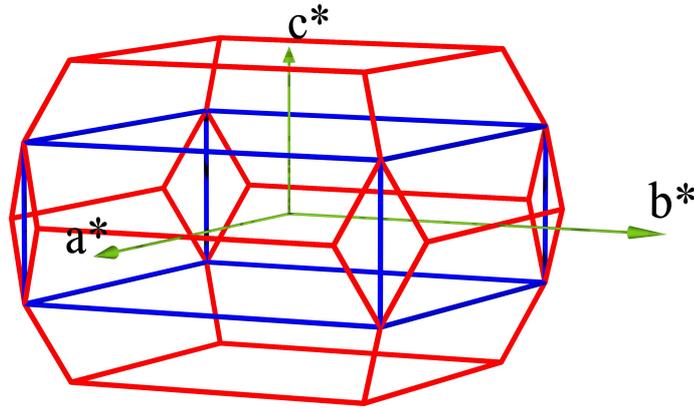


Abbildung 4.14: Schematische Darstellung der Brillouin-Zone in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ (rot) und der reduzierten Brillouin-Zone in der Tieftemperaturphase von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ (blau).

Unter Einbeziehung aller bisher diskutierten Ergebnisse ergibt sich somit die in Bild 4.15 blau dargestellte schematische Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$. Zum besseren Vergleich mit dem früheren Ergebnis ist das Bild 4.15 mit den experimentellen Daten aus Bild 4.7 auf Seite 49 getönt hinterlegt. Der hysteretische Sprung bei $T_L = 1.3 - 1.5$ K wirkt sich nur auf die H Komponente des Propagationsvektors aus, während die L -Komponente konstant bleibt: $\tau_L = 0.49$. Unterhalb von T_L lässt sich die magnetische Struktur nur mit einer primitiv tetragonalen Einheitszelle mit zweiatomiger Basis beschreiben, wobei zwei gegenläufige Zykloiden ein sehr gutes Modell darstellen ($R_w \approx 3\%$). Das mit einem leicht anderen Modell bestimmte geordnete magnetische Moment beträgt $\mu_{\text{ord.}} \approx 0.54 \mu_B$ (Faulhaber04). In dieser magnetischen Phase ist die Brillouin-Zone reduziert und es treten magnetische Satelliten an allen Positionen $(H \pm \tau_H \ K \pm \tau_H \ L \pm \tau_L)$ mit $(H, K, L \in \mathbb{Z})$ auf. Diese können sich aufgrund $\tau_L \approx 1/2$ bei ungenügender Instrumentauflösung überlagern und die Interpretation der Ergebnisse erschweren. Die magnetische Phase oberhalb T_L zeigt diese Symmetrie-Reduktion der magnetischen Struktur nicht und lässt sich mit einer einfachen Zykloide beschreiben mit vergleichbaren Momentrichtungen wie in der Tieftemperaturphase ($R_w \approx 5\%$). Für die Hochtemperaturphase direkt unterhalb T_N liegen bisher keine verwertbaren Daten vor, sodass noch keine Aussagen zur magnetischen Struktur gemacht werden können.

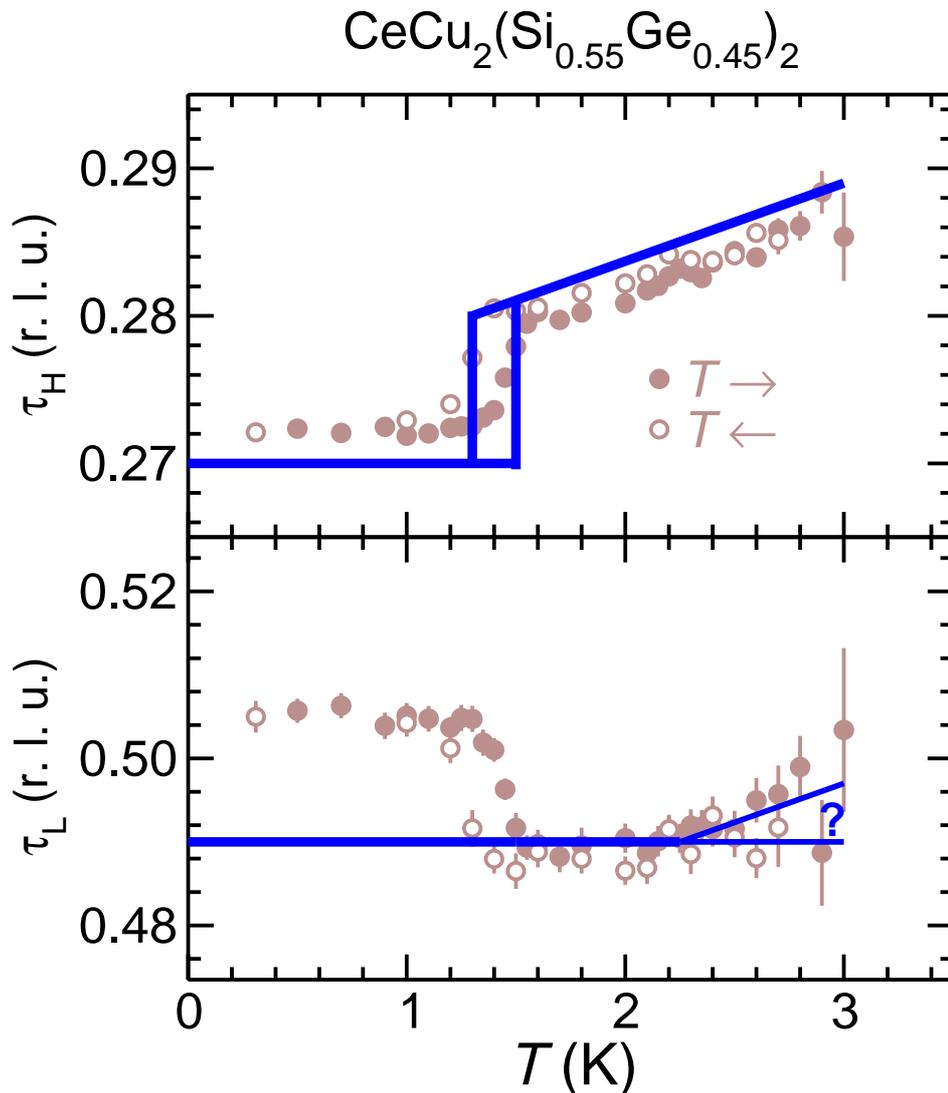


Abbildung 4.15: Schematische Darstellung des Propagationsvektors in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ in Abhängigkeit von der Temperatur. Das Diagramm ist mit den Messdaten (siehe Kapitel 4.1.1 ab Seite 43) hinterlegt. Die L -Komponente des Propagationsvektors ist unterhalb von $T_1 \approx 2.3$ K konstant ($\tau_L = 0.49$). Aufgrund der unzureichenden Auflösung sowie der daraus resultierenden Überlagerung zweier magnetischer Satelliten, ermittelte man aus dem D23-Experiment andere Werte.

4.2 Tetrakritischer Punkt bei $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$?

Im bereits gezeigten Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ (siehe Bild 4.2 auf Seite 39) deutet sich ein ungewöhnliches Verhalten für $x \approx 0.25$ an. Bei dieser Zusammensetzung scheinen die Phasenübergänge entartet zu sein, unterhalb von T_N werden keine weiteren Phasenübergänge beobachtet. Messungen der thermischen Ausdehnung konnten den Phasenübergängen im magnetisch geordneten Zustand Anomalien unterschiedlicher Vorzeichen für $x < 0.25$ und $x > 0.25$ zuordnen (Oeschler05). Erste (Neutronen-)Untersuchungen am System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ wurden von Oliver Stockert bereits vor Beginn dieser Arbeit am Flat-Cone-Diffraktometer E2 im HMI Berlin durchgeführt (Stockert05).

4.2.1 $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$

$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ ordnet antiferromagnetisch unterhalb von $T_N = 2.0$ K mit einem Propagationsvektor $\vec{\tau} = (0.27 \ 0.27 \ 0.53(5))$ (Stockert05). Bild 4.16 zeigt oben (a) die integrale Intensität zweier magnetischer Satellitenreflexe. Die Intensität ist auf den jeweiligen Maximalwert normiert. Das untere Teilbild (b) zeigt die L -Komponente des Propagationsvektors τ_L . Man erkennt keine signifikante Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors. Dies ist in Einklang mit dem aus makroskopischen Messungen erhaltenen Phasendiagramm (siehe Bild 4.3 auf Seite 40), welches für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ keinen Phasenübergang in der magnetisch geordneten Phase anzeigt, und stützt die Annahme eines tetrakritischen Punktes in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$.

Aufgrund des Experimentaufbaus konnte die L -Komponente des Propagationsvektors nicht genauer als $\tau_L = 0.53(5)$ bestimmt werden. Im Rahmen der Auflösung konnte $\tau_H = \tau_K$ bestätigt werden. Die Daten erlauben keine weitere detaillierte Auswertung (magnetische Struktur, etc.), sodass weitere Experimente an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ sehr sinnvoll erscheinen.

Um die Unterschiede zwischen $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ und $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ besser herauszuarbeiten und zu überprüfen, ob eine Extrapolation der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ oder $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ nach $x = 0$ möglich ist, sind Experimente an weiteren Proben sinnvoll, deren Germanium-

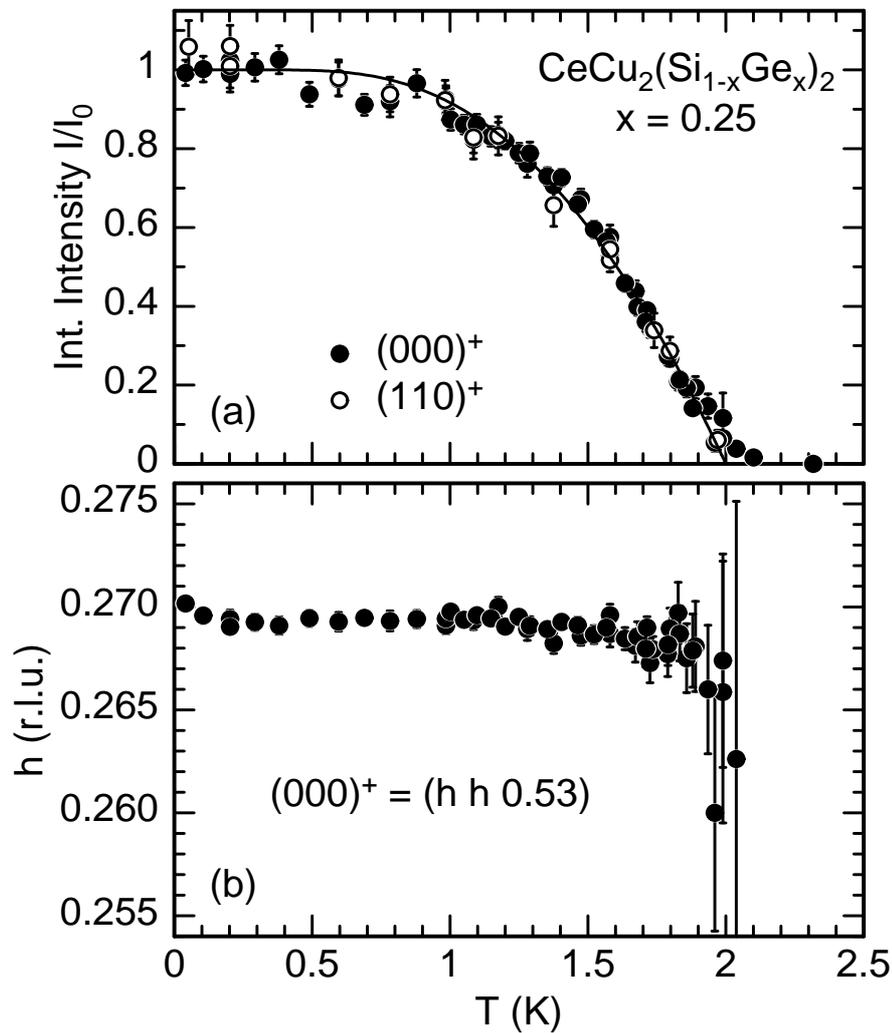


Abbildung 4.16: (a) Integrale Intensität zweier magnetischer Satelliten sowie (b) die H -Komponente des Propagationsvektors ($\tau_H = h$) in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ (Stockert05).

Gehalt x zwischen $x = 0 - 0.25$ bzw. zwischen $x = 0.25 - 0.45$ liegt. Aufgrund der gesteigerten experimentellen Herausforderungen für Proben $x < 0.25$ wurde zunächst eine Probe mit $x = 0.36$ am Instrument D15 des ILL in Grenoble untersucht, gefolgt von einer Probe mit $x = 0.18 < 0.25$ am Instrument D23. In beiden Fällen wurde die Probe in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Entmischungskryostaten (D15) bzw. in

einem ^3He -Kryostaten (D23) so montiert, dass eine $(H H L)$ -Streuebene realisiert wurde. Nach der Bestimmung der Orientierung der Probe wurden ausschließlich Rockingscans bei einer Wellenlänge von $\lambda = 1.174 \text{ \AA}$ (D15) bzw. $\lambda = 1.268 \text{ \AA}$ (D23) durchgeführt.

4.2.2 $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ (D15)

In $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ fand man in makroskopischen Messungen unterhalb von $T_N \approx 3.0 \text{ K}$ nur einen weiteren Phasenübergang bei $T_1 \approx 2.2 \text{ K}$. $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ zeigt im Gegensatz dazu zwei Phasenübergänge unterhalb von T_N , es ist jedoch vom Phasendiagramm her kein großer Unterschied zwischen den Proben mit $x = 0.36$ und $x = 0.45$ zu erwarten.

Im Neutronenstreuexperiment wurden bei tiefster Temperatur $T = 50 \text{ mK}$ magnetische Satelliten gefunden, die mit dem Propagationsvektor $\vec{\tau} = (0.275 \ 0.275 \ 0.54)$ charakterisiert werden können. Diese sind unterhalb einer Néel-Temperatur von $T_N \approx 3.0 \text{ K}$ nachweisbar. Auch in dieser Probe wurde nach höheren harmonischen Reflexen gesucht. Diese traten jedoch nicht auf.

Nimmt man bei tiefster Temperatur eine mit $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ vergleichbare magnetische Struktur an, so ergibt sich (durch die größere Abweichung τ_L von $1/2$) ein signifikanter Unterschied in der Position $\delta\omega$ der Reflexe mit $L = x.46$ bzw. $L = x.54$, welcher deutlich oberhalb der Instrumentauflösung liegt. Satelliten mit $\tau_L = 0.46$ sollten also leicht nachweisbar sein. Trotz intensiver Suche wurden jedoch nur Reflexe passend zu einem Propagationsvektor $(0.275 \ 0.275 \ 0.54)$ gefunden. Somit ist die magnetische Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ bei tiefster Temperatur nicht mit der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ (ebenfalls bei tiefster Temperatur) vergleichbar. Ein besserer Kandidat scheint die Mitteltemperaturphase ($T_L < T < T_1$) von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ zu sein.

Analog zum D23-Experiment an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ wurde anhand zweier magnetischer Satelliten die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors bestimmt. Aufgrund von Körnern in der Probe, von denen einige nukleare Intensität auf Positionen untersuchter magnetischer Satelliten erzeugen, wurden die nicht kontaminierten Satelliten $(0.275 \ 0.275 \ 5.46)$ und $(0.725 \ 0.725 \ 0.54)$ ausgewählt.

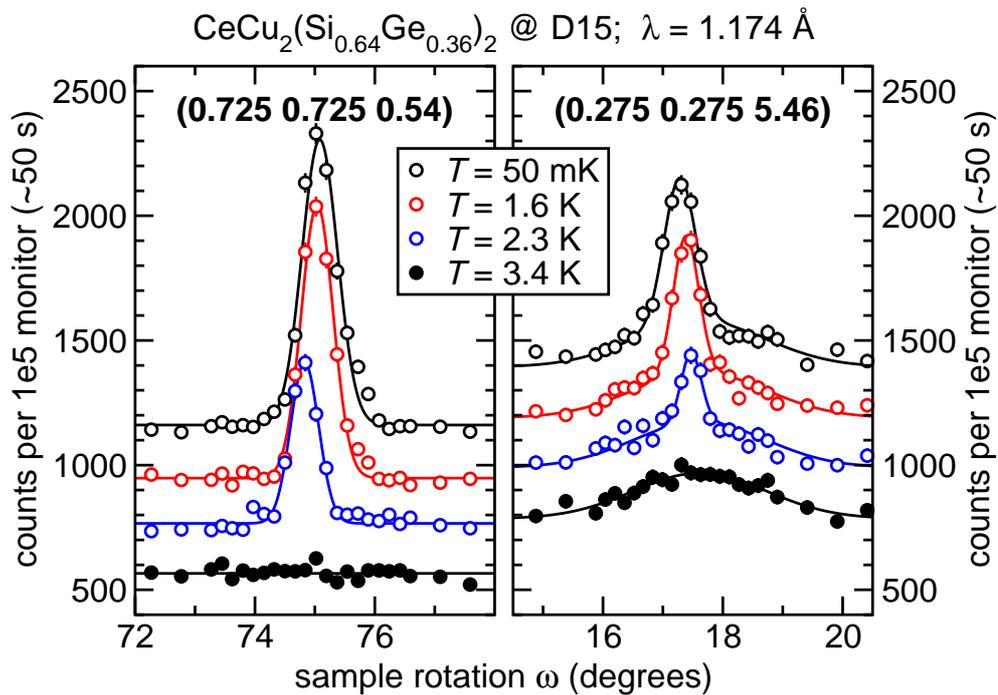


Abbildung 4.17: Rockingscans über die magnetischen (0.275 0.275 5.46)- und (0.725 0.725 0.54)-Satelliten in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ bei ausgewählten Temperaturen. Linien markieren Gaußfits durch die Daten. Zur besseren Unterscheidung sind die Kurven jeweils um 200 Einheiten versetzt. Der Untergrund des (0.275 0.275 5.46)-Reflexes wurde mit einer bei 3.4 K angepassten Gaußkurve approximiert.

Diese Positionen erlauben nur eine reduzierte Genauigkeit bei der Bestimmung des Propagationsvektors mittels Rockingscans. Dies wurde jedoch in Kauf genommen. Aus technischen Gründen konnte die Temperatur nur beim Aufheizen stabilisiert werden, die Temperaturabhängigkeiten wurden daher nur bei steigender Temperatur ermittelt.

Bild 4.17 zeigt Rockingscans über die Positionen (0.275 0.275 5.46) und (0.725 0.725 0.54) bei ausgewählten Temperaturen. Die Daten sind um jeweils 200 Einheiten versetzt, Linien zeigen Gaußfits der Rohdaten. Bei dem (0.275 0.275 5.46)-

Reflex ist ein strukturierter Untergrund nuklearen Ursprungs¹³ zu beobachten. Dieser wurde bei $T = 3.4$ K durch eine Gaußkurve approximiert und bei den anderen Temperaturen anstelle eines konstanten Untergrundes abgezogen. Weiterhin treten auch in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ eine Temperaturabhängigkeit sowohl der Position als auch der Intensität auf.

Die mittels Gaußfits an die Rockingscans ermittelten Parameter Intensität und Position der untersuchten magnetischen Satelliten in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ sind in Bild 4.18 dargestellt. Die grünen Linien deuten die beobachteten Temperaturabhängigkeiten an. Beide Satelliten zeigen eine deutliche Anomalie bei $T_1 \approx 2.2$ K sowohl in der Position als auch der Intensität. Makroskopische Messungen fanden bei dieser Temperatur ebenfalls Anomalien, so dass von einem Phasenübergang auszugehen ist. Der Sprung in der Intensität des (0.275 0.275 5.46)-Satelliten deutet auf einen Spinreorientierungsübergang hin.

Die Position des (0.725 0.725 0.54)-Satelliten weist einen deutlichen Lock-In-Übergang bei $T_L \approx 1.2$ K auf, d. h. die temperaturabhängige Position ist nur unterhalb von T_L konstant. Dieses Verhalten ist vergleichbar mit den Beobachtungen in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$. Da im Gegensatz zu der Probe mit höherem Germaniumanteil kein Sprung bei T_L auftritt, ist die Stärke einer Anomalie in makroskopischen Messungen evtl. so stark reduziert, dass sie unter der Nachweisgrenze liegt.

Aus den ermittelten ω -Positionen lässt sich (analog zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$) die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors bestimmen. Bild 4.19 auf Seite 75 zeigt den aus den Positionen der Satelliten (0.275 0.275 5.46) und (0.725 0.725 0.54) ermittelten Temperaturverlauf des Propagationsvektors (schwarze Symbole).

Es sind zwei Anomalien sichtbar: unterhalb von $T_L \approx 1.2$ K ist der Propagationsvektor konstant: $\vec{\tau} = (0.274(2) \ 0.274(2) \ 0.535(3))$. Zwischen T_L und T_1 scheint nur die L -Komponente temperaturabhängig zu sein, die H -Komponente zeigt eine höchstens sehr schwache Temperaturabhängigkeit. Oberhalb von T_1 sind jedoch beide Komponenten des Propagationsvektors deutlich temperaturabhängig. Durch die Regelprobleme beim Abkühlen kann auch keine Aussage über eine mögliche Hysterese bei T_L gemacht werden.

¹³Die Intensität ändert sich nicht bei T_N .

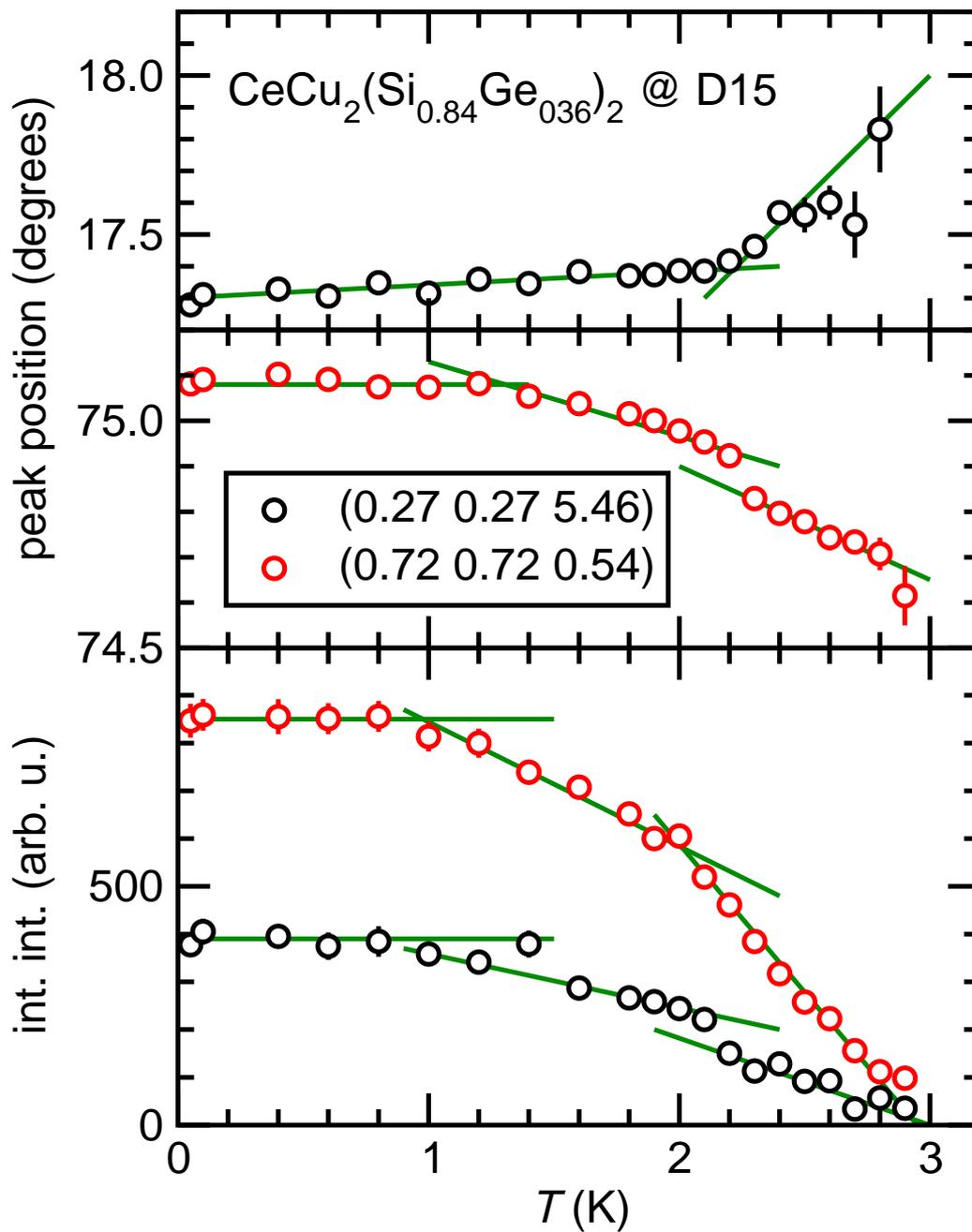


Abbildung 4.18: Intensität und Position der magnetischen (0.275 0.275 5.46)- und (0.725 0.725 0.54)-Satelliten in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$. Die Linien dienen der Orientierung.

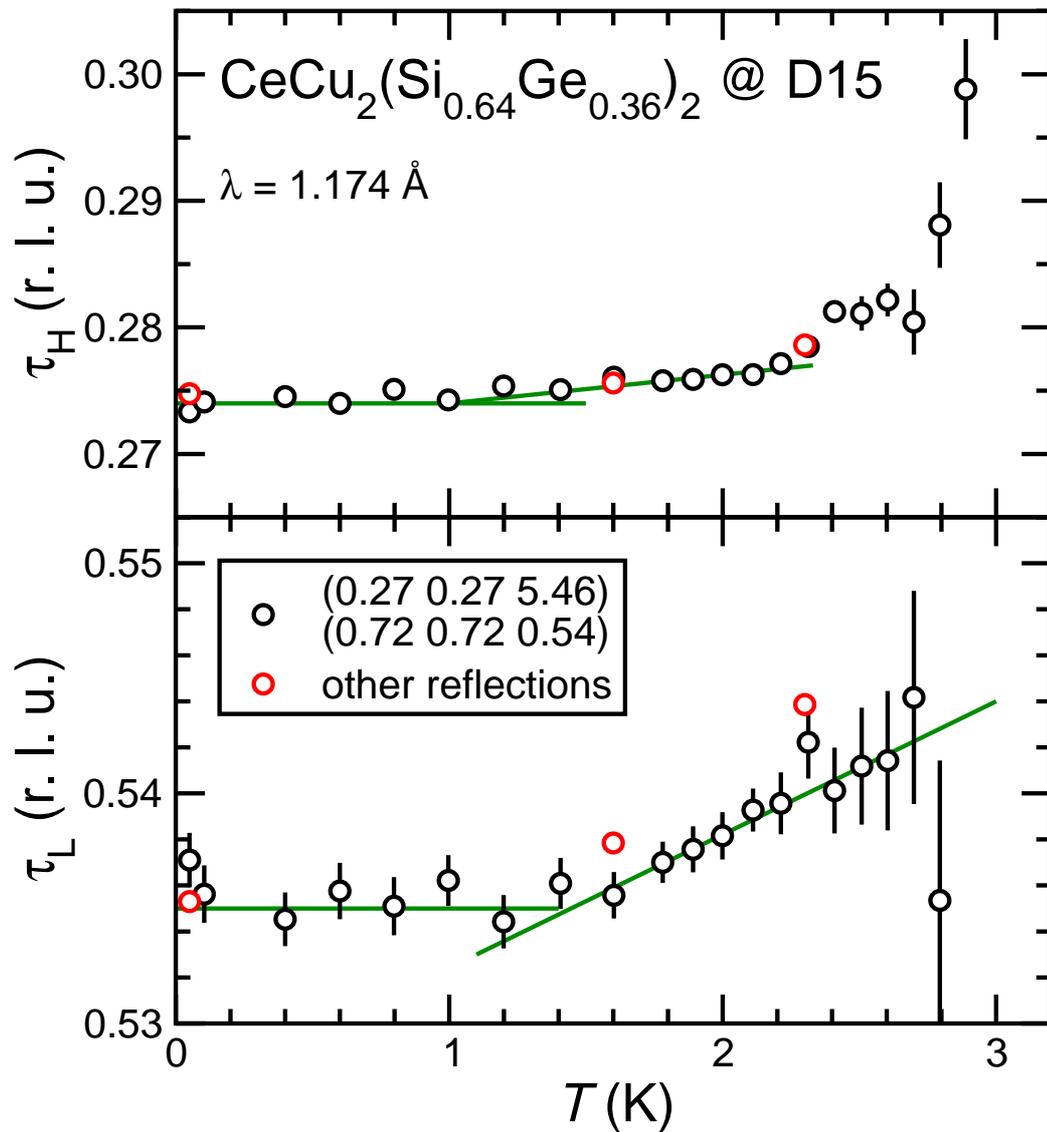


Abbildung 4.19: Propagationsvektor von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$, ermittelt aus den in Bild 4.18 dargestellten Positionen der magnetischen Satelliten $(0.275 \ 0.275 \ 5.46)$ und $(0.725 \ 0.725 \ 0.54)$. Die grünen Linien zeigen schematisch die ermittelte Temperaturabhängigkeit. Die roten Kreise markieren die mittels Multifit aus 30 Reflexen bestimmte mittlere Position bei drei Temperaturen ($T = 0.05; 1.6; 2.3 \text{ K}$).

Innerhalb der ermittelten drei Phasen ($T \leq T_L$; $T_L \leq T \leq T_1$ und $T_1 \leq T \leq T_N$), wurden dann bei 50 mK, 1.6 K und 2.3 K die Intensitäten von 30 magnetischen Satelliten bestimmt, welche nicht durch Körner kontaminiert waren. Mit den simultan ermittelten ω -Positionen wurde der Propagationsvektor bei diesen Temperaturen verfeinert, d. h. es wurde der Propagationsvektor bestimmt, welcher am besten alle Positionen beschreibt. Dieser Propagationsvektor ist in Bild 4.19 durch rote Kreise markiert und bestätigt sehr gut die vorherigen Ergebnisse.

Eine Anpassung einer magnetischen Struktur ist bisher trotz des allgemeinen Ansatzes einer freien Spirale/Zykloide nur zufriedenstellend verlaufen. Als Gründe hierfür sind die Kontamination magnetischer Satellitenreflexe durch nukleare Intensität von Fremdkörnern (wie z. B. am (0.275 0.275 5.46)-Satelliten gezeigt) sowie die suboptimale Qualität des Datensatzes zu nennen. Aus dem mittleren Intensitätsverhältnis zwischen der Mitteltemperaturphase in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ und der Tieftemperaturphase in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ kann jedoch ein geordnetes magnetisches Moment von etwa $\mu_{\text{ord.}} \approx 0.5(1)$ abgeschätzt werden.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ sowohl Phänomene zeigt, die in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ beobachtet wurden (zwei Anomalien unterhalb von T_N ; Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors) als auch solche, die nur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ beobachtet wurden (kein Sprung des Propagationsvektors; L -Komponente $\tau_L > 0.5$, kein Symmetriebruch bei T_L). Aufgrund dieser Beobachtungen scheint eine Extrapolation der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ über $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ und $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$ nach CeCu_2Si_2 nicht direkt möglich zu sein. Aufgrund der Ähnlichkeit mit der Mitteltemperaturphase von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ und da sowohl die Néel-Temperatur T_N als auch das geordnete magnetische Moment kontinuierlich abnehmen, scheint eine Extrapolation der magnetischen Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ über $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ hin zu CeCu_2Si_2 mit Einschränkungen möglich. Jedoch muss dies noch für $x < 0.25$ untersucht werden.

4.2.3 $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ (D23)

Auch die am D23 untersuchte $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ -Probe beinhaltet mehrere Fremdkörner, von denen einige nukleare Intensität auf magnetischen Positionen erzeugen. Bei tiefster Temperatur wurden wieder magnetische Satelliten gefunden, die hier mit einem Propagationsvektor von $\vec{\tau} = (0.26 \ 0.26 \ 0.54)$ beschrieben werden können. Diese sind unterhalb einer Néel-Temperatur von $T_N \approx 1.6$ K beobachtbar. Aufgrund der vergrößerten Reflexbreite sowie nuklearer Fremdkörner gestaltete sich die Bestimmung der genauen Position schwierig. Die Messung der Temperaturabhängigkeit mittels der zuerst benutzten Satelliten $(-0.26 \ -0.26 \ 3.46)$ und $(-0.74 \ -0.74 \ 0.54)$ wurde daher durch eine zweite Positionsbestimmung der Satelliten $(-0.74 \ -0.74 \ 0.54)$ und $(-0.26 \ -0.26 \ 3.46)$ durchgeführt. Bezüglich der zuerst untersuchten Reflexe weisen diese zwar eine reduzierte Sensitivität auf Änderungen des Propagationsvektors auf, sind allerdings intensitätsstärker. Bild 4.20 zeigt ausgewählte Rohdaten im Vergleich, insbesondere am $(0.26 \ 0.26 \ 1.46)$ -Reflex ist eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit der Reflexposition beobachtbar.

Aus den durch Gaußfits bestimmten ω -Positionen wurde die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors bestimmt. Diese ist in Bild 4.21 zusammen mit der temperaturabhängigen Intensität der untersuchten Reflexe dargestellt. Die L -Komponente des Propagationsvektors zeigt keinerlei Temperaturabhängigkeit. Bei $T_L = 1.3$ K findet man einen Lock-In-Übergang in der H -Komponente des Propagationsvektors und eine Spin-Reorientierung in den Intensitäten (siehe Bild 4.21 unten).

Die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ bestätigt die Sonderstellung von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25})_2$. Im Unterschied zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ erfolgt der Sprung des Propagationsvektors zu niedrigeren Werten von τ_H . Weiterhin ist die H -Komponente des Propagationsvektors im Gegensatz zu den Proben mit höherem Germaniumgehalt deutlich reduziert. Dies könnte bedeuten, dass für $x < 0.25$ der Propagationsvektor bei tiefster Temperatur von der Zusammensetzung abhängt. Spätere Experimente an CeCu_2Si_2 bestätigten diesen Verdacht. Auch dieses Ergebnis stärkt die Vermutung eines besonderen Punktes bei $x \approx 0.25$, welcher nicht notwendigerweise tetrakritisch sein muss (Deppe04b). Somit kann die magnetische Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ nach CeCu_2Si_2 nicht direkt übernommen werden. Eine Extrapolation der Magnet-

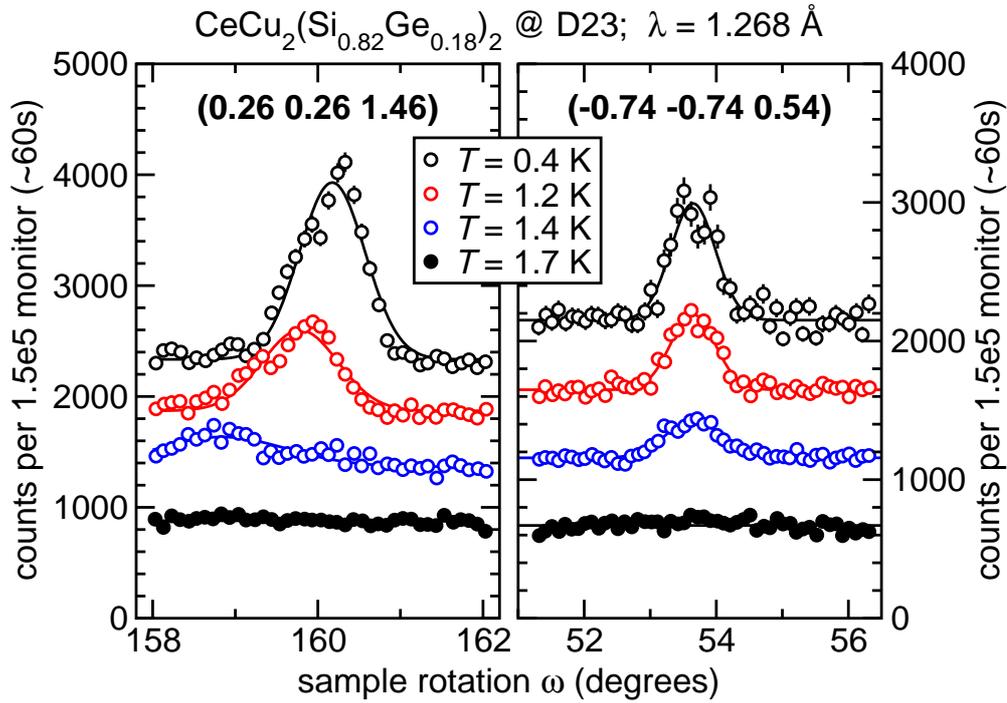


Abbildung 4.20: Rockingscans über die temperaturabhängig untersuchten magnetischen Satelliten in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ bei ausgewählten Temperaturen. Linien markieren Gaußfits an die Rohdaten. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die Daten auf $1.5 \cdot 10^5$ Monitor normiert und um jeweils 500 Einheiten versetzt.

struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ aus könnte jedoch gelingen, wobei allerdings die Auswirkungen des speziellen Punktes $x \approx 0.25$ berücksichtigt werden müssen. Ein Intensitätsvergleich der Daten von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ mit $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ ergab zwar keine systematische Variation (außer einem Skalierungsfaktor aufgrund des in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ reduzierten geordneten Momentes von $\mu_{\text{ord.}} \approx 0.25\mu_{\text{B}}$), jedoch reicht die Güte des vorhandenen Datensatzes nicht für eine zweifelsfreie Bestimmung der Magnetstruktur (Faulhaber06). Aus Sicht der Magnetstruktur ist daher (derzeit) keine Aussage zum vermuteten tetrakritischen Punkt bei $x \approx 0.25$ zu erhalten. Weitere vergleichende Experimente mit besserer Statistik könnten diese Fragestellung weiter erhellen.

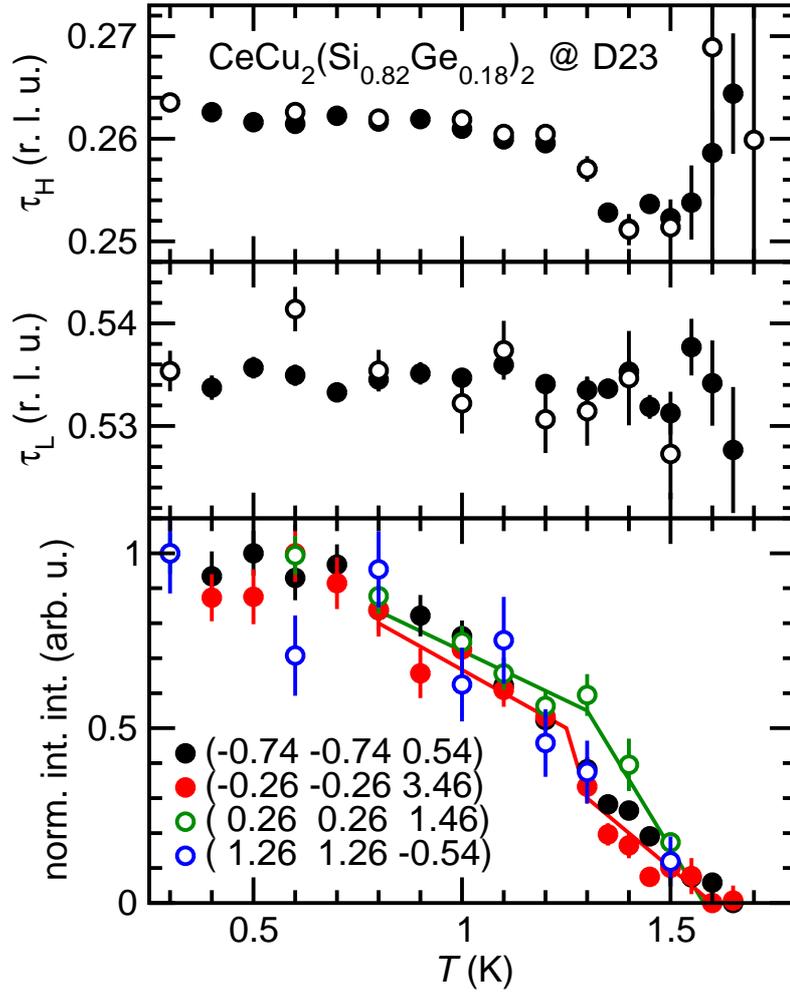


Abbildung 4.21: Die oberen Teilbilder zeigen die H und L Komponenten des Propagationsvektors $\tau = (\tau_H \ \tau_H \ \tau_L)$ von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$, ermittelt aus den Positionen der magnetischen Satelliten $(-0.74 \ -0.74 \ 0.54)$ und $(-0.26 \ -0.26 \ 3.46)$ (volle Symbole) sowie aus den Positionen der Reflexe $(1.26 \ 1.26 \ -0.54)$ und $(0.26 \ 0.26 \ 1.46)$ (offene Symbole) nach Subtraktion der Restintensität bei $T > T_N$. Das untere Teilbild zeigt die normierte Intensität der angegebenen Satelliten. Bei ca. $T = 1.3$ K wird ein Sprung des Propagationsvektors sowie eine Anomalie in der Intensität beobachtet (durch Linien angedeutet).

4.3 Zusammenfassung der Ergebnisse zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$

Alle im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ untersuchten Proben zeigen antiferromagnetische Ordnung, welche durch magnetische Überstrukturreflexe nachweisbar ist. Die Néel-Temperatur variiert dabei von $T_N = 1.6 \text{ K}$ ($x = 0.18$) über $T_N = 3.3 \text{ K}$ ($x = 0.45$) bis $T_N = 4.1 \text{ K}$ ($x = 1$) (Krimmel97b). Das geordnete magnetische Moment im Grundzustand (bei tiefster gemessener Temperatur) zeigt ebenfalls eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Germaniumkonzentration: $\mu(x = 1) = 1.04 \mu_B$ (Krimmel97b), $\mu(x = 0.45) \approx 0.54 \mu_B$ (Faulhaber04) bis nach $\mu(x = 0.18) \approx 0.25 \mu_B$ (Faulhaber06). Beide Neutronenstreuergebnisse sowie die Beobachtung weiterer magnetischer Phasenübergänge unterhalb von T_N sind in sehr guter Übereinstimmung mit makroskopischen Messungen an z. T. polykristallinen Proben (Knebel96; Trovarelli97; Oeschler05; Deppe04b).

Für $x = 0.36$ wurde eine bisher unbekannte, schwache Anomalie bei T_L identifiziert, die sich sehr gut in die Systematik des Phasendiagramms einfügt. Für $x = 0.36$ und $x = 0.45$ (also $x > 0.25$) treten damit zwei zusätzliche magnetische Phasenübergänge unterhalb von T_N auf, wohingegen für $x < 0.25$ nur eine und für $x \approx 0.25$ keine Anomalien unterhalb von T_N beobachtet werden. Diese Ergebnisse sind im magnetischen Phasendiagramm in Bild 4.22 zusammen mit den neuen Neutronenstreuergebnissen (rot markiert) dargestellt.

Im gesamten System stimmt der beobachtete magnetische Propagationsvektor sehr gut mit dem in theoretischen Rechnungen für CeCu_2Si_2 gefundenen Nestingvektor der schweren Quasiteilchen $\tau' = (0.25 \ 0.25 \ 0.5)$ (Stockert04). In diesem Sinne sind die magnetischen Eigenschaften (Struktur, Propagation) vermutlich durch die Nestingeigenschaften dominiert.

Bei tiefster Temperatur zeigt der Propagationsvektor für $x > 0.25$ keine Abhängigkeit vom Germaniumgehalt x (siehe Bild 4.23 auf Seite 82). Während die L -Komponente des Propagationsvektors unabhängig von der Zusammensetzung $\tau_L \approx 0.52$ ist, zeigt die H -Komponente für $x < 0.25$ eine Abweichung vom konstanten Verhalten $\tau_H \approx 0.27 - 0.28$.

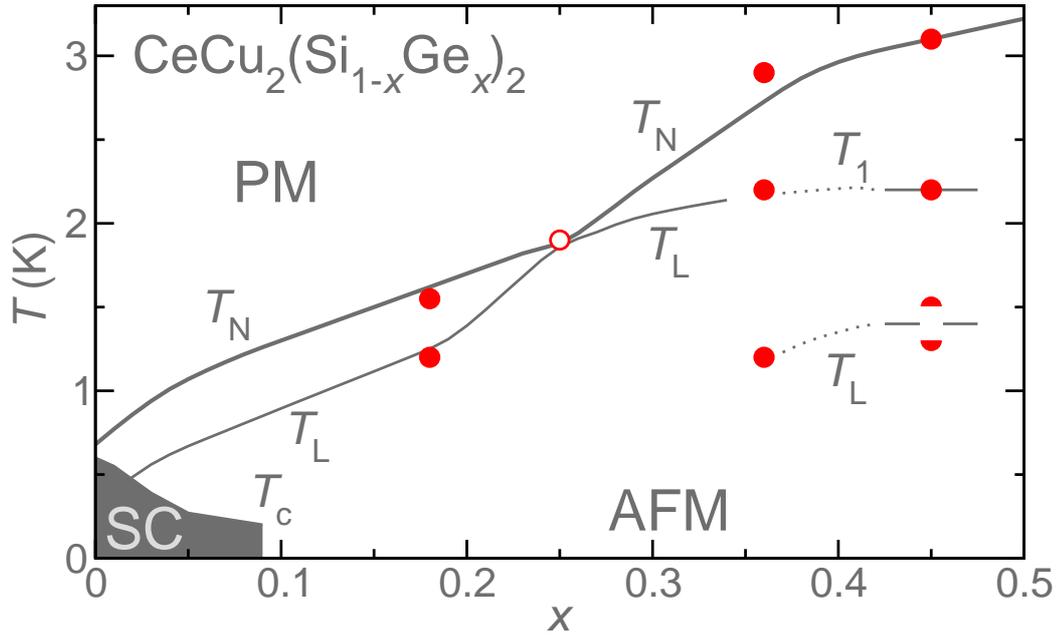


Abbildung 4.22: Schematisches Phasendiagramm für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ mit $0 \leq x \leq 0.5$. Die in dieser Arbeit vorgestellten Neutronenergebnisse sind in rot eingetragen. Die Daten für $x = 0.25$ sind Referenz ([Stockert05](#)) entnommen.

Die mikroskopische magnetische Struktur von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ konnte nach mehreren Experimenten bestimmt werden. Dieses Verhalten scheint im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ einzigartig, da nur diese Probe einen Propagationsvektor mit $\tau_L = 0.49 < 0.5$ aufweist und bei tiefster Temperatur die magnetische Struktur in zwei Untergitter zerfällt, da die Innenzentrierung gebrochen ist.

Diese Beobachtungen konnten im stöchiometrisch sehr stark verwandten $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ nicht reproduziert werden. Jedoch findet Referenz ([Sparrn97](#)) in CeCu_2Ge_2 zwei Phasenübergänge unterhalb von T_N bei $T_1 \approx 2.4 \text{ K}$ und bei $T_L \approx 1.5 \text{ K}$, wobei letzterer vermutlich ein Lock-In-Phasenübergang mit Hysterese ist. Diese Ergebnisse sind in Einklang mit den Resultaten unserer $x = 0.45$ Probe. Hier sollte eine weitere Probe mit $x = 0.45 - 1$ untersucht werden, um die intrinsischen Eigenschaften zu überprüfen. Nimmt man vorerst an, dass die für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ beobachteten Eigenschaften weitestgehend denen von

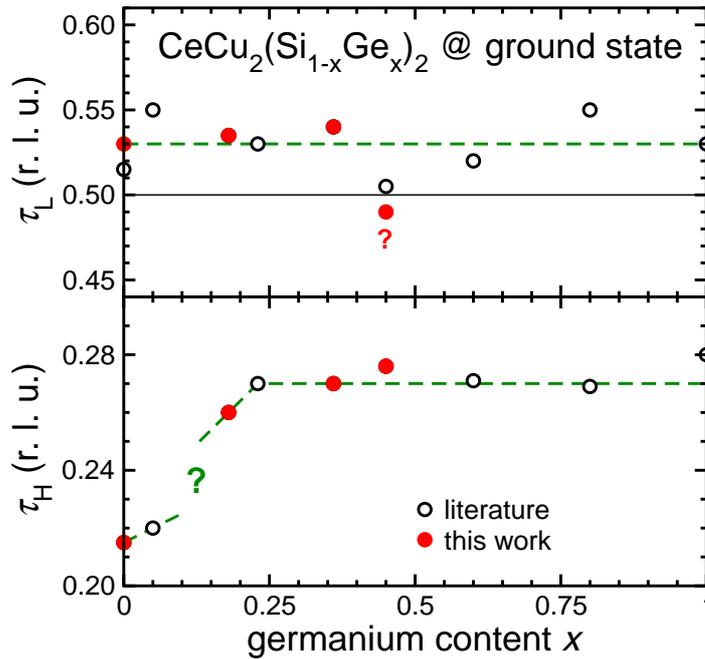


Abbildung 4.23: Ermittelter Propagationsvektor $\vec{\tau} = (\tau_H, \tau_H, \tau_L)$ bei tiefster Temperatur in Abhängigkeit vom Germaniumgehalt x (rot: diese Arbeit, schwarz: (Stockert05)). Die Fragezeichen markieren noch offene Fragen.

CeCu_2Ge_2 entsprechen, so stellt sich die Frage: Wie entwickeln sich die magnetischen Phasen für $x = 0.25 - 0.45$, speziell: Wie verläuft T_L für $x < 0.45$?

Bild 4.24 zeigt schematisch den temperaturabhängigen Verlauf des Propagationsvektors, wie er in den vorherigen Kapiteln ermittelt wurde. Es zeigt sich ein sehr komplexes Bild, daher soll zuerst die H -Komponente des Propagationsvektors τ_H , im Bild 4.24 blau dargestellt, diskutiert werden. Für $x = 0.25$ ist τ_H unterhalb von T_N konstant. Während $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ einen Sprung zu kleineren Werten zeigt, zeigen beide untersuchte Proben für $x > 0.25$ einen positiven Sprung. Dieses Ergebnis ist in Einklang mit den Anomalien in Messungen der thermischen Ausdehnung, die für die Fälle $x < 0.25$ und $x > 0.25$ unterschiedliche Vorzeichen zeigen (Oeschler05) und stützt die These eines (tetra-)kritischen Punktes bei $x = 0.25$. Weiterhin fällt auf, dass der Sprung bei $x = 0.36$ bei der höheren Temperatur T_1 auftritt, im Gegensatz zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$, bei dem ein Sprung in τ_H bei der

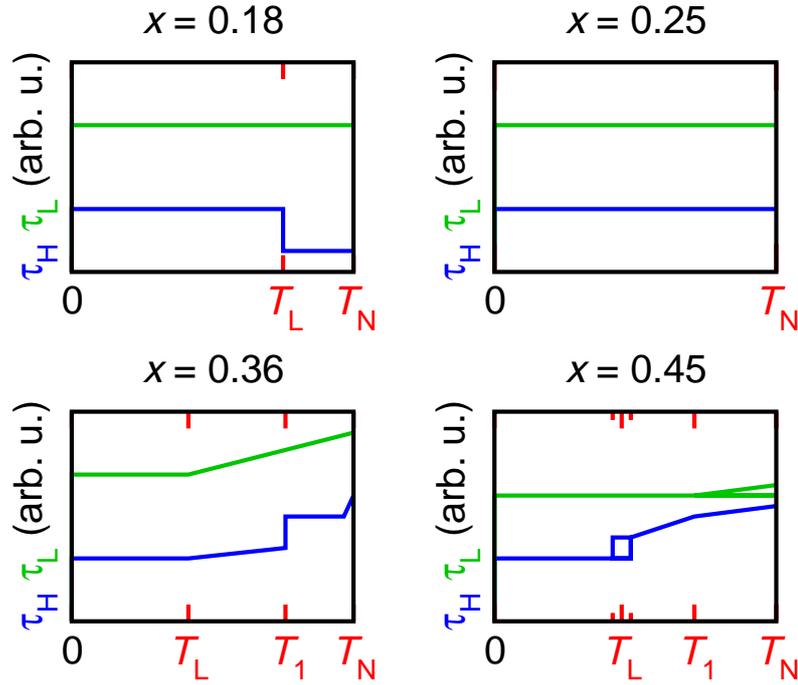


Abbildung 4.24: Schematische Abhängigkeit des temperaturabhängigen Propagationsvektors, dargestellt für die untersuchten Proben. Die Daten für $x = 0.25$ sind Referenz ([Stockert05](#)) entnommen.

niedrigeren Temperatur T_L auftritt. Da makroskopische Messungen keinen Hinweis für kreuzende Phasengrenzlinien im Bereich $x = 0.36 - 0.45$ fanden, scheint der Sprung keine charakteristische Eigenschaft eines der Phasenübergänge zu sein. Somit deutet es sich an, dass eine der Proben mit $x = 0.36$ oder $x = 0.45$ eine Sonderstellung einnimmt. Auf der einen Seite scheint dies auf $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ zuzutreffen, da nur hier $\tau_L < 0.5$ ist. Andererseits bestätigen zumindest die publizierten makroskopischen Messungen in CeCu_2Ge_2 ([Sparn06](#)), soweit möglich, unsere Ergebnisse an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$. Dies wiederum spräche eher für eine Sonderstellung von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$. Hier fanden Neutronenstreuergebnisse einen weiteren Phasenübergang. Daher sollten weitere Untersuchungen sowohl an der magnetische Struktur von CeCu_2Ge_2 bei *tiefster Temperatur* als auch durch makroskopische Messungen an $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ (z. B. thermische Ausdehnung) folgen, um diese Diskrepanz zu überwinden.

Identifiziert man magnetische Phasen anhand ihres charakteristischen Verhaltens der Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors, so ergeben sich aufgrund der Ergebnisse neue Fragestellungen. Die Variation des temperaturabhängigen Verhaltens des Propagationsvektors und die (aufgrund der geringen Probenzahl) nicht beobachtete Systematik legen eine detailliertere Untersuchung nahe. Diese könnte auch durch Anwendung hydrostatischen Drucks (wie beispielsweise in ([Jaccard92](#)) gezeigt) durchgeführt werden. Nach Referenz ([Wassilew-Reul97](#)) führt hydrostatischer Druck im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ zu einer Verkleinerung der Elementarzelle und damit zu einem reduzierten ‘effektiven x ’. Hierbei ist der Vorteil, dass (im Prinzip) mit einer Probe das gesamte Phasendiagramm überprüft werden kann, nicht zu unterschätzen. Weiterhin ließen sich die Einflüsse von Unordnung (die ja durch die statistische Verteilung der Silizium und Germanium-Atome erzeugt wird) und Elementarzellenvolumen bzw. Gitterdruck trennen. Allerdings sind diese Experimente ob des hohen benötigten Drucks sehr aufwändig.

5 CeCu₂Si₂

Als nach umfangreichen Untersuchungen im System CeM₂T₂ (mit $M =$ Übergangsmetall, $R =$ Si, Ge) mit CeCu₂Si₂ der erste Supraleiter in Schwere-Fermionen-Systemen entdeckt wurde (Steglich79), wurde dieses System sehr detailliert untersucht. Es zeigte sich allerdings eine starke Probenabhängigkeit der beobachtbaren Phänomene. Einige Proben wiesen eine magnetische Anomalie auf, z. B. in der spezifischen Wärmekapazität bei $T_A \approx 0.8$ K, welche historisch A-Phase genannt wurde. Andere Proben zeigten lediglich eine supraleitende Phase (S-Typ-Proben) oder beide Phänomene (A/S-Typ-Proben) bei deren Abkühlung zuerst die A-Phasen-Anomalie bei $T_A \approx 0.7$ K auftrat, gefolgt von Supraleitung bei tieferer Temperatur ($T_c \approx 0.5$ K, je nach Probe).

Bild 5.1 zeigt zum Vergleich die spezifische Wärmekapazität C/T für verschiedene einkristalline Proben. Als A-Typ klassifizierte Proben zeigen eine schulterartige Anomalie bei T_A . S-Typ-Proben hingegen zeigen eine lambda-artige Anomalie in C/T . Dies ist sehr gut am Verlauf der spezifischen Wärmekapazität C/T zu beobachten, aus dem die Sprungtemperatur (hier mit $T_c = 0.6$ K) ermittelt werden kann. Auch bei Unterdrückung der Supraleitung durch ein externes Magnetfeld wird keine A-Typ-Anomalie beobachtet (hier nicht dargestellt). Eine Überlagerung beider Phänomene wird in A/S-Typ-Proben beobachtet, deren spezifische Wärme C/T klar beide Arten Anomalien (hier mit $T_A \approx 0.7$ K und $T_c \approx 0.5$ K) zeigt.

Anomalien bei den aus C/T bestimmten Temperaturen wurden auch in anderen makroskopischen Untersuchungen gefunden (elektrischer Widerstand, magnetische Suszeptibilität, thermische Ausdehnung, ...) und liefern für jede Probe einen konsistenten Datensatz. Die Gesamtheit dieser Daten erlaubt dann auch die Klassifizierung der Proben.

Diese Vielfalt an Probeneigenschaften bremste lange Zeit das Verständnis des

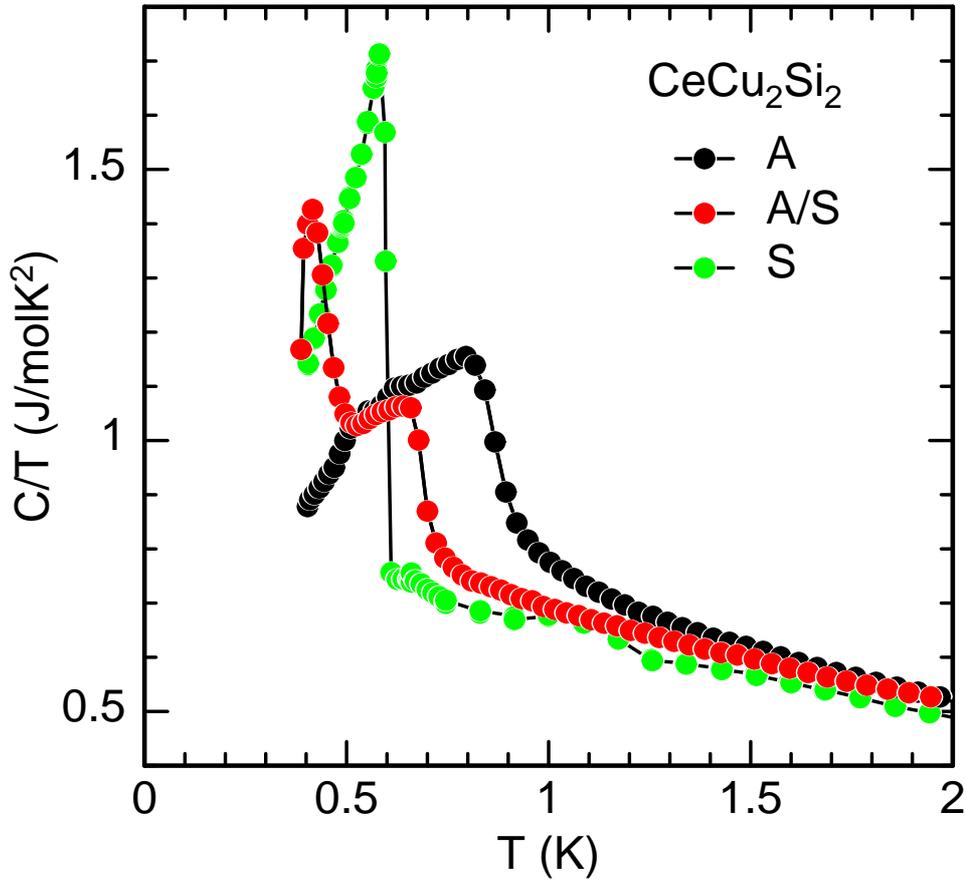


Abbildung 5.1: Spezifische Wärme C/T in Abhängigkeit von der Temperatur T für verschiedene CeCu_2Si_2 -Einkristalle.

Systems. Es dauerte lange, bis es gelang, den Einfluss der Probenherstellung (Einwaage, Zuchtmethode, Temperaturprofile, ...) auf die physikalischen Eigenschaften zu kontrollieren (Batlogg85; Modler95; Steglich96a). Aufgrund intensiver Untersuchungen, die maßgeblich von Dr. C. Geibel vorangetrieben wurden (zusammengefasst u. a. in Referenz (Steglich96b)), ist inzwischen klar, dass alle diese verschiedenen Grundzustände innerhalb des Homogenitätsbereiches von CeCu_2Si_2 liegen (Bild 5.2). Dabei kann beispielsweise ein nur sehr kleiner Kupferüber- oder -unterschuss drastisch die Eigenschaften verändern (hier zu einem S-Typ bzw. A-Typ hin). Inzwischen wurden Verfahren entwickelt, um reproduzierbar Proben ei-

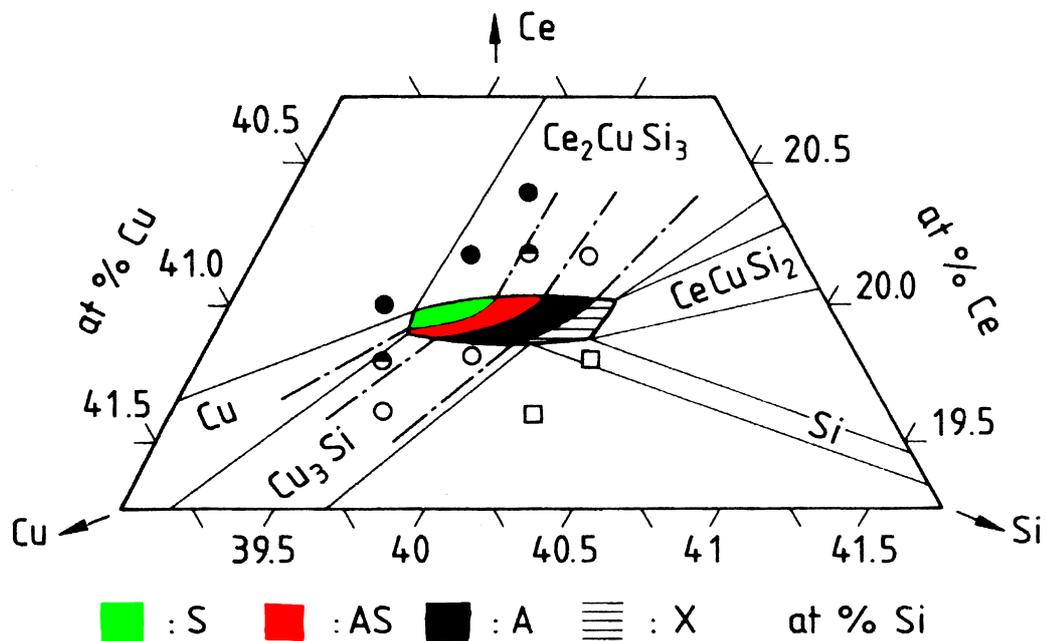


Abbildung 5.2: Chemisches Phasendiagramm für CeCu_2Si_2 (Steglich96b). Im Homogenitätsbereich auftretende Grundzustände (A; A/S; S) sind farbig markiert (Modler95; Steglich96b).

nes gewünschten Typs herstellen zu können. Derzeit laufende Untersuchungen, um die Einflüsse von Fehlstellen, Fehlbesetzungen oder Zwischengitterplätzen zu studieren, zeigten bisher keinen signifikanten Unterschied zwischen Proben verschiedenen Typs (Leisegang), finden jedoch teilweise eine erhöhte Elektronendichte auf der Wyckhoff-Position 2b zwischen den Siliziumatomen.

In den nun verfügbaren Einkristallen wurde auch der in Polykristallen nicht beobachtete A+S-Typ gefunden (anfangs S+A genannt), bei dem die Phasenübergangstemperaturen T_C und T_A entartet sind. Hier wird im Nullfeld nur eine für Supraleitung typische Anomalie in C/T beobachtet. Im Unterschied zum S-Typ tritt in einem überkritischen Magnetfeld zur Unterdrückung der Supraleitung eine A-Typ-Anomalie auf.

Die Natur des Phasenüberganges bei T_A konnte lange Zeit nicht eindeutig identifiziert werden. Verschiedene makroskopische Messungen deuteten auf die Bildung

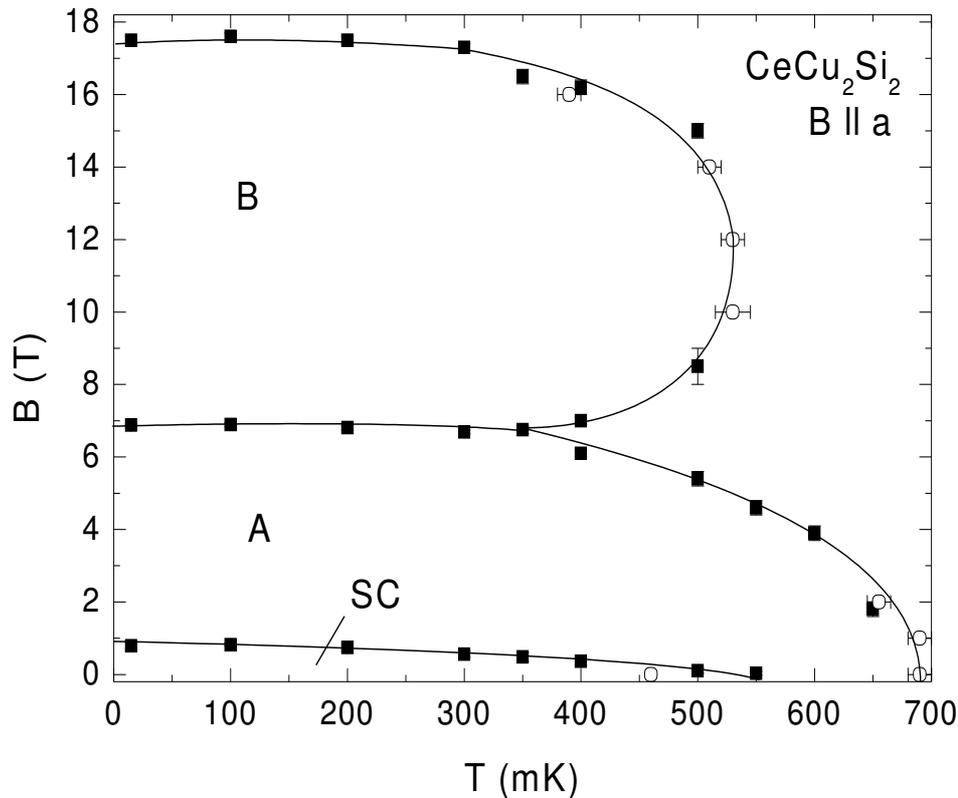


Abbildung 5.3: Magnetisches (B, T) -Phasendiagramm für A/S-Typ CeCu_2Si_2 für Magnetfelder parallel zur a -Achse (Bruls94; Thalmeier04).

einer Spindichtewelle hin, jedoch konnten in Neutronenstreuexperimenten keine Überstrukturreflexe beobachtet werden. Vermutlich waren die untersuchten Proben zu klein.

Auch in einem externen Magnetfeld $B = \mu_0 H$ zeigt CeCu_2Si_2 ein komplexes Verhalten. Bild 5.3 zeigt das magnetische (B, T) -Phasendiagramm für A/S-Typ CeCu_2Si_2 in einem externen Magnetfeld parallel zur kristallographischen a -Achse: $B \parallel a$ (Bruls94; Thalmeier04). Man erkennt, dass ein relativ kleines Magnetfeld von maximal $\mu_0 H_{c2} \approx 1.6 \text{ T}$ ausreicht, die Supraleitung zu unterdrücken. Oberhalb von ca. $\mu_0 H_{A \rightarrow B} \approx 7 \text{ T}$ befindet sich die B-Phase, über die noch nichts bekannt ist.

Aufgrund der verschiedenen Grundzustände, die alle im Homogenitätsbereich liegen, reicht es nicht, nur eine Probe von CeCu_2Si_2 zu untersuchen. Stattdessen ist eine nähere Untersuchung verschiedener Einkristalle nötig, um dem Mechanis-

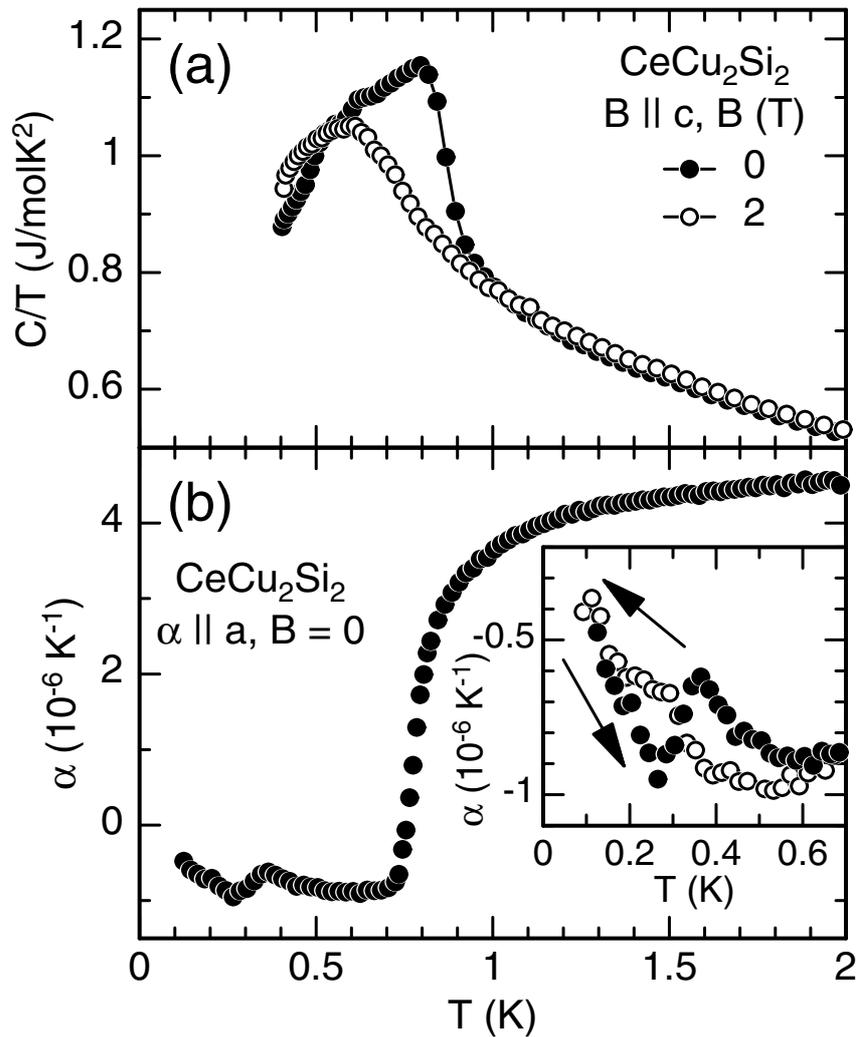


Abbildung 5.4: (a) Spezifische Wärmekapazität C/T in magnetischen Feldern von 0 und 2 T parallel zur kristallographischen c -Achse und (b) thermische Ausdehnung $\alpha||a$ von A-Typ CeCu_2Si_2 (Stockert04).

mus für das Auftreten der Supraleitung auf die Spur zu kommen. Weiterhin ist die Anwendung externer Magnetfelder nötig, um die spezifischen Eigenschaften der beobachteten Phasen näher einzugrenzen.

Bild 5.4 zeigt die spezifische Wärme von A-Typ CeCu_2Si_2 in verschiedenen Magnetfeldern parallel zur kristallographischen c -Achse (Stockert04). Bei $\mu_0 H = 2$ T ist die antiferromagnetische Anomalie (A-Phase) leicht zu tieferen Temperaturen

verschoben, supraleitende Anomalien werden (auch im Nullfeld) nicht beobachtet. Die ebenfalls in Bild 5.4 dargestellte thermische Ausdehnung parallel zur kristallographischen a -Achse zeigt innerhalb der magnetischen A-Phase eine Hysterese bei $T_1 \approx 0.3$ K und zeigt damit einen Phasenübergang erster Ordnung an.

In den folgenden Unterkapiteln werden Proben verschiedener Typen (A, A/S, A+S, S) mittels Neutronenstreuung in magnetischen Feldern auf das Wechselspiel zwischen Magnetismus und Supraleitung untersucht. Zwar können mit Neutronendiffraktion Informationen über langreichweitige magnetische Ordnung bzw. kurzreichweitige Korrelationen erhalten werden, jedoch ist Supraleitung nicht direkt nachweisbar. Daher wurde ein spezieller in-situ Spulensatz verwendet, der die *simultane* Ermittlung der Wechselfeldsuszeptibilität (siehe Kapitel 3.3 ab Seite 27) während der Neutronenstreuexperimente erlaubt. Dadurch ist eine direkte Korrelation der supraleitenden und magnetischen Eigenschaften möglich. Motiviert durch die positiven Ergebnisse im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ wurden alle folgenden Experimente mit einer $(H H L)$ -Streuebene realisiert. Ein $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Entmischungskryostat wurde verwendet, um Temperaturen bis unter 0.1 K zu erreichen. Falls nicht anders angegeben, wurden die supraleitenden Proben bei Verwendung eines Magnetfeldes im Feld eingekühlt (field-cooled), um den richtigen thermodynamischen Zustand zu präparieren. Die temperaturabhängigen Messungen erfolgten danach mit steigenden Temperaturen.

5.1 A-Typ: Nachweis der magnetischen Ordnung

Um die antiferromagnetische Struktur der A-Phase aufzuklären, wurde ein Neutronenstreuexperiment mit Dr. Oliver Stockert am Diffraktometer E6 des HMI in Berlin durchgeführt. Bild 5.5 zeigt einen Ausschnitt der reziproken $(H H L)$ -Ebene um die Position $(0.22 \ 0.22 \ 1.45)$ für zwei verschiedene Temperaturen $T = 1$ K (oberes Bild) und $T = 50$ mK (unteres Bild). Die Neutronenstreuintensität ist dabei als farbkodierter Konturplot dargestellt. Bei $T = 50$ mK $< T_N$ ist deutlich ein antiferromagnetischer Satellitenreflex nachweisbar, welcher kompatibel mit einem Propagationsvektor von $\vec{\tau} = (0.215 \ 0.215 \ 0.53)$ ist. Bei $T = 1$ K $> T_N$ ist diese Intensität nicht mehr nachweisbar. Es wurden weitere Satelliten passend zu dem be-

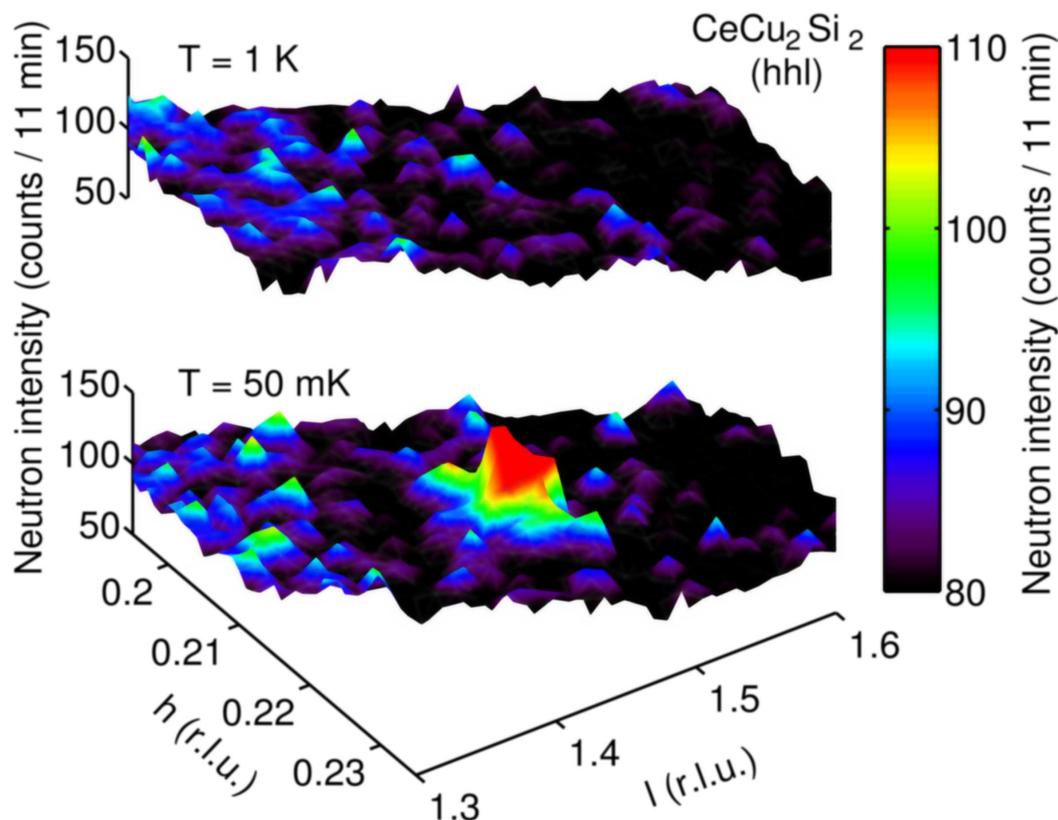


Abbildung 5.5: Ausschnitt der reziproken $(H H L)$ Ebene um die Position $(0.22 \ 0.22 \ 1.45)$ in A-Typ CeCu_2Si_2 bei $T = 1 \text{ K}$ (oberes Bild) und $T = 50 \text{ mK}$ (unteres Bild). Die Streuintensität ist farbkodiert. Der anti-ferromagnetische Überstrukturefflex ist bei $T = 50 \text{ mK}$ auf einer Position $(0.215 \ 0.215 \ 1.47)$ deutlich auszumachen (Stockert04).

stimmten Propagationsvektor gefunden, jedoch zeigten alle ein (teilweise deutlich) schlechteres Intensität-zu-Untergrund-Verhältnis. Dies liegt daran, dass bei kleinen Streuwinkeln u. a. aufgrund von Luftstreuung der Signaluntergrund erhöht ist und bei großen Streuwinkeln das Streusignal aufgrund des magnetischen Formfaktors stark abnimmt.

Dies erlaubt nur die Temperaturabhängigkeit des $(0.215 \ 0.215 \ 1.47)$ Reflexes detailliert zu untersuchen, da andere Reflexe entweder zu geringe Intensität (für größere $|\vec{q}|$) oder zu hohen Untergrund (für kleine $|\vec{q}|$) aufweisen.

Bild 5.6 zeigt die so gewonnene Temperaturabhängigkeit des Propagationsvek-

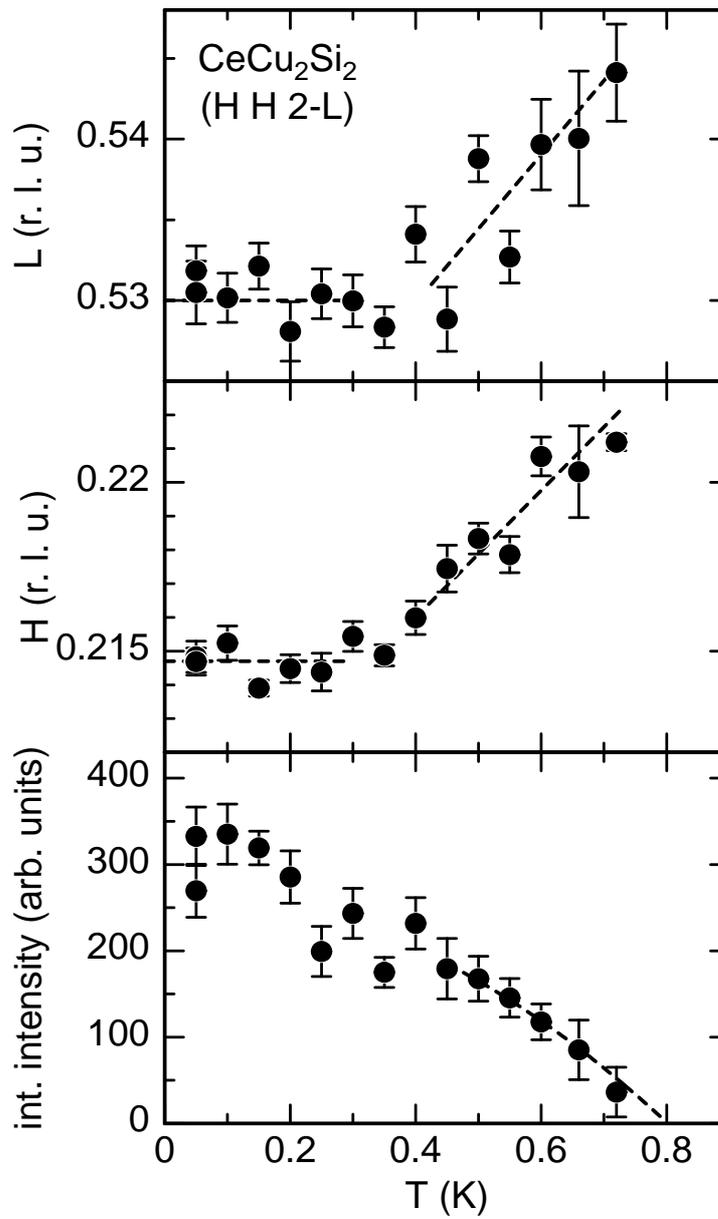


Abbildung 5.6: Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors $\vec{\tau} = (H H L)$ und der integralen Intensität, des magnetischen Satelliten (0.22 0.22 1.47) in A-Typ CeCu_2Si_2 (Stockert04). (Messung am E6)

tors und der magnetischen Intensität. Man erkennt deutlich ein Lock-In-Verhalten des Propagationsvektors bei ca. $T \approx 350$ mK zu dem konstanten Wert $\vec{\tau} = (0.215 \ 0.215 \ 0.53)$. Der Temperaturverlauf der magnetischen Intensität zeigt keine signifikanten Anomalien. Dieses Ergebnis bestätigt einen weiteren Phasenübergang unterhalb von $T_N = 0.7$ K, wie er ja schon in Messungen der thermischen Ausdehnung (siehe Bild 5.4 auf Seite 89) gefunden wurde.

Um den Einfluss eines Magnetfeldes zu untersuchen, wurde ein weiteres Experiment am E4 durchgeführt. Der Aufbau wurde jetzt durch einen Vertikalmagneten ergänzt, um Magnetfelder bis $\mu H = 12$ T zu erzeugen. Die anderen Parameter blieben gleich. Aufgrund der Konstruktion des Magnetes sowie der ausgewählten ($H \parallel L$)-Streuebene konnte das Magnetfeld nur entlang der $[1 \bar{1} 0]$ -Probenrichtung angelegt werden. Aufgrund der nur schwach ausgeprägten Anisotropie in der Basalebene, zwischen der $[1 0 0]$ - und der $[1 \bar{1} 0]$ -Richtung, kann dennoch das Phasendiagramm für $H \parallel a$ in Bild 5.3 auf Seite 88 herangezogen werden. Man erwartet also beispielsweise bei tiefster Temperatur den Phasenübergang in die B-Phase bei ca. $\mu_0 H_{A \rightarrow B} \approx 7 - 8$ T.

Bild 5.7 zeigt die bei $T = 50$ mK und $T = 500$ mK ermittelte Feldabhängigkeit der magnetischen Intensität und zum Vergleich ein schematisches Phasendiagramm für A/S-Typ CeCu_2Si_2 . Wie zu erwarten war, verringert sich die magnetische Intensität kontinuierlich mit ansteigendem Magnetfeld, bis sie bei $\mu_0 H \approx 5$ T bzw. $\mu_0 H \approx 8$ T ($T = 500$ mK bzw. $T = 50$ mK) nicht mehr nachweisbar ist.

Innerhalb der B-Phase wurde bei 12 T nach magnetischen Überstruktureflexen gesucht. Aufgrund des experimentellen Aufbaus konnte die reziproke Ebene nicht vollständig abgetastet werden. Daher wurde an hochsymmetrischen Punkten sowie aus anderen Verbindungen mit gleicher Struktur bekannten Ordnungspunkten nach magnetischer Intensität gesucht. Es wurden keine antiferromagnetischen Überstruktureflexe gefunden. Mögliche ferromagnetische Intensität auf nuklearen Reflexen konnte ebenfalls nicht nachgewiesen werden. Hier behindert vermutlich das kleine geordnete magnetische Moment von ca. $\mu \approx 0.1 \mu_B$ die Untersuchungen.

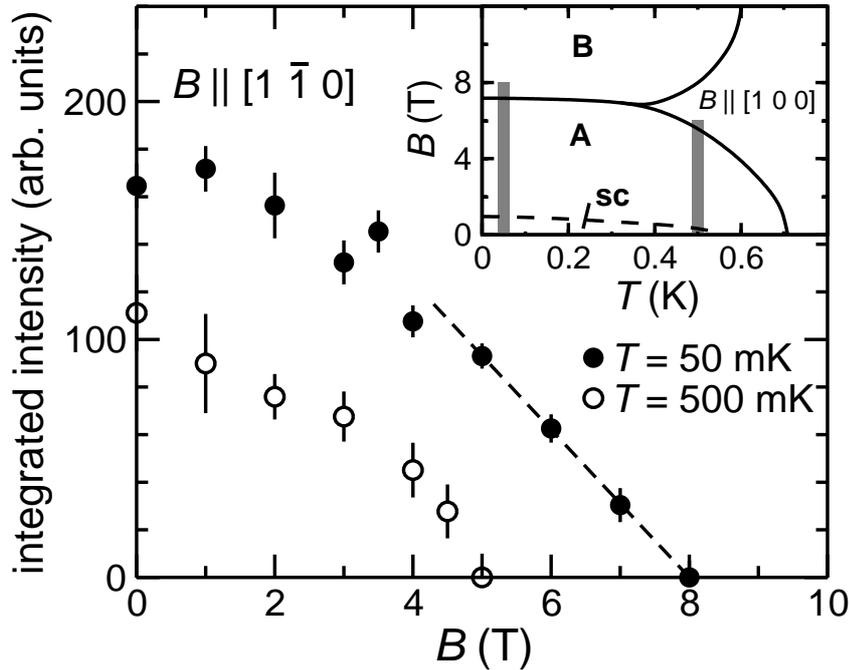


Abbildung 5.7: Magnetfeldabhängigkeit der integralen magnetischen Intensität des Satelliten (0.22 0.22 1.47) in A-Typ CeCu_2Si_2 bei $T = 50$ und 500 mK (Faulhaber05). Zum Vergleich ist ein schematisches Phasendiagramm eingebunden. (Messung am E4)

5.2 A/S-Typ: Supraleitung innerhalb der A-Phase

Kristalle vom A/S-Typ zeigen innerhalb der magnetischen Ordnung ($T_N \approx 0.7$ K) Supraleitung ($T_c \approx 0.5$ K), wobei die supraleitende Phase die magnetische Ordnung verdrängt. Bild 5.8 zeigt die spezifische Wärme C/T der untersuchten A/S-Typ Probe. Beide Anomalien, die der Supraleitung zuzuordnende lambda-Anomalie und die antiferromagnetische Schulter, sind gut erkennbar. Die simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität (rot dargestellt) zeigt durch ein diamagnetisches Signal einen supraleitenden Beitrag unterhalb von ≈ 0.5 K an.

Ein A/S-Typ-Kristall wurde am Diffraktometer E4 am HMI Berlin untersucht. Bild 5.9 zeigt Rockingscans über die Position (0.21 0.21 1.46). Im Nullfeld (linke Grafik) ist ein antiferromagnetischer Satellitenreflex bei $T = 0.5$ K nachweisbar (gefüllte Symbole). Oberhalb T_N (bei $T = 1$ K) sowie bei tieferen Temperaturen

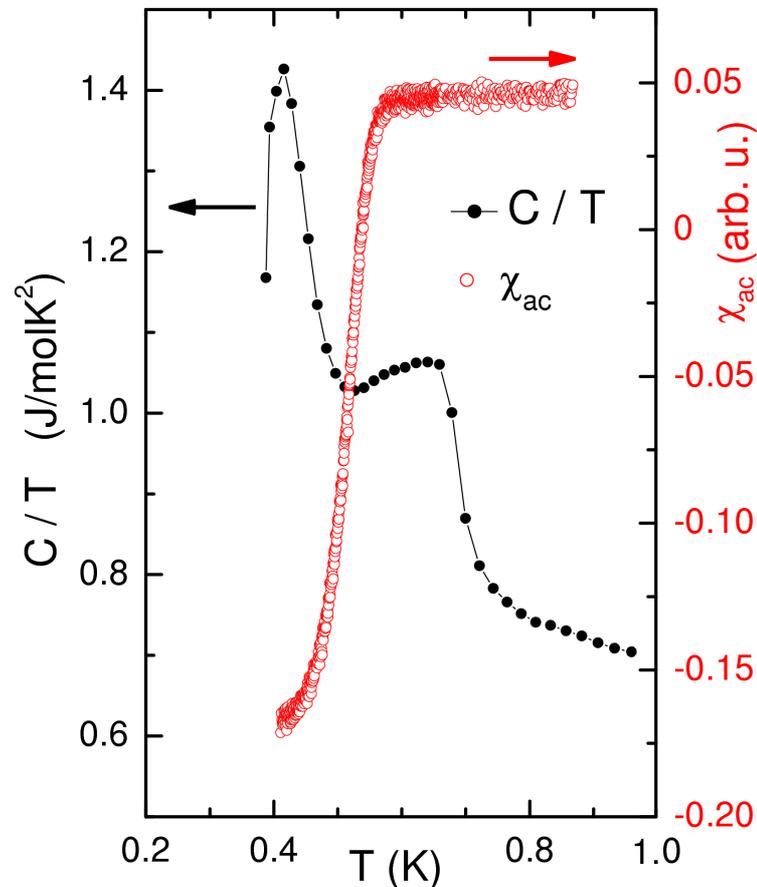


Abbildung 5.8: Spezifische Wärme C/T der für Neutronenstreuung verwendeten Probe sowie die simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität in willkürlichen Einheiten. Die Korrelation zwischen dem Sprung in χ und der Anomalie in C/T ist gut sichtbar.

(≤ 0.4 K) konnte keine Intensität mehr nachgewiesen werden (offene Symbole). Somit ist in der supraleitenden Phase die Ausbildung einer langreichweitigen antiferromagnetischen Ordnung unterdrückt, es ist hier also keine mikroskopische Koexistenz von Antiferromagnetismus und Supraleitung beobachtbar. Legt man nun ein Magnetfeld von $\mu_0 H = 2$ T an, um die Supraleitung zu unterdrücken, so kann, wie erwartet, der antiferromagnetische Überstrukturreflex bei $T = 0.4$ K wieder nachgewiesen werden (gefüllte Symbole). Auch in diesem Fall ist für $T > T_N$ keine magnetische Intensität nachweisbar (offene Symbole).

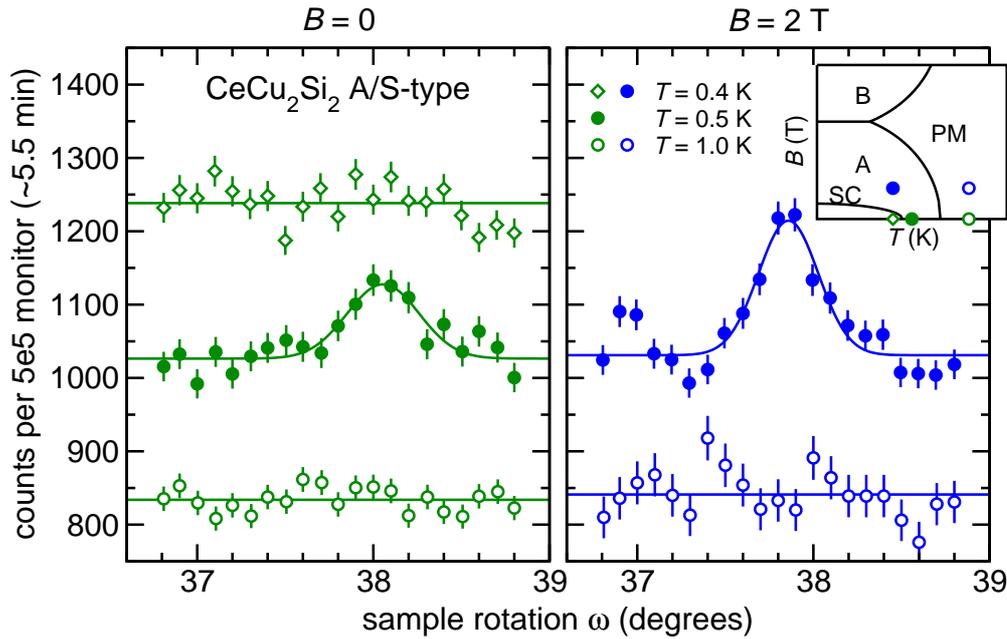


Abbildung 5.9: Rockingscans über die Position des magnetischen $(0.21 \ 0.21 \ 1.46)$ Satelliten in A/S-Typ CeCu_2Si_2 an verschiedenen Punkten im $B - T$ Phasendiagramm. Die Kurven geben Fits an die Daten wieder: (offene Symbole) Untergrund bzw. (geschlossene Symbole) Gaußprofil. Zur besseren Unterscheidung sind die Daten um jeweils 200 Einheiten verschoben. (Messung E4)

Im Anschluss wurde ein zweites Experiment durchgeführt, diesmal am Diffraktometer E6 und der ersten Version der in-situ Suszeptibilitätsspule (siehe auch Kapitel 3.3.1 ab Seite 29). Bild 5.10 zeigt eine Zusammenstellung der Messergebnisse. Rechts oben im Bild ist die temperaturabhängige Wechselfeldsuszeptibilität im Nullfeld gezeigt. Die A/S-Typ-Probe zeigt ein deutliches diamagnetisches Signal in der supraleitenden Phase. Legt man nun bei tiefster Temperatur ein Magnetfeld an, so ist das diamagnetische Signal der Supraleitung bei $\mu_0 H \approx 1 \text{ T}$ noch voll ausgeprägt und bei etwa $\mu_0 H_{c2} \approx 1.3 \text{ T}$ vollständig unterdrückt. An den mit Kreisen markierten Punkten ($\mu_0 H = 0, 1$ und 2 T) wurden Rockingscans über die Position des magnetischen $(0.21 \ 0.21 \ -1.46)$ - Satelliten durchgeführt (links im Teilbild 5.10). Bei $\mu_0 H = 2 \text{ T}$ (blaue Symbole) ist die Supraleitung vollständig unterdrückt

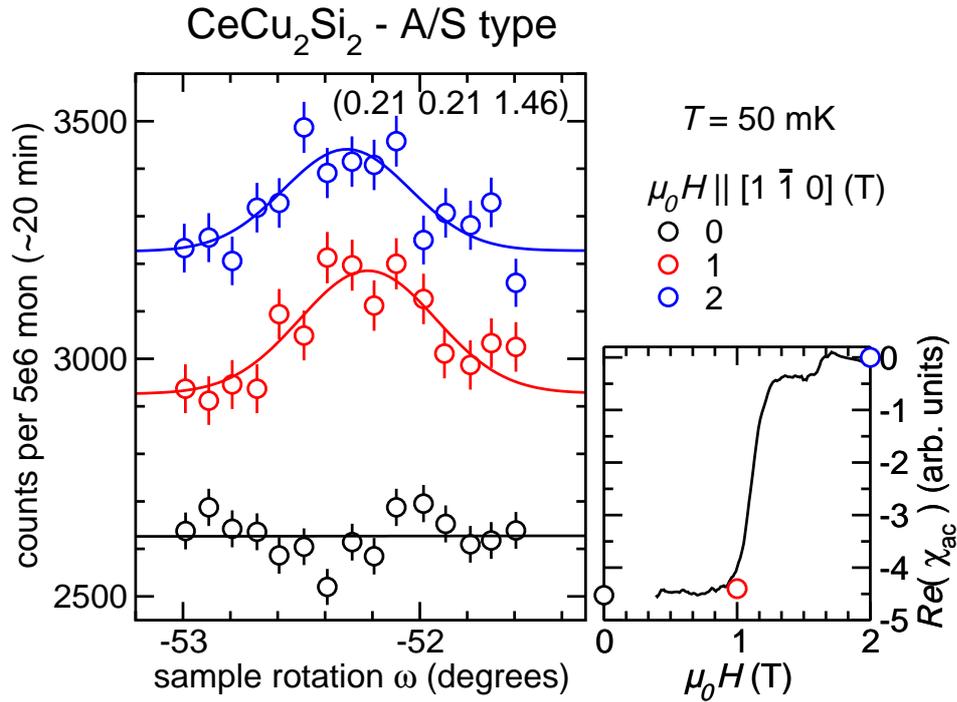


Abbildung 5.10: (links) Rockingscans über die Position des magnetischen (0.21 0.21 -1.46) Satellitenreflexes in A/S-Typ CeCu₂Si₂ bei $T = 50 \text{ mK}$ und $B = \mu_0 H = 0, 1$ und 2 T . (rechts) simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität. Die Bedingungen bei denen die Rockingscans aufgenommen wurden, sind mit Symbolen markiert. (Messung E6)

und antiferromagnetische Intensität ist nachweisbar. Im Nullfeld hingegen ist die Probe supraleitend und wie im Experiment zuvor ist keine antiferromagnetische Intensität nachweisbar. Bei $\mu_0 H = 1 \text{ T}$ ist der magnetische Überstruktureflex ebenfalls nachweisbar. Die simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität zeigt jedoch noch ein vollständiges diamagnetisches Signal der Probe an. Somit könnte hier, an der Grenze der supraleitenden Phase, Koexistenz zu beobachten sein.

Um diese Frage näher zu beleuchten und die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit genauer zu bestimmen, wurde ein elastisches Neutronenstreuexperiment am IN12 in Grenoble durchgeführt. Ein Drei-Achs-Instrument wurde gewählt, da durch die zusätzliche Energieanalyse der gestreuten Neutronen der Untergrund re-

duziert und somit das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis verbessert werden kann.

Des Weiteren wurde der in Kapitel 3.3.2 ab Seite 31 beschriebene Spulensatz in Version 2 zur simultanen Bestimmung der Wechselfeldsuszeptibilität verwendet. Ein ³He/⁴He-Entmischungskryostat erlaubt Experimente im Temperaturbereich $50 \text{ mK} \leq T \leq 1 \text{ K}$, ein Vertikalmagnet lieferte ein Magnetfeld zwischen 0 und 2 T. Die verwendete Wellenlänge betrug $\lambda = 4.65 \text{ \AA}$ ($k_f = 1.15 \text{ \AA}^{-1}$). Dieser Aufbau wurde für alle folgenden Experimente gewählt.

Im Nullfeld konnten unterhalb von $T_N = 0.7 \text{ K}$ antiferromagnetische Überstruktureflexe nachgewiesen werden. Bild 5.11 zeigt die magnetische Intensität und den Realteil der simultan ermittelten Wechselfeldsuszeptibilität in Abhängigkeit von der Temperatur für die untersuchten Magnetfelder. Im Nullfeld steigt mit sinkender Temperatur die magnetische Intensität zunächst an, um dann nach Erreichen des Maximums wieder abzufallen. Das Maximum wird bei der Temperatur erreicht, bei der die Suszeptibilität stark fällt ($T \approx T_c$).

Erhöht man nun das Magnetfeld schrittweise und wiederholt das Experiment, so verschiebt sich der Sprung in der Wechselfeldsuszeptibilität zu niedrigeren Temperaturen. Gleichzeitig erreicht die magnetische Intensität immer höhere Werte im Maximum und die Temperatur des Maximums sowie die supraleitende Sprungtemperatur T_c verschieben sich ebenfalls zu niedrigeren Temperaturen. Wie bereits im vorigen Experiment am E4, so kommt man auch anhand dieser Daten zu dem Schluss, dass die Supraleitung den Antiferromagnetismus unterdrückt. Dies wurde durch μ SR-Experimente an demselben Kristall bestätigt (Stockert06a). Allerdings wird die magnetische Intensität nicht sofort beim Auftauchen der ersten Anzeichen von Supraleitung unterdrückt. Hier bieten sich zwei Erklärungen an. Zum einen ist die Neutronenstreuung sensitiv auf das gesamte Probenvolumen, die Wechselfeldsuszeptibilität jedoch im Wesentlichen nur auf die Oberfläche der supraleitenden Bereiche. Somit könnte eine dünne supraleitende Hülle um die antiferromagnetische Phase diesen Effekt erklären. Andererseits könnte, wie bei einem Phasenübergang 1. Ordnung, mikroskopische Phasenseparation auftreten. Es bleibt jedoch ein gewisser Spielraum für eine mögliche mikroskopische Phasenkoexistenz am Rand der Supraleitung.

Betrachtet man die Position der nicht durch Supraleitung unterdrückten anti-

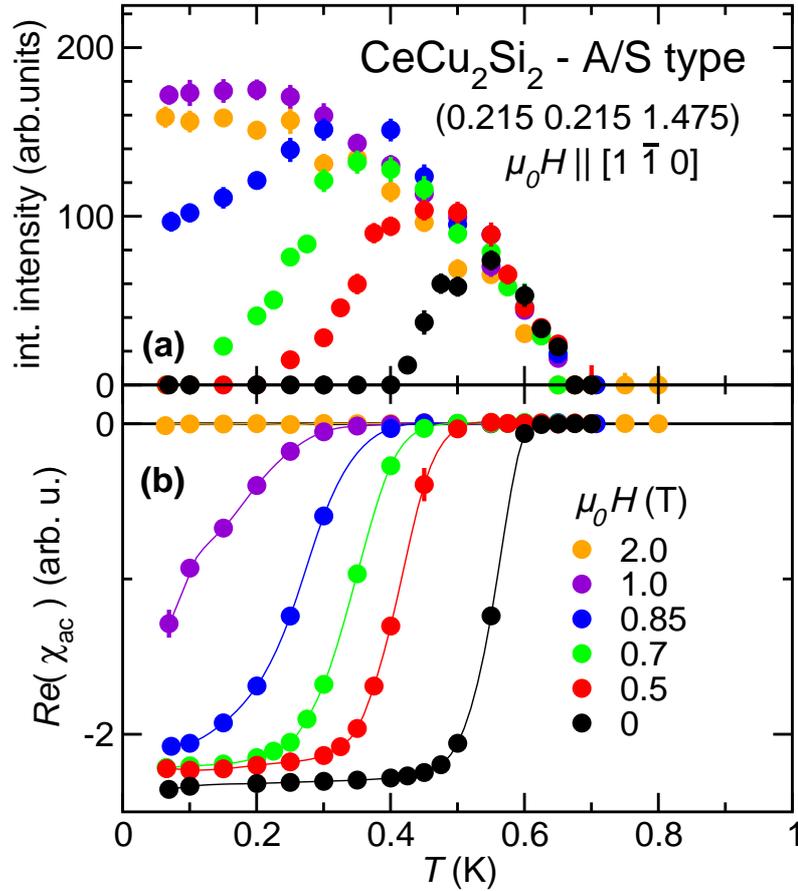


Abbildung 5.11: (a) Temperaturabhängigkeit der magnetischen Intensität (oben) des Reflexes (0.215 0.215 1.475) in A/S-Typ CeCu₂Si₂ für ausgewählte magnetische Felder parallel zur $[1 \bar{1} 0]$ -Richtung. (b) Simultan zu (a) ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität. Linien zeigen einen interpolierten Verlauf zur besseren Visualisierung der Kurvenverläufe.

ferromagnetischen Satelliten, dargestellt in Bild 5.12, so ergibt sich wie für die A-Typ-Probe ein Lock-In-Verhalten bei ca. $T_L \approx 350$ mK. Diese Temperatur ist im Rahmen der Fehlerbalken unabhängig vom Magnetfeld. Eine Magnetfeldabhängigkeit des Propagationsvektors konnte im untersuchten Feldbereich nicht gefunden werden, die Peaks liegen alle an der gleichen Position. Bild 5.13 zeigt die Magnetfeldabhängigkeit der integralen Intensität und der Position des Satelliten

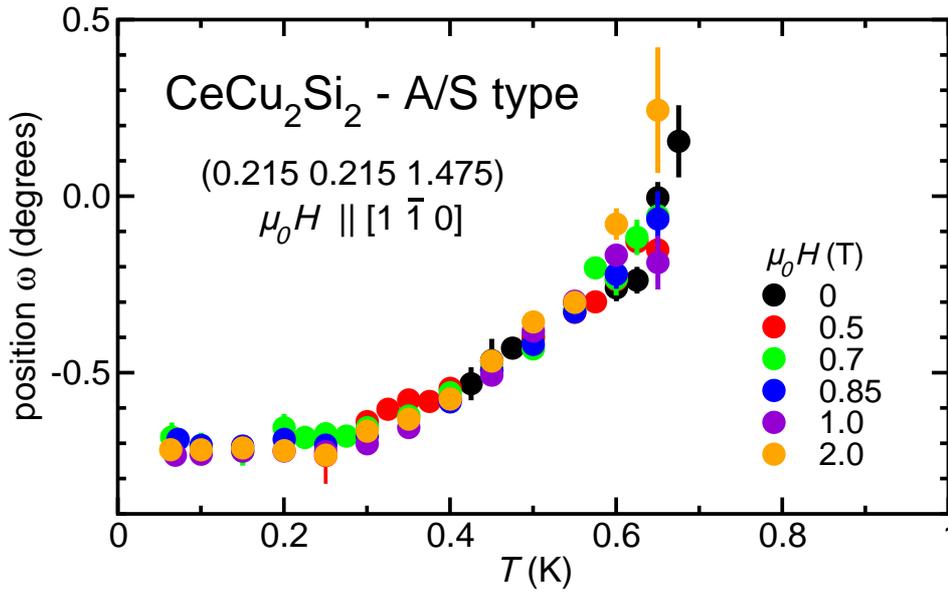


Abbildung 5.12: Position des Reflexes (0.215 0.215 1.475) in A/S-Typ CeCu_2Si_2 für ausgewählte magnetische Felder parallel zur $[1 \bar{1} 0]$ -Richtung.

(0.215 0.215 1.475) bei $T = 100$ mK. Bis zu einem Feld von ca. $\mu_0 H \approx 0.7$ T ist die magnetische Intensität vollständig unterdrückt, steigt dann linear an und ist ab ca. $\mu_0 H \approx 1.1$ T nahezu konstant. Das diamagnetische Signal der Supraleitung ist bis ca. $\mu_0 H \approx 0.7$ T voll ausgeprägt und ist oberhalb $\mu_0 H \approx 1.15$ T nicht mehr nachweisbar. Die in beiden Messgrößen, magnetische Intensität und Wechselfeldsuszeptibilität, ermittelten Anomaliefelder stimmen sehr gut überein.

Kompatibel mit den am A-Typ-Kristall gewonnenen Ergebnissen ist die Tatsache, dass bei tiefster Temperatur die magnetische Intensität für $\mu_0 H = 2$ T einen kleineren Wert annimmt als für $\mu_0 H = 1$ T. Außerdem ist die Néel-Temperatur leicht reduziert ($T_N \approx 650$ mK bei $\mu_0 H = 2$ T gegenüber $T_N \approx 670$ mK bei $\mu_0 H = 1$ T). Je weiter sich H an $H_{c2} \approx 1.3$ T (bei $T = 50$ mK) annähert, umso flacher verläuft der Sprung in der Wechselfeldsuszeptibilität. Auch dieses Resultat ist verständlich, wenn man das magnetische (B, T) -Phasendiagramm (siehe Bild 5.3 auf Seite 88) betrachtet. Bei höheren Magnetfeldern wird die Phasengrenzlinie im (B, T) -Phasendiagramm (schematisch in Bild 5.9 auf Seite 96) relativ flach geschnitten. Dies bewirkt eine Verbreiterung der Sprunganomalie.

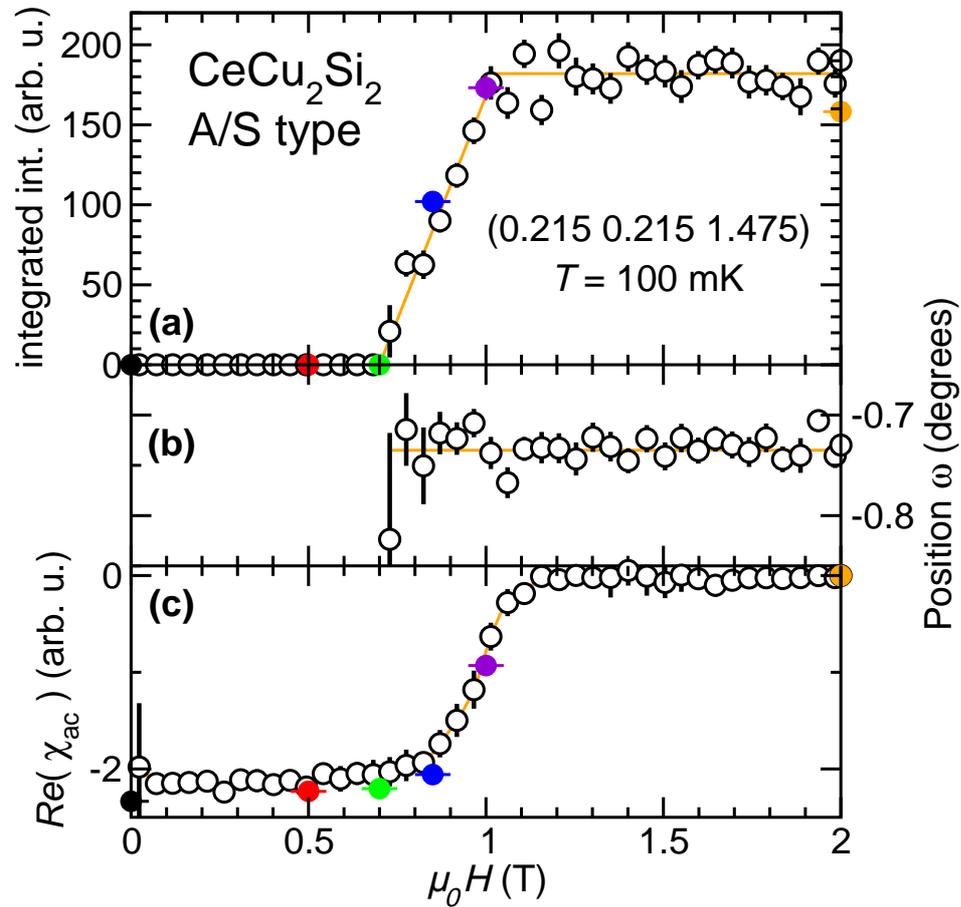


Abbildung 5.13: (a) integrale Intensität und (b) Position des Reflexes (0.215 0.215 1.475) in A/S-Typ CeCu_2Si_2 für $T = 100$ mK in Abhängigkeit eines Magnetfeldes parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Zum besseren Vergleich sind die Werte für $T = 100$ mK aus Bild 5.11 farbig eingetragen.

5.3 A+S: mikroskopische Phasenseparation

Die beiden konkurrierenden Wechselwirkungen, die einerseits zu magnetischer Ordnung, andererseits zu Supraleitung führen, erreichen vergleichbare Stärke in einer Probe vom A+S-Typ. Diese Probe ist charakterisiert durch $T_N \approx T_c \approx 0.7$ K. Bild 5.14 zeigt eine Messung der spezifischen Wärme bei $\mu_0 H = 0$ und 2 T an einer kleineren Probe aus demselben Batch, aus dem auch die mittels Neutronenstreuung untersuchte Probe stammt. Im Nullfeld ist nur ein Phasenübergang erkennbar. Bei Feldern $\mu_0 H \geq 2$ T ist dieser noch vorhanden, aber deutlich kleiner. Dies spricht für eine Entartung der beiden Phasenübergangstemperaturen im Nullfeld sowie die Unterdrückung der Supraleitung bei einem Magnetfeld $\mu_0 H \geq 2$ T.

Auch an dieser Probe wurde ein elastisches Neutronenstreuexperiment am IN12 durchgeführt. Bild 5.15 (a) zeigt die simultan ermittelten Werte für die integra-

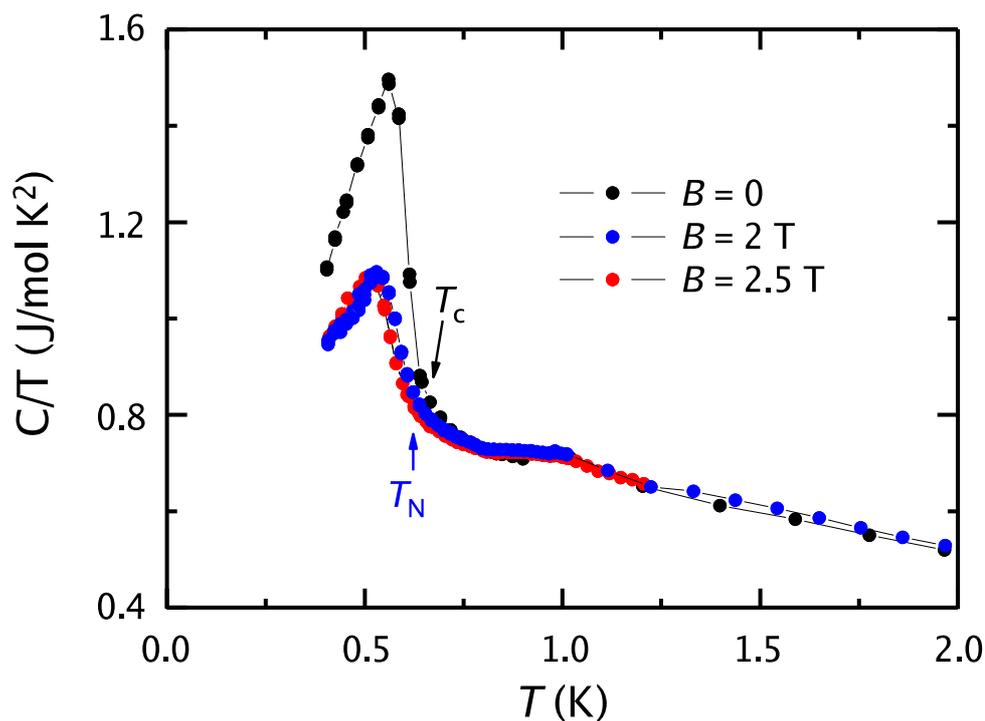


Abbildung 5.14: Spezifische Wärme C/T für $CeCu_2Si_2$ (A+S-Typ) für Magnetfelder von 0, 2 und 2.5 T (Jeevan).

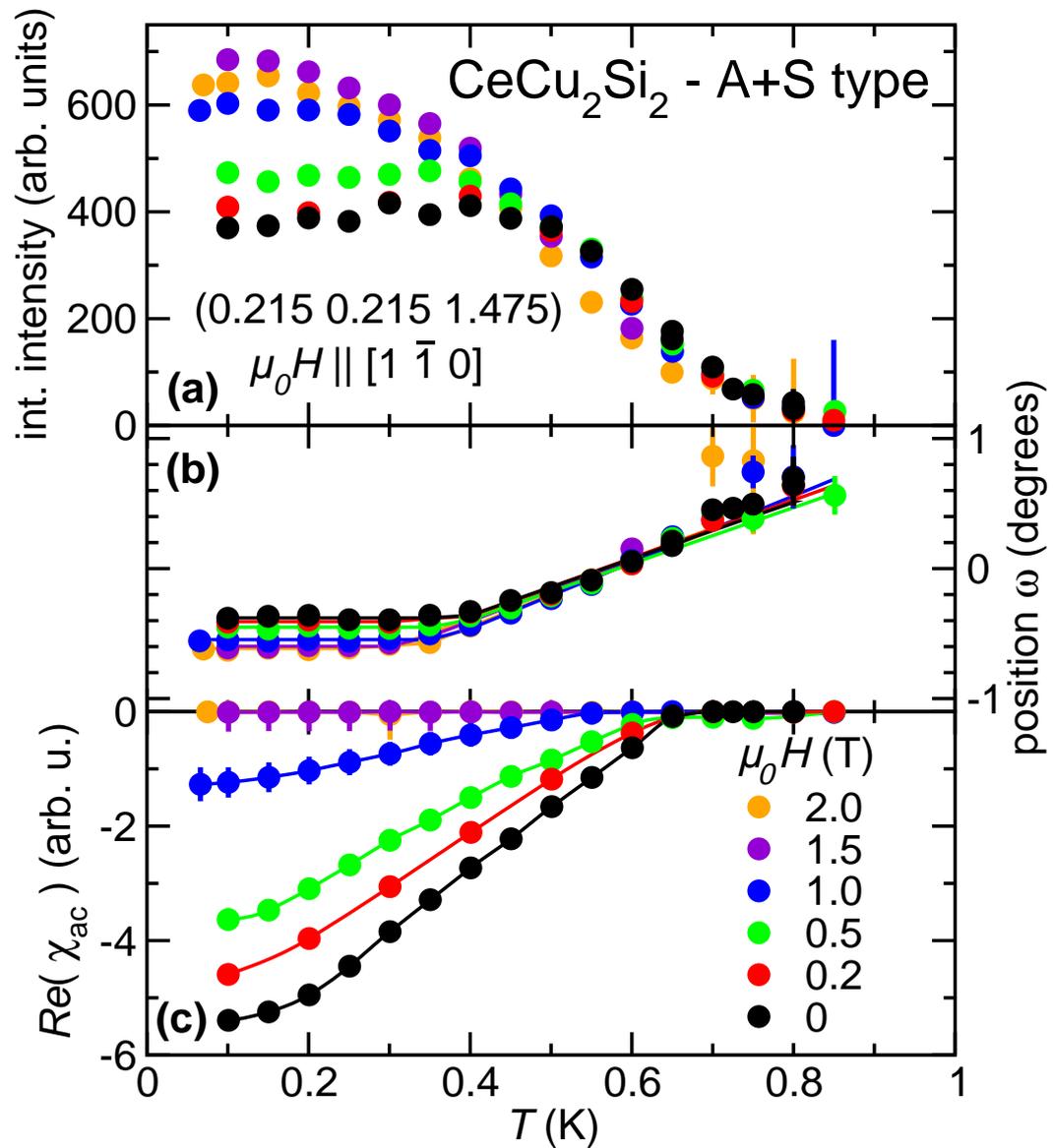


Abbildung 5.15: (a) Temperaturabhängigkeit der magnetischen Intensität (oben) des Reflexes (0.215 0.215 1.475) in A+S-Typ CeCu_2Si_2 für ausgewählte magnetische Felder parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Richtung. (b) Die durch Gaußfits bestimmte Position des Peaks im Rockingscan. (c) Die simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität.

le Intensität des magnetischen (0.215 0.215 1.475) Reflexes und den Realteil der Wechselfeldsuszeptibilität χ_{ac} für A+S-Typ $CeCu_2Si_2$. Ohne Magnetfeld steigt die Intensität unterhalb von $T_N \approx 0.7$ K an, knickt bei etwa 0.4 K ab und sättigt für kleinere Temperaturen. Vergleicht man den Sättigungswert mit dem Messergebnis bei $\mu_0 H = 1.5$ T, so ist die Intensität im Nullfeld um ca. ein Drittel reduziert. Wie erwartet, sinkt für höhere Felder $\mu_0 H \geq 1.5$ T die magnetische Intensität wieder leicht ab. Für Werte zwischen 0 und 1.5 T liegen die Intensitätswerte dazwischen und der Knick ist nicht mehr so stark ausgeprägt.

Bild 5.15 (b) zeigt die durch Gaußfits bestimmte Peakposition in den Rockingscans. Wie in den zuvor untersuchten $CeCu_2Si_2$ -Proben beobachtet man auch hier ein Lock-In-Verhalten unterhalb einer Temperatur von $T_L \approx 390$ mK für $\mu_0 H = 0$ bis $T_L \approx 330$ mK bei $\mu_0 H = 2$ T. Weiterhin ist die Position im Gegensatz zum A/S-Kristall magnetfeldabhängig.

Die Wechselfeldsuszeptibilität in Bild 5.15 (c) zeigt ein für Supraleiter untypisches Verhalten. Im Nullfeld wird unterhalb von $T_c \approx 0.7$ K kein Sprung beobachtet, sondern ein gleichmäßiger, fast linearer Abfall zu negativen Werten. Bei höheren Magnetfeldern ist dieser Anstieg deutlich flacher, oberhalb $\mu_0 H = 1.5$ T ist kein diamagnetisches Signal mehr nachweisbar. Dieses Magnetfeld korreliert sehr gut mit dem Magnetfeld, bei dem die magnetische Intensität bei $T = 100$ mK ihren maximalen Wert erreicht.

Um dieses Ergebnis zu sichern, wurde die Probe im Nullfeld eingekühlt (Zero-Field-Cooled) und danach bei konstanter Temperatur $T = 100$ mK das Magnetfeld kontinuierlich erhöht. Währenddessen wurden wiederholt Rockingscans des (0.215 0.215 1.475)-Reflexes durchgeführt. Die so erhaltenen Messwerte sind in Bild 5.16 dargestellt. Die magnetische Intensität steigt mit steigendem Feld leicht an, weist einen Knick bei $\mu_0 H \approx 1.4$ T auf und bleibt danach etwa konstant.

Die Position des Peaks im Rockingscan (grüne Symbole in Bild 5.16, die gefüllten Symbole markieren aus Bild 5.15 ermittelte Daten) zeigt eine deutlich ausgeprägte Magnetfeldabhängigkeit. Bis etwa $\mu_0 H \approx 1.4$ T verändert sich die Position quadratisch mit dem Magnetfeld. Bei größeren Magnetfeldern scheint die Peakposition auf einen konstanten Wert einzurasten.

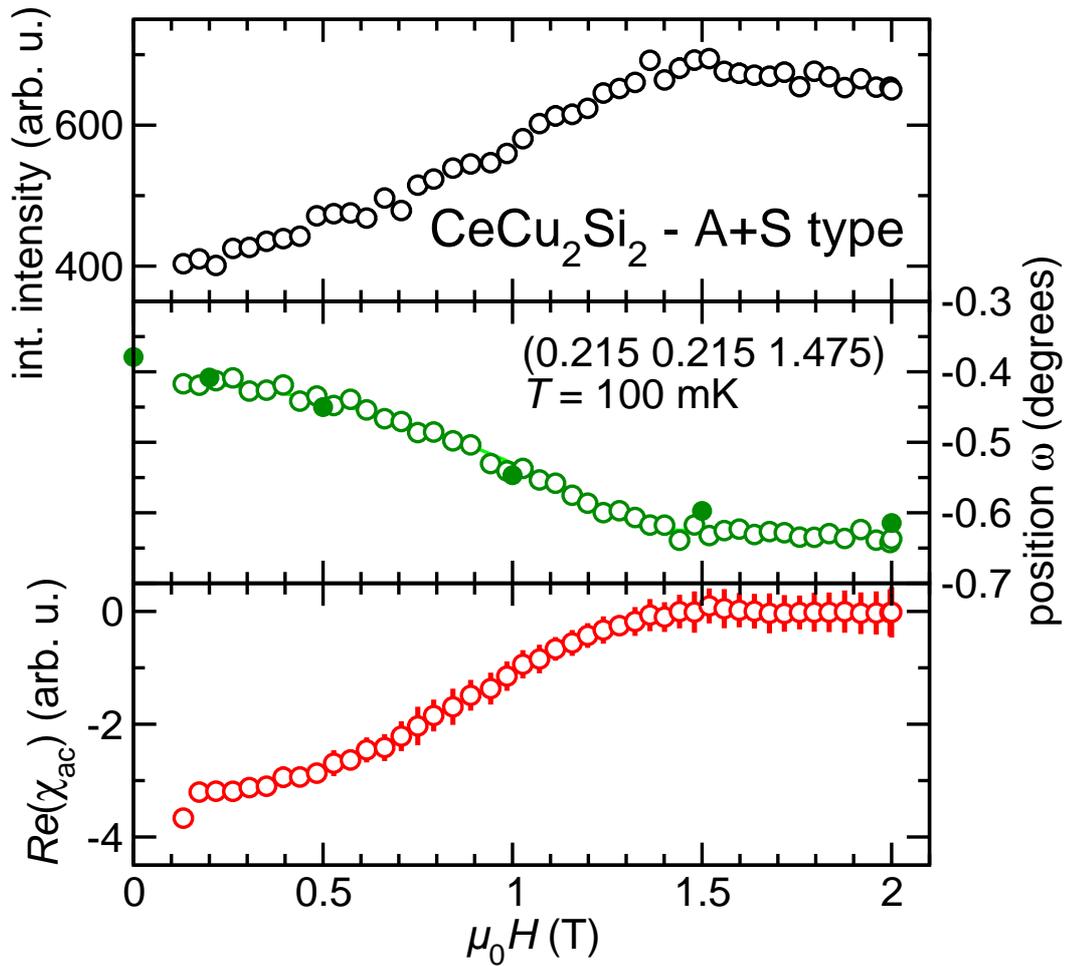


Abbildung 5.16: Magnetfeldabhängigkeit der magnetischen Intensität (schwarze Symbole) und der Position (grüne Symbole) des Reflexes (0.215 0.215 1.475) bei tiefster Temperatur sowie der Verlauf der simultan ermittelten Wechselfeldsuszeptibilität (rote Symbole) in A+S-Typ CeCu_2Si_2 .

Die Magnetfeldabhängigkeit der Wechselfeldsuszeptibilität zeigt ein der Temperaturabhängigkeit ähnliches Verhalten. Dies deutet zum einen darauf hin, dass bei $T = 100$ mK das obere kritische Feld der Supraleitung $\mu_0 H_{c2}(T = 100 \text{ mK}) \approx 1.5$ T beträgt. Zum anderen erscheint die Annahme plausibel, dass die magnetische Intensität aufgrund der Supraleitung reduziert ist, d. h. mikroskopische Phasenseparation auftritt.

Unter dieser Annahme, dass die reduzierte magnetische Intensität I_{gemessen} bei kleinen Feldern durch ein supraleitendes Teilvolumen V_S verursacht wird, kann eine erweiterte Auswertung dieser Daten erfolgen. Nimmt man weiterhin an, dass das diamagnetische Signal im supraleitenden Zustand proportional zum Volumenanteil der Supraleitung V_S ist, so lässt sich die magnetische Intensität $I_{\text{rekonstr.}}$, die ohne auftretende Supraleitung gemessen worden wäre, in erster Näherung wie folgt rekonstruieren:

$$I_{\text{rekonstr.}}(B, T) \approx I_{\text{gemessen}}(B, T) + \alpha \cdot \chi_{\text{ac}}(B, T) + \dots \quad (5.1)$$

Hierbei ist α der einzige freie Parameter. Die rekonstruierte magnetische Intensität sollte einen Feldverlauf ergeben, wie er in der A-Typ-Probe ermittelt wurde (siehe Kapitel 5.1 ab Seite 90). Da die hier verwendeten Magnetfelder sehr viel kleiner als die kritischen Felder der antiferromagnetischen Ordnung ($B_c^{\text{A-Phase}} \approx 8 \text{ T}$) sind, kann dieser Verlauf durch $I^{\text{A}}(B) \approx I_0 - B^2 * I_2$ angenähert werden. Eine Anpassung der Daten der A+S-Probe an einen solchen Verlauf mittels Gleichung (5.1) resultiert in $\alpha = (78 \pm 3)$ in willkürlichen Einheiten. Werden höhere Terme in Gleichung (5.1) mit einbezogen, verbessert sich weder die Qualität der Anpassung noch der Wert für α . Der Effekt der Supraleitung auf die Intensität magnetischer Satellitenreflexe kann also mittels Gleichung (5.1) in dieser A+S-Probe korrigiert werden. Die rekonstruierten Daten sind in Bild 5.17 (blau) zusammen mit den Rohdaten dargestellt. Die Kurve zeigt keinerlei Anomalie bei $\mu_0 H_{c2} \approx 1.5 \text{ T}$ mehr, der Einfluss der Supraleitung ist somit kompensiert. Dies bedeutet, dass die magnetische Intensität in A+S-Typ CeCu_2Si_2 gegenüber den A-Typ-Proben durch partielle Supraleitung reduziert wird und dieser Effekt korrigiert werden kann.

Wendet man dieses ‘Korrekturverfahren’ auf die in Bild 5.15 dargestellten Daten an, so lässt sich der Einfluss der partiellen Supraleitung vollständig korrigieren. Der resultierende Datensatz ist in Bild 5.18 dargestellt. Man erkennt, dass für ansteigendes Magnetfeld sowohl die Ordnungstemperatur T_N als auch die Intensität bei tiefster Temperatur kontinuierlich sinken. Des Weiteren zeigen die Kurven sämtlich keine Anomalien mehr, sondern ein monotones Verhalten. Dieses für antiferromagnetische Phasen in einem Magnetfeld charakteristische Verhalten wurde

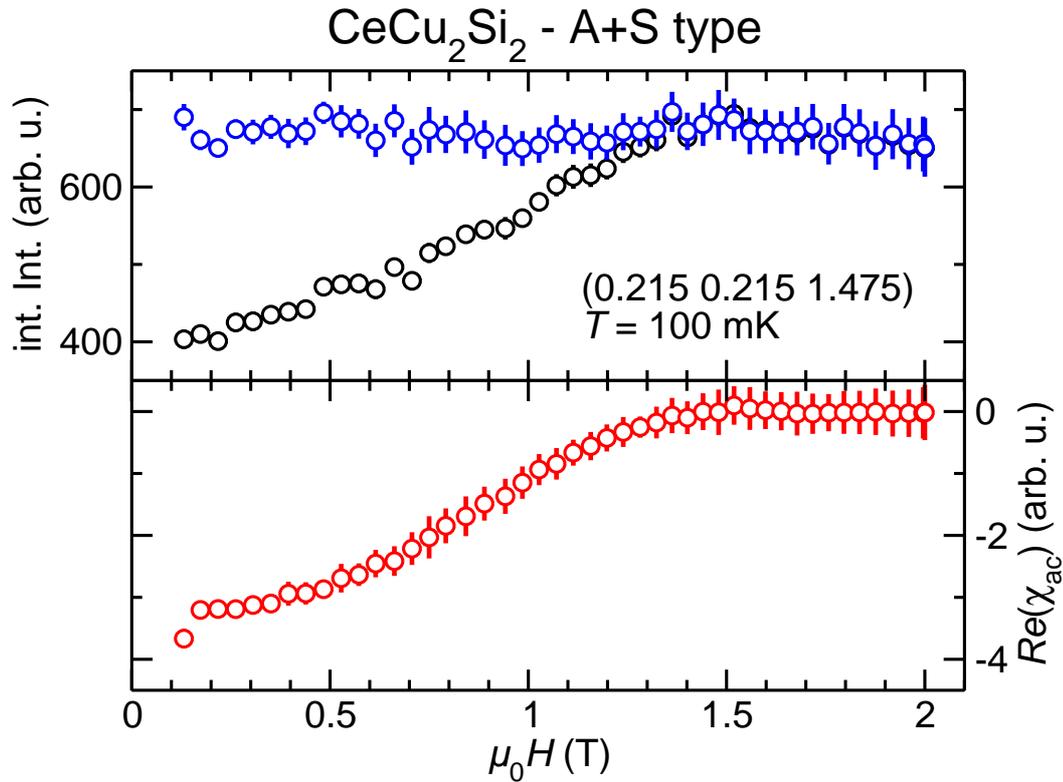


Abbildung 5.17: Rohdaten aus Bild 5.16 sowie die rekonstruierte magnetische Intensität (blaue Symbole), welche vergleichbar mit der Feldabhängigkeit der magnetischen Intensität im A-Kristall ist.

auch schon bei A-Typ-Proben (vgl. Kapitel 5.1 ab Seite 90) beobachtet. Somit lassen sich die intrinsischen Eigenschaften von A-Typ-Proben auch in diesem A+S-Einkristall studieren.

Jetzt kann auch das merkwürdige Verhalten der magnetfeldabhängigen Peakposition interpretiert werden: Hier lässt sich direkt die Auswirkung der Supraleitung auf den Magnetismus beobachten! In A-Typ-Proben wurde keine signifikante Positionsänderung gefunden, in A/S-Typ-Proben unterdrückt die Supraleitung die magnetische Intensität. In der A+S-Typ-Probe jedoch reduziert die Supraleitung nur die magnetische Intensität, sodass die Peakposition beobachtet werden kann. Somit ist eindeutig die (partielle) Supraleitung verantwortlich für die starke Positionsänderung. D. h., dass die Supraleitung nicht nur den Magnetismus unterdrücken

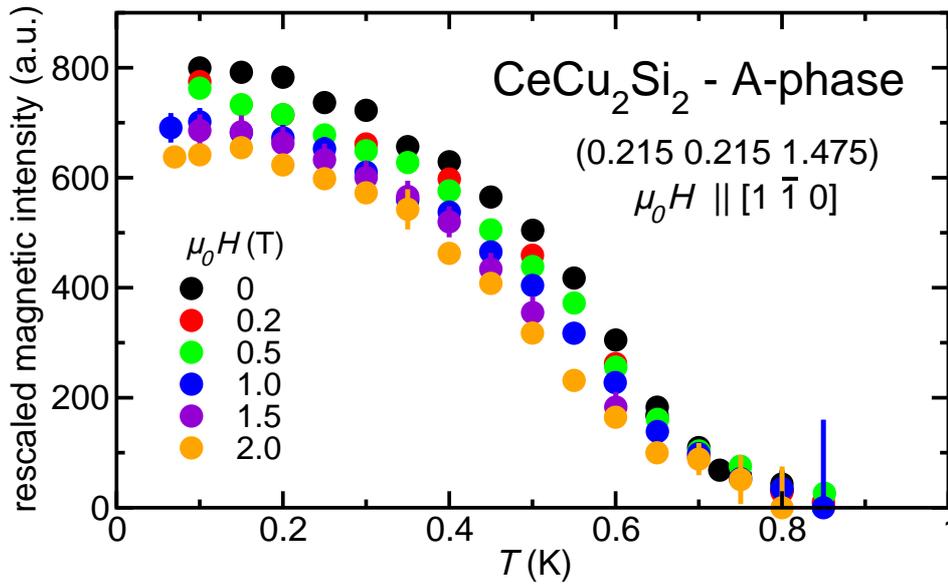


Abbildung 5.18: Reskalierte Intensität nach Gleichung (5.1) der Daten aus Bild 5.15.

kann, sondern auch (da der Propagationsvektor durch Fermiflächen-Nesting dominiert wird) die Fermifläche beeinflusst! Da nur ein Satellit untersucht wurde und nur Rockingscans gemacht wurden, kann aus der Position leider nicht der Propagationsvektor bestimmt werden, hierzu sind jedoch Messungen geplant.

Die oft aufgeworfene Frage nach mikroskopischer Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus in $CeCu_2Si_2$ lässt sich ebenfalls anhand der Bilder 5.17 und 5.18 beantworten. Bereits in den A/S-Typ-Proben konnte ein großes Koexistenzgebiet ausgeschlossen werden (siehe 5.2 auf Seite 94). Theoretische Rechnungen (Thalmeier04) erlauben jedoch noch ein, wenn auch schmales, Koexistenzgebiet bei einem Phasenübergang, welches von der Symmetrie der Ordnungsparameter der Supraleitung bzw. der antiferromagnetischen Phase abhängt. In einer solchen Koexistenzphase würde aber sowohl der Magnetismus zu Streuintensität beitragen als auch die Supraleitung in der Wechselfeldsuszeptibilität ein diamagnetisches Signal erzeugen. Die rekonstruierte Intensität wäre also im Koexistenzbereich erhöht, da im Koexistenzgebiet beide Messgrößen in Formel (5.1) voll beitragen würden. Es würde sich also ein Peak in der rekonstruierten Intensität ergeben. Dieser Effekt ist in Bild 5.18 nicht beobachtbar. Folglich kann Koexistenz ausgeschlossen

werden, es tritt mikroskopische Phasenseparation auf.

5.4 S-Typ: Antiferromagnetische Korrelationen

Bei CeCu_2Si_2 -Proben vom S-Typ konnte mit makroskopischen Methoden außer Supraleitung unterhalb von $T_c = 0.6 \text{ K}$ keine weitere Phase identifiziert werden. Bei Anlegen eines Magnetfeldes von 2 T wird zwar die Supraleitung unterdrückt, es ist jedoch keine antiferromagnetische Signatur beobachtbar.

Im Neutronenstreuexperiment am IN12 konnte keine langreichweitige antiferromagnetische Ordnung beobachtet werden. Stattdessen treten unterhalb einer Temperatur von ca. $T_k \approx 0.8 \text{ K}$ ca. 2 Grad breite Braggreflexe an Positionen auf, an denen in magnetisch ordnenden Proben scharfe Satelliten gefunden wurden. Aus der gegenüber der Mosaizität nuklearer Reflexe von ca. 0.4 Grad stark erhöhten Reflexbreite (Bild 5.19) kann eine im Wesentlichen temperaturunabhängige Korrelationslänge von ca. 60 – 70 Å bestimmt werden. Die kurzreichweitigen Korre-

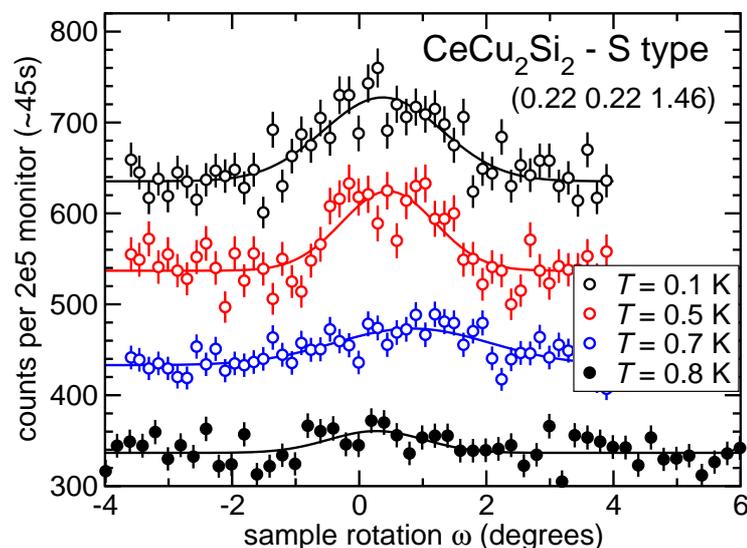


Abbildung 5.19: Ausgewählte Rockingscans in S-Typ CeCu_2Si_2 über die Position (0.22 0.22 1.46), jeweils um 100 Einheiten gegeneinander versetzt. Die Linien geben Gaußfits an die Daten wieder und dienen nur der Visualisierung.

tionen treten auch schon bei Temperaturen auf, bei denen noch keine Supraleitung nachweisbar ist.

Bild 5.20 zeigt oben die (mittels Gaußfit bestimmte) integrale Intensität der gefundenen antiferromagnetischen Korrelationen. Die Temperaturabhängigkeit ist vergleichbar mit der in der A-Typ-Probe beobachteten. Im mittleren Teilbild ist die Position der Reflexe dargestellt. Man erkennt auch hier wieder ein Lock-In-Verhalten bei $T_L \approx 350$ mK, welches eigentlich typisch für die langreichweitig geordnete A-Phase ist. Im unteren Teilbild ist die simultan ermittelte Wech-

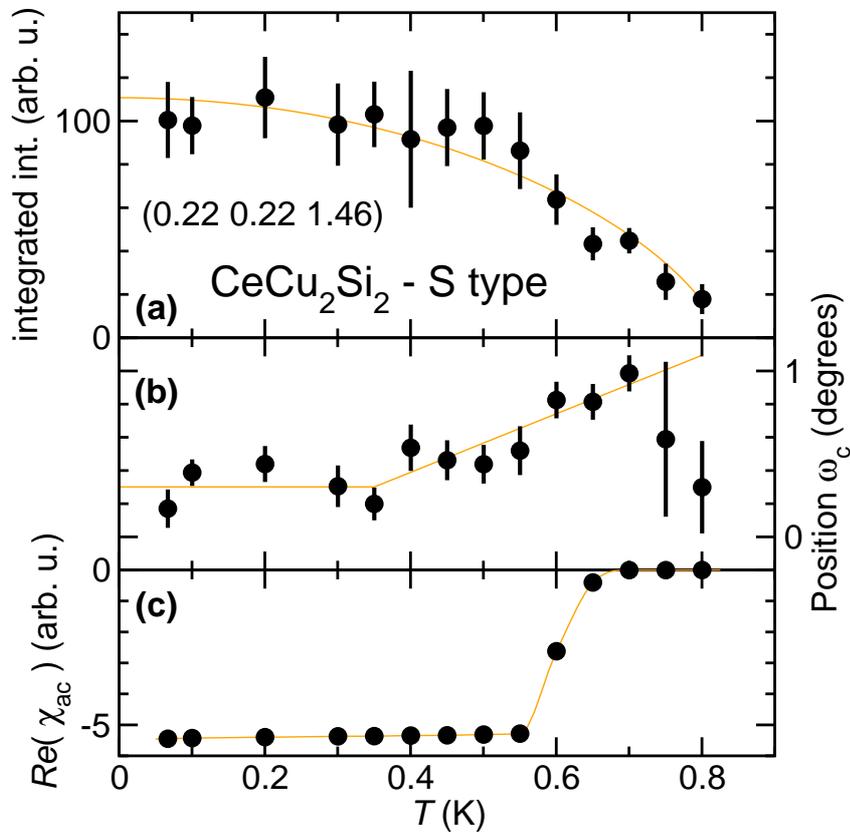


Abbildung 5.20: (a) Temperaturabhängigkeit der magnetischen Intensität um die Position (0.22 0.22 1.46) in S-Typ $CeCu_2Si_2$ im Nullfeld. (b) Reflexposition im Rockingscan und (c) simultan ermittelte Wechselfeldsuszeptibilität. Die interpolierten Linien verdeutlichen den Kurvenverlauf.

selfeldsuszeptibilität dargestellt. Man erkennt einen sehr scharfen Sprung bei ca. $T = 600$ mK. Dies ist in den CeCu_2Si_2 -Proben die höchste ermittelte supraleitende Sprungtemperatur. Bei dieser Temperatur ist, im Gegensatz zu den zuvor untersuchten Proben, keine ausgeprägte Anomalie in der magnetischen Intensität beobachtbar.

Aus diesen Beobachtungen kann gefolgert werden, dass die Eigenschaften der kurzreichweitigen Korrelationen im Wesentlichen mit denen der A-Phase übereinstimmen. Dies kann als starkes Indiz gewertet werden, dass in dieser Probe die Supraleitung die A-Phase nicht vollständig unterdrückt, sondern lediglich die Ausbildung einer langreichweitigen Ordnung verhindert. Ein vergleichbarer Effekt wurde auch in einigen A-Typ-Proben beobachtet, in denen parasitäre Supraleitung auftritt ([Stockert06b](#)). In diesen Proben wird die Korrelationslänge der antiferromagnetischen Struktur bei Auftreten der Supraleitung reduziert und die Breite der magnetischen Braggreflexe nimmt zu. Dieses Ergebnis ist gleichzeitig ein weiteres Indiz, dass sich Supraleitung und Magnetismus in CeCu_2Si_2 auf mikroskopischen Skalen ausschließen.

5.5 Zusammenfassung der Ergebnisse zu CeCu_2Si_2

Im System CeCu_2Si_2 konnten in allen untersuchten Proben antiferromagnetische Korrelationen nachgewiesen werden. Diese ordnen, außer in der S-Typ-Probe, unterhalb einer Néel-Temperatur von $T_N = 0.7 - 0.9$ K langreichweitig mit einem geordneten Moment $\mu \approx 0.1 \mu_B$ (abgeschätzt anhand der magnetischen Intensität im Vergleich zu $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$). Das Auftreten von Supraleitung lässt sich immer mit einer reduzierten antiferromagnetischen Intensität und mit einem reduzierten magnetisch geordneten Volumen korrelieren. Es konnten keine Hinweise auf eine mikroskopische Koexistenz von Supraleitung und magnetischer Ordnung gefunden werden, stattdessen tritt Phasenseparation auf. Zum Nachweis war der A+S-Typ-Kristall besonders hilfreich. Die durch Supraleitung beschränkte Korrelationslänge der A-Phase im S-Kristall bestärkt dieses Ergebnis weiter. Des Wei-

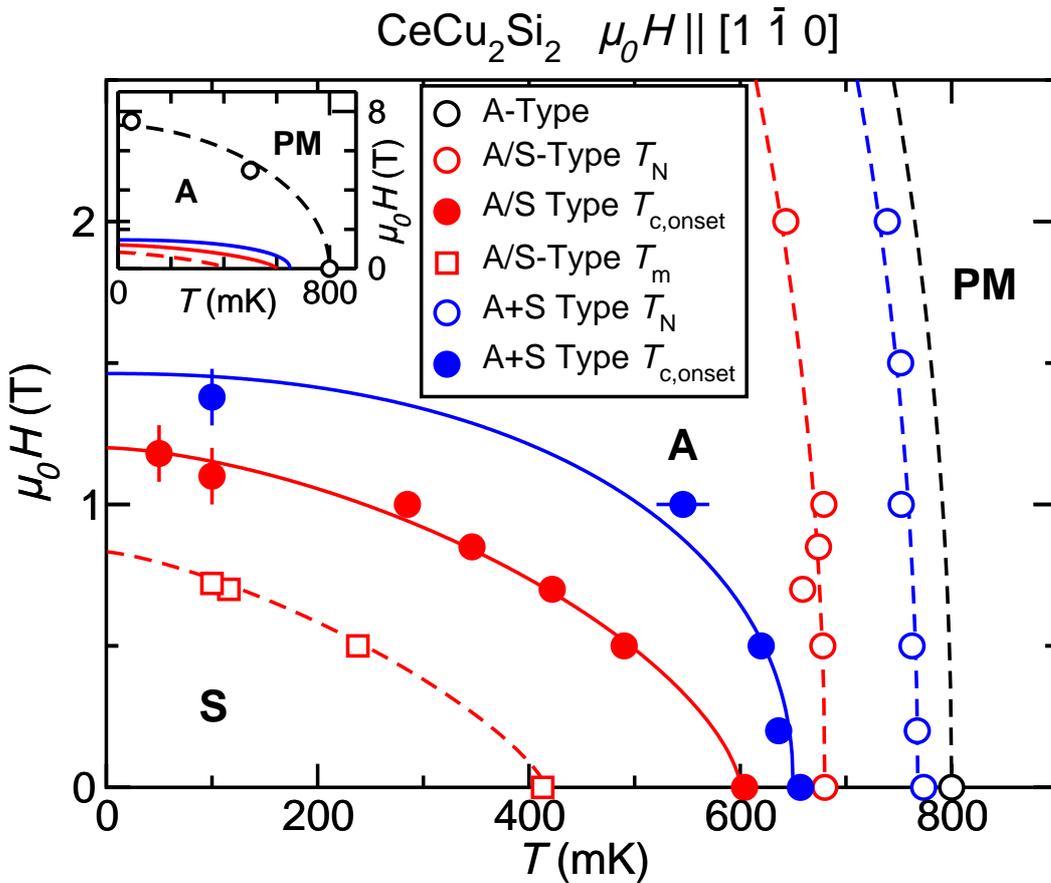


Abbildung 5.21: Magnetisches (B, T) -Phasendiagramm für CeCu_2Si_2 . Die Datenpunkte wurden anhand der vorgestellten Messungen für magnetische Intensität $I(T) \rightarrow 0$ (offene Symbole) sowie $\chi(T) \rightarrow 0$ (geschlossene Symbole) bestimmt. Daten verschiedener Proben sind durch Farben zugeordnet. Die interpolierten Linien verdeutlichen den Kurvenverlauf und dienen nur zur Visualisierung.

teren konnte anhand der magnetfeldabhängigen Positionsänderung im A+S-Typ-Kristall der Nachweis erbracht werden, dass die Supraleitung die Fermifläche beeinflusst, da sich der Propagationsvektor ändert. Durch die Neutronenstreuexperimente konnten also neue Erkenntnisse gewonnen werden, die nur durch makroskopische Messungen nicht zugänglich sind!

Bild 5.21 zeigt das aus den vorgestellten Daten erstellte magnetische (B, T) -

Phasendiagramm. Die verschiedenen Proben sind farbkodiert, die S-Typ-Probe wurde ausgelassen. Die Datenpunkte wurden durch lineare Extrapolation von $I(T) \rightarrow 0$ (für T_N , offene Symbole) bzw. $\chi(T) \rightarrow 0$ (für $T_{c,\text{onset}}$, geschlossene Symbole) bestimmt. Abweichend von der üblichen Vorgehensweise (50% vom Sprung für T_c bzw. Wendepunkt in $\chi(T)$) wurde dieses Verfahren gewählt, da die A+S-Typ-Probe keinen Sprung in der Wechselfeldsuszeptibilität zeigt und somit ein Vergleich sonst nicht möglich wäre. Durch dieses Verfahren bedingt, werden für die A/S-Probe bei kleinen Magnetfeldern zwei Temperaturen bestimmt: Einmal beim Einsetzen der langreichweitigen Ordnung (T_N), aber auch beim vollständigen Unterdrücken der A-Phase durch die Supraleitung (T_m). Die Linien dienen nur der Orientierung, hier wurde folgender, rein phänomenologisch motivierter Ansatz gewählt:

$$\left(\frac{H}{H_c(T \rightarrow 0)}\right)^k + \left(\frac{T}{T_c(H \rightarrow 0)}\right)^k = 1 \quad . \quad (5.2)$$

um die Linien an die Datenpunkte anzupassen. Die Linien für T_N sind, bis auf einen Skalierungsfaktor, identisch und im Wesentlichen durch die Daten des A-Kristalls festgelegt.

In allen langreichweitig geordneten Proben tritt ein Lock-In-Übergang bei etwa $T \approx 350$ mK auf. Unterhalb dieser Temperatur ist der Propagationsvektor konstant mit $\vec{\tau} \approx (0.22 \ 0.22 \ 0.54)$, wobei sich nur eine leichte Probenabhängigkeit zeigt. Auch die Korrelationen in der S-Typ-Probe zeigen diesen Effekt. Durch ein angelegtes Magnetfeld sinkt die (evtl. reskalierte) Intensität der magnetischen Satelliten kontinuierlich. Auch die Ordnungstemperatur T_N wird durch ein Magnetfeld reduziert. Die Unterschiede der Proben beziehen sich daher weitestgehend auf das Auftreten von Supraleitung, welche die magnetische Intensität reduziert (A+S-Typ), ganz unterdrückt (A/S-Typ) oder deren Korrelationslänge beschränkt (S-Typ).

In der B-Phase, die nur in einem starkem Magnetfeld stabil ist, wurden keine antiferromagnetischen Satelliten beobachtet. Da der reziproke Raum nur punktuell abgetastet werden konnte, sollten hier Nachfolgeexperimente durchgeführt werden, um die Natur der B-Phase aufzuklären.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden Neutronenstreuxperimente an verschiedenen ausgewählten Proben des Systems $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ durchgeführt und ausgewertet. Dabei konnte das aus makroskopischen Messungen bekannte Bild um wichtige Erkenntnisse erweitert werden.

Bild 6.1 zeigt das magnetische (x, T) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ für $x \leq 0.5$. Die in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse sind rot eingetragen. Die Natur der anfangs uncharakterisierten magnetischen A-Phase konnte als langreichweitige antiferromagnetische Ordnung nachgewiesen werden. Der Propagations-

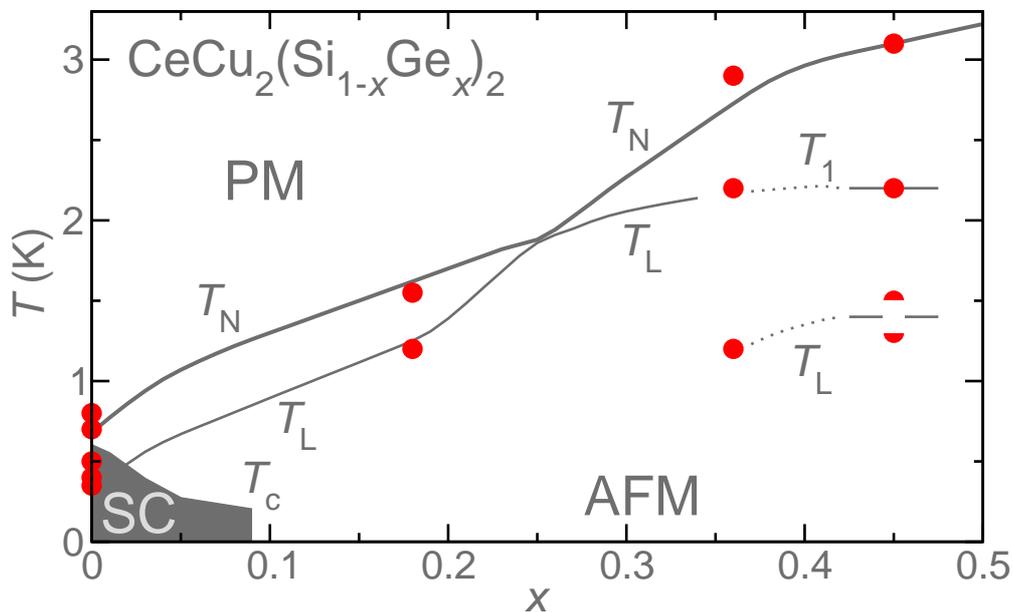


Abbildung 6.1: Magnetisches (x, T) -Phasendiagramm von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ für $0 \leq x \leq 0.5$ (siehe auch Bild 4.3 auf Seite 40). Eigene Ergebnisse sind durch rote Kreise markiert.

vektor liegt dabei immer in der Nähe von $\vec{\tau} \approx (1/4 \ 1/4 \ 1/2)$, wie er in theoretischen Modellen für ein Fermi-Flächen-Nesting schwerer Quasiteilchen vorhergesagt wird (Stockert04; Zwicknagl07). Mit sinkendem Germaniumanteil x verringert sich die magnetische Intensität und somit das geordnete magnetische Moment kontinuierlich. Auch die Phasenübergangstemperaturen, die sehr gut mit den aus makroskopischen Messungen ermittelten übereinstimmen, werden dabei reduziert. Hierbei tritt eine Anomalie bei $x \approx 0.25$ auf.

Für $x > 0.25$ werden unterhalb der antiferromagnetischen Ordnungstemperatur T_N zwei weitere Phasenübergänge beobachtet: Ein Spinreorientierungsübergang bei höherer Temperatur sowie ein Lock-In-Übergang bei tieferer Temperatur. Dabei wurde für $x = 0.36$ ein weiterer magnetischer Phasenübergang bei $T_L \approx 1.2$ K gefunden, welcher bisher in makroskopischen Messungen nicht nachgewiesen wurde, sich aber sehr gut in die Systematik des Phasendiagramms einfügt. Der Propagationsvektor ist im Wesentlichen konstant $\vec{\tau} \approx (0.27 \ 0.27 \ 0.5)$. Eine Abweichung tritt nur für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ auf. Für $x = 0.25$ findet man sowohl in makroskopischen Messungen als auch mit Neutronendiffraktion nur den Phasenübergang in die magnetisch geordnete A-Phase. Der Propagationsvektor ist unterhalb von T_N konstant und vergleichbar mit dem Bereich $x > 0.25$. Für $x < 0.25$ schließlich findet man unterhalb der antiferromagnetischen Ordnungstemperatur stets nur einen weiteren Phasenübergang, bei dem der Propagationsvektor ein Lock-In-Verhalten zeigt. Der Propagationsvektor ist vom Germaniumgehalt x abhängig und variiert von $\vec{\tau} \approx (0.27 \ 0.27 \ 0.53)$ für $x = 0.25$ bis $\vec{\tau} \approx (0.21 \ 0.21 \ 0.52)$ in CeCu_2Si_2 . Der Verlauf des Propagationsvektors in Abhängigkeit von der Temperatur zeigt für verschiedene Proben unterschiedliches Verhalten und konnte bisher keiner Systematik zugeordnet werden.

Die magnetische Struktur in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ konnte nach mehreren aufwändigen Experimenten für die Tieftemperaturphase bestimmt werden. Hierbei tritt, im Gegensatz zu den anderen untersuchten Proben bzw. Temperaturen, eine Reduktion der Symmetrie der magnetischen Struktur auf, die in zwei Untergitter zerfällt. Weiterhin ist nur in dieser Probe die L-Komponente des Propagationsvektors $\tau_L = 0.49 < 0.5$: sie nimmt somit nach dem bisherigen Erkenntnisstand eine Sonderstellung im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ ein.

Die magnetfeldabhängige Untersuchung verschiedener CeCu_2Si_2 -Proben konnte die vermutete Antagonie zwischen der magnetischen Ordnung und der Supraleitung bestätigen, es tritt keine Koexistenz von antiferromagnetischer Ordnung und Supraleitung auf. Insbesondere die Messergebnisse der A+S-Typ-Probe erwiesen sich als sehr ergiebig, da durch die kontinuierliche Stärkung der Supraleitung bei fallender Temperatur der Verlust an magnetischer Intensität sehr gut nachvollzogen werden konnte. Die magnetische Streuintensität lässt sich um den Effekt der Supraleitung bereinigen und spiegelt die Eigenschaften der A-Phase wieder, wie sie beispielsweise im A-Typ-Einkristall beobachtet wurden. Weiterhin kann eine mikroskopische Koexistenz (im gleichen Volumen) von antiferromagnetischer Phase und Supraleitung ausgeschlossen werden. Bei einem angelegten Magnetfeld von $\mu_0 H = 2 \text{ T}$ ist die magnetische A-Phase im gesamten Temperaturbereich unterhalb T_N beobachtbar und zeigt in allen Proben ein Lock-In-Verhalten des Propagationsvektors bei ca. 350 mK sowie eine vergleichbare Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors. Die nur in der A+S-Typ-Probe aufgetretene starke Rückkopplung der Supraleitung auf den Propagationsvektor ist ebenfalls ein neues Ergebnis, welches nur durch Neutronendiffraktion gewonnen werden konnte. Hierdurch lässt sich auf eine Beeinflussung der Fermifläche durch die Supraleitung schließen.

In stärkeren Magnetfeldern zeigen sich innerhalb der Fehlerbalken keine Positionsänderungen. Lediglich die magnetische Intensität nimmt ab, bis bei $\mu_0 H = 8 \text{ T}$, $T = 50 \text{ mK}$ und $\vec{H} \parallel [1 \bar{1} 0]$ der Übergang in die B-Phase erfolgt. T_N ist ebenfalls leicht magnetfeldabhängig, verändert sich jedoch nicht drastisch.

Obleich die vorliegende Arbeit einen großen Schritt zum Wissensstand über $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ beigetragen hat, wurden auch einige spannende Fragen neu aufgeworfen.

Die anfangs angestrebte Extrapolation der magnetischen Struktur von $x = 0.45$ auf CeCu_2Si_2 scheint nicht direkt möglich, da $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ innerhalb der untersuchten Proben eine Sonderstellung einzunehmen scheint. Bisher fanden Strukturuntersuchungen an CeCu_2Ge_2 jedoch nur für $T > 1.5 \text{ K}$ statt, somit könnte die für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ ermittelte Magnetstruktur möglicherweise den Grundzustand für $0.45 \leq x \leq 1$ darstellen. Hier muss allerdings auch der Frage nach der magnetischen Struktur zwischen $x = 0.25$ und $x = 0.45$ geklärt werden, da die

Eigenschaften von $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.64}\text{Ge}_{0.36})_2$ sich von denen für $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ deutlich unterscheiden.

Auf die Frage nach dem (tetra-) kritischen Punkt bei $x = 0.25$ konnte eine Teilantwort gefunden werden, da Unterschiede im Propagationsvektor für $x > 0.25$ bzw. $x < 0.25$ beobachtet werden. Um eine genauere Aussage zu erhalten, sind weitere Experimente näher an $x \approx 0.25$ nötig.

Eine völlig neue Fragestellung betrifft die Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors. Alle CeCu_2Si_2 -Proben zeigen hier (soweit beobachtbar) ein übereinstimmendes Verhalten, obgleich sie gezielt durch stöchiometrische Variation hergestellt wurden. Auf der anderen Seite jedoch zeigen die Proben im System $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ eine Temperaturabhängigkeit des Propagationsvektors, die bisher keiner Systematik zugeordnet werden konnte. Hier bieten sich Neutronenstreuexperimente unter hydrostatischem Druck an, um die Einflüsse von Unordnung und Gitterdruck zu separieren.

Für $x = 0.25$ ergibt sich für die mittlere Neutronenstrelänge der Silizium und Germaniumatome genau der Wert der Strelänge für Kupfer. Dieser Verlust an Kontrast reduziert die Intensität des nuklearen (1 1 0) (und anderer) Reflexe stark, sodass evtl. auftretende ferromagnetische Korrelationen in einem externen Magnetfeld beobachtbar werden könnten. Unter Druck ließen sich in einer solchen Probe dann auch die Eigenschaften im Bereich $x < 0.25$ ohne zusätzliche substituitionsabhängige Effekte detaillierter untersuchen, evtl. ließen sich sogar Erkenntnisse über die B-Phase gewinnen.

Ausgehend vom magnetischen (B, T)-Phasendiagramm von CeCu_2Si_2 ist auch das Studium von Proben mit $x > 0$ im Magnetfeld vielversprechend. Makroskopische Messungen fanden bereits ein reichhaltiges Spektrum an Phasenübergängen ([Deppe04a](#)), erste Neutronenstreuexperimente in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.55}\text{Ge}_{0.45})_2$ deuten auch hier neue Erkenntnisse an ([Schneidewind](#)).

Naturgemäß konnten nicht alle Fragen im Rahmen dieser Arbeit geklärt werden. Zusammenfassend kann jedoch festgehalten werden, dass durch die vorliegende Arbeit ein großer Schritt im Verständnis von Schwere-Fermionen-Systemen, speziell CeCu_2Si_2 gelang. Die gewonnenen Erkenntnisse werden eine große Hilfe sein, theoretische Modelle, speziell zur Wechselwirkung zwischen Magnetismus und Supraleitung, zu verbessern.

Literaturverzeichnis

- [Anderson06] I. S. Anderson, P. J. Brown, J. M. Carpenter, G. Lander, R. Pynn, J. M. Rowe, O. Schärpf, V. F. Sears, B. T. M. Willis. *International Tables for Crystallography*, Band C, Kapitel 4.4. International Union of Crystallography, 3. Auflage (2006).
- [Authier06] A. Authier (Herausgeber). *International Tables for Crystallography*, Band D, Kapitel 1.5.4. International Union of Crystallography, 3 Auflage (2006), Seiten 125–127.
- [Baruchel94] J. Baruchel, J. L. Hodeau, M. S. Lehmann, J. R. Regnard, C. Schlenker (Herausgeber). *Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies*, Band 2. Springer Verlag (1994).
- [Batlogg85] B. Batlogg, J. Remeika, A. Cooper, G. Stewart, Z. Fisk, J. Willis. ‘Variation of the Heavy Fermion ground state in CeCu_2Si_2 crystals by stoichiometry control.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **47-48**, (1985) 42.
- [Blume85] M. Blume. ‘Magnetic scattering of x rays.’ *Journal of Applied Physics*, **57(8)**, (1985) 3615.
- [Bredl85] C. Bredl, W. Lieke, R. Schefzyk, M. Lang, U. Rauchschwalbe, F. Steglich, S. Riegel, R. Felten, G. Weber, J. Klaasse, J. Aarts, F. de Boer. ‘Specific heat and thermal expansion of CeCu_2Si_2 at low temperature.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **47-48**, (1985) 30.

- [Bruls94] G. Bruls, B. Wolf, D. Finsterbusch, P. Thalmeier, I. Kouroudis, W. Sun, W. Assmus, B. Lüthi. ‘Unusual B - T Phase Diagram of the Heavy-Fermion Superconductor $CeCu_2Si_2$.’ *Physical Review Letters*, **72(11)**, (1994) 1754.
- [Coleman06] P. Coleman. ‘Heavy Fermions: electrons at the edge of magnetism.’ *airxiv:cond-mat*, **12**, (2006) 0612006.
- [Deppe04a] M. Deppe. *Einkristallzüchtung und Untersuchung der magnetischen Eigenschaften des Schwere Fermion-Systems $CeCu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$* . Dissertation, Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Dresden (2004).
- [Deppe04b] M. Deppe, R. Borth, C. Geibel, P. Hinze, N. Oeschler, O. Stockert, F. Steglich. ‘Study of the magnetic order in $CeCu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$: evidence for a critical point at $x = 0.25$.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **272-276**, (2004) 40.
- [Dianoux01] A.-J. Dianoux, G. Lander (Herausgeber). *Neutron Data Booklet*. Institut Laue-Langevin Grenoble (2001).
- [Doniach77] D. Doniach. ‘The Kondo lattice and weak antiferromagnetism.’ *Physica B: Condensed Matter+C*, **91**, (1977) 231.
- [Donnevert98] L. Donnevert, P. Hellmann, S. Thomas, O. Trovarelli, C. Geibel, G. Sparn, F. Steglich. ‘Development of magnetic order in $CeCu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ as a function of hybridization.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **177-181**, (1998) 375.
- [Faulhaber04] **E. Faulhaber**, O. Stockert, M. Rheinstaedter, M. Deppe, C. Geibel, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Magnetic structure of the heavy-fermion alloy $CeCu_2(Si_{0.5}Ge_{0.5})_2$.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **272-276**, (2004) 44.

- [Faulhaber05] **E. Faulhaber**, O. Stockert, H. S. Jeevan, K. Prokes, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Magnetic field dependence of the magnetic order in A-type CeCu_2Si_2 .’ *Physica B: Condensed Matter*, **359-361**, (2005) 357.
- [Faulhaber06] **E. Faulhaber**, O. Stockert, B. Grenier, B. Ouladdiaf, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Magnetic phases in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ near the tetracritical point.’ *Physica B: Condensed Matter*, **378-380**, (2006) 78.
- [Faulhaber07] **E. Faulhaber**, O. Stockert, K. Schmalzl, H. Jeevan, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Spatial separation of superconductivity and antiferromagnetism in CeCu_2Si_2 .’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **310**, (2007) 295.
- [Freeman79] A. J. Freeman, J. P. Desclaux. ‘Dirac-Fock studies of some electronic properties of rare earth ions.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **12**, (1979) 11.
- [Frontzek] M. Frontzek. ‘Magnetic properties of rare earth silicides $R_2\text{PdSi}_2$.’ Unveröffentlichte Ergebnisse.
- [Gegenwart97] P. Gegenwart, M. Lohmann, M. Langa, R. Helfrich, C. Langhammer, M. Köppen, C. Geibel, F. Steglich, W. Assmus. ‘Non-Fermi-liquid behavior in CeCu_2Si_2 at the disappearance of the presumably magnetically ordered “A-phase”.’ *Physica B: Condensed Matter*, **230-232**, (1997) 572.
- [Gegenwart98] P. Gegenwart, C. Langhammer, C. Geibel, R. Helfrich, M. Lang, G. Sparn, F. Steglich, R. Horn, L. Donnevert, A. Link, W. Assmus. ‘Breakup of Heavy Fermions on the Brink of ‘Phase A’ in CeCu_2Si_2 .’ *Physical Review Letters*, **81(7)**, (1998) 1501.

- [Ginzburg57] V. L. Ginzburg. ‘Antagonie von Magnetismus und Supraleitung.’ *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **4**, (1957) 153.
- [Hahn06] T. Hahn. *International Tables for Crystallography*, Band A, Kapitel 7. International Union of Crystallography, 3 Auflage (2006).
- [Hannon88] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, D. Gibbs. ‘X-Ray Resonance Exchange Scattering.’ *Physical Review Letters*, **61(10)**, (1988) 1245.
- [Jaccard92] D. Jaccard, K. Behnia, J. Sierro, J. Flouquet. ‘Transport measurements of Heavy Fermion Superconductors.’ *Physica Scripta*, **T45**, (1992) 130.
- [Jansen94] E. Jansen, W. Schäfer, G. Will. ‘R Values in Analysis of Powder Diffraction Data using Rietveld Refinement.’ *Journal of Applied Crystallography*, **27(4)**, (1994) 492.
- [Jeevan] H. S. Jeevan. ‘Specific heat of CeCu₂Si₂, unpublished results.’ Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe.
- [Jensen91] J. Jensen, A. R. Mackintosh. *Rare Earth Magnetism - Structures and Excitations*. The international Series of Monographs on Physics. Clarendon Press, Oxford (1991).
- [Kasuya56] T. Kasuya. ‘Electrical Resistance of Ferromagnetic Metals.’ *Progress of Theoretical Physics*, **16(1)**, (1956) 58.
- [Kittel99] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag München Wien, 12 Auflage (1999).
- [Knebel96] G. Knebel, C. Eggert, D. Engelmann, R. Viana, A. Krimmel, M. Dressel, A. Loidl. ‘Phase diagram of CeCu₂(Si_{1-x}Ge_x)₂.’ *Physical Review B*, **53(17)**, (1996) 11586.

- [Knopp89] G. Knopp, A. Loidl, K. Knorr, L. Pawlak, M. Duczmal, R. Caspary, U. Gottwick, H. Spille, F. Steglich, A. Murani. ‘Magnetic order in a Kondo lattice: a neutron scattering study of CeCu_2Ge_2 .’ *Zeitschrift für Physik B*, **77**, (1989) 95.
- [Kondo64] J. Kondo. ‘Resistance Minimum in Dilute Magnetic Alloys.’ *Progress of Theoretical Physics*, **32(1)**, (1964) 37.
- [Kotliar04] G. Kotliar, D. Vollhardt. ‘Strongly Correlated Materials: Insights From Dynamical Mean-Field Theory.’ *Physics today*, **57(3)**, (2004) 53.
- [Kreyssig] A. Kreyssig. ‘Unveröffentlichte Ergebnisse.’ Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden.
- [Krimmel97a] A. Krimmel, A. Loidl. ‘The phase diagram of $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$.’ *Physica B: Condensed Matter*, **234-236**, (1997) 877.
- [Krimmel97b] A. Krimmel, A. Loidl, H. Schober, P. C. Canfield. ‘Single-crystal neutron diffraction studies on CeCu_2Ge_2 and $\text{CeCu}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{Ge}_2$.’ *Physical Review B*, **55(10)**, (1997) 6416.
- [Leisegang] T. Leisegang. ‘Persönliche Mitteilung.’ Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden.
- [Lovesey84] S. W. Lovesey. *Theory of neutron scattering from condensed matter*. Oxford University Press (1984).
- [Lovesey96] S. W. Lovesey, E. Balcar. ‘A theoretical framework for absorption (dichroism) and the resonance-enhanced scattering of x-rays by magnetic materials: I.’ *Journal of Physics: Condensed Matter*, **8(50)**, (1996) 10983.
- [Löhneysen07] H. v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta, P. Wolfle. ‘Fermi-liquid instabilities at magnetic quantum phase transitions.’ *Reviews of Modern Physics*, **79(3)**, (2007) 1015.

- [Mathur98] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer, G. G. Lonzarich. ‘Magnetically mediated superconductivity in heavy fermion compounds.’ *Nature*, **394(6688)**, (1998) 39.
- [Modler95] R. Modler, M. Lang, C. Geibel, C. Schank, R. Müller-Reisener, P. Hellmann, A. Link, G. Sparn, W. Assmus, , F. Steglich. ‘The effect of composition on the occurrence of a second phase transition in the vicinity of T_c in CeCu_2Si_2 .’ *Physica B: Condensed Matter*, **206-207**, (1995) 586.
- [Nolting86] W. Nolting. *Quantentheorie des Magnetismus*, Band 1. B.G. Teubner Verlag Stuttgart (1986).
- [Oeschler05] N. Oeschler, M. Deppe, E. Lengyel, R. Borth, P. Gegenwart, G. Sparn, C. Geibel, F. Steglich. ‘Magnetic phase diagram of $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ measured with low-temperature thermal expansion.’ *Physical Review B*, **71(9)**, 094409.
- [Pease52] R. S. Pease. ‘An X-Ray Study of Boron Nitride.’ *Acta Crystallographica*, **5(3)**, (1952) 356.
- [Pengra94] D. B. Pengra, N. Thoft, M. Wulff, R. Feidenhans’l, J. Bohr. ‘Resonance-enhanced magnetic X-ray diffraction from a rare-earth alloy.’ *Journal of Physics: Condensed Matter*, **6(12)**, (1994) 2409.
- [Press02] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C : the art of scientific computing*. Cambridge University Press, 2 Auflage (2002).
- [Rosch99] A. Rosch. ‘Ist ein See von Elektronen immer eine Fermi-Flüssigkeit?’ *Physik in unserer Zeit*, **30(3)**, (1999) 118.
- [Ruderman54] M. A. Ruderman, C. Kittel. ‘Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons.’ *Physical Review*, **96(1)**, (1954) 99.

- [Rudolph] S. Rudolph. 'Boron nitride.'
URL <http://www.a-m.de/englisch/lexikon/bornitrid.htm>.
- [Schneidewind] A. Schneidewind. 'Unveröffentlichte Ergebnisse.'
- [Sparn97] G. Sparn, M. Deppe, L. Donnevert, C. Geibel, P. Hellmann, K. Heuser, M. Köppen, M. Lang, F. Laube, A. Link, S. Thomas, F. Steglich. 'Multiple magnetic phase transitions in $\text{Ce}(\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Ge}_2$.' *Physica B: Condensed Matter*, **230-232**, (1997) 317.
- [Sparn06] G. Sparn, O. Stockert, F. M. Grosche, H. Q. Yuan, **E. Faulhaber**, C. Geibel, M. Deppe, H. S. Jeevan, M. Loewenhaupt, G. Zwicknagl, F. Steglich. 'Superconducting phases and quantum criticality in CeCu_2Si_2 .' *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **67**, (2006) 529.
- [Squires78] G. L. Squires. *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering*. Cambridge University Press (1978).
- [Stanley99] H. E. Stanley. 'Scaling, universality, and renormalization: Three pillars of modern critical phenomena.' *Reviews of Modern Physics*, **71(2)**, (1999) 358.
- [Steglich79] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz, H. Schäfer. 'Superconductivity in the Presence of Strong Pauli Paramagnetism: CeCu_2Si_2 .' *Physical Review Letters*, **43(25)**, (1979) 1892.
- [Steglich96a] F. Steglich, B. Buschinger, P. Gegenwart, M. Lohmann, R. Helfrich, C. Langhammer, P. Hellmann, L. Donnevert, S. Thomas, A. Link, C. Geibel, M. Lang, G. Sparn, W. Assmus. 'Quantum critical phenomena in undoped heavy-fermion metals.' *Journal of Physics: Condensed Matter*, **8(48)**, (1996) 9909.

- [Steglich96b] F. Steglich, P. Gegenwart, C. Geibel, R. Helfrich, P. Hellmann, M. Lang, A. Link, R. Modler, G. Sparn, N. Biittgen, A. Loidl. ‘New observations concerning magnetism and superconductivity in heavy-fermion metals.’ *Physica B: Condensed Matter*, **223-224**, (1996) 1.
- [Stockert03] O. Stockert, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, D. Hohlwein, R. Schneider. ‘Neutron Diffraction Study of the Magnetism in Single-Crystalline $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$.’ *Acta Physica Polonica B*, **34(22)**, (2003) 963.
- [Stockert04] O. Stockert, **E. Faulhaber**, G. Zwicknagl, N. Stusser, H. S. Jeevan, M. Deppe, R. Borth, R. Kuchler, M. Loewenhaupt, C. Geibel, F. Steglich. ‘Nature of the A-phase in CeCu_2Si_2 .’ *Physical Review Letters*, **92(13)**, 136401.
- [Stockert05] O. Stockert, M. Deppe, **E. Faulhaber**, H. S. Jeevan, R. Schneider, N. Stüßer, C. Geibel, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Antiferromagnetism in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$: nature of the A phase.’ *Physica B: Condensed Matter*, **359**, (2005) 349.
- [Stockert06a] O. Stockert, D. Andreica, A. Amato, H. S. Jeevan, C. Geibel, F. Steglich. ‘Magnetic order and superconductivity in single-crystalline CeCu_2Si_2 .’ *Physica B: Condensed Matter*, **374-375**, (2006) 167.
- [Stockert06b] O. Stockert, **E. Faulhaber**, K. Schmalzl, W. Schmidt, H. S. Jeevan, M. Deppe, C. Geibel, T. Cichorek, T. Nakanishi, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Peculiarities of the antiferromagnetism in CeCu_2Si_2 .’ *Journal of Physics: Conference Series*, **51**, (2006) 211.
- [Thalmeier04] P. Thalmeier, G. Zwicknagl, O. Stockert, G. Sparn, F. Steglich. ‘Superconductivity in Heavy Fermion compounds.’ In

- A. Narlikar (Herausgeber), *Frontiers in Superconducting Materials*, Kapitel 3. Springer Verlag, Berlin (2004), Seite 109. Cond-mat/0409363.
- [Trovarelli97] O. Trovarelli, M. Weiden, R. Müller-Reisener, M. Gómez-Berisso, P. Gegenwart, M. Deppe, C. Geibel, J. G. Sereni, F. Steglich. ‘Evolution of magnetism and superconductivity in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$.’ *Physical Review B*, **56(2)**, (1997) 678.
- [Vojta01] T. Vojta. ‘Quantenphasenübergänge: Von Ordnung zu Unordnung durch Quantenfluktuationen.’ *Physik in unserer Zeit*, **32(1)**, (2001) 38.
- [Wassilew-Reul97] C. Wassilew-Reul, M. Kunz, M. Hanfland, D. Häusermann, C. Geibel, F. Steglich. ‘The crystal structure of CeCu_2Si_2 under pressure.’ *Physica B: Condensed Matter*, **230-232**, (1997) 310.
- [Wilson75] K. G. Wilson. ‘The renormalization group: Critical phenomena and the Kondo problem.’ *Reviews of Modern Physics*, **47(4)**, (1975) 773.
- [Zwicknagl02] G. Zwicknagl. ‘Quasi-particles in heavy fermion systems.’ *Advances in Physics*, **41(3)**, (2002) 203.
- [Zwicknagl07] G. Zwicknagl. ‘Kondo Effect and Antiferromagnetism in CeCu_2Ge_2 : An Electronic Structure Study.’ *Journal of Low Temperature Physics*, **147(3-4)**, (2007) 123.

Eigene Veröffentlichungen

Teile der vorliegenden Dissertationsschrift wurden bereits auszugsweise in den folgenden Publikationen veröffentlicht:

- [Faulhaber04] **E. Faulhaber**, O. Stockert, M. Rheinstaedter, M. Deppe, C. Geibel, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Magnetic structure of the heavy-fermion alloy $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})_2$.’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **272-276**, (2004) 44. [49](#), [67](#)
- [Faulhaber05] **E. Faulhaber**, O. Stockert, H. S. Jeevan, K. Prokes, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Magnetic field dependence of the magnetic order in A-type CeCu_2Si_2 .’ *Physica B: Condensed Matter*, **359-361**, (2005) 357. [94](#)
- [Faulhaber06] **E. Faulhaber**, O. Stockert, B. Grenier, B. Ouladdiaf, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Magnetic phases in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ near the tetracritical point.’ *Physica B: Condensed Matter*, **378-380**, (2006) 78.
- [Faulhaber07] **E. Faulhaber**, O. Stockert, K. Schmalzl, H. Jeevan, M. Deppe, C. Geibel, F. Steglich, M. Loewenhaupt. ‘Spatial separation of superconductivity and antiferromagnetism in CeCu_2Si_2 .’ *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **310**, (2007) 295.
- [Sparn06] G. Sparn, O. Stockert, F. M. Grosche, H. Q. Yuan, **E. Faulhaber**, C. Geibel, M. Deppe, H. S. Jeevan, M. Loewenhaupt, G. Zwicknagl, F. Steglich. ‘Superconducting phases and quantum criticality in CeCu_2Si_2 .’ *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **67**, (2006) 529. [83](#)

- [Stockert04] O. Stockert, **E. Faulhaber**, G. Zwicknagl, N. Stusser, H. S. Jeevan, M. Deppe, R. Borth, R. Kuchler, M. Loewenhaupt, C. Geibel, F. Steglich. ‘Nature of the A-phase in CeCu_2Si_2 .’ *Physical Review Letters*, **92(13)**, 136401. [6](#), [80](#), [89](#), [91](#), [92](#), [116](#)
- [Stockert05] O. Stockert, M. Deppe, **E. Faulhaber**, H. S. Jeevan, R. Schneider, N. Stüßer, C. Geibel, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Antiferromagnetism in $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$: nature of the A phase.’ *Physica B: Condensed Matter*, **359**, (2005) 349. [40](#), [41](#), [69](#), [70](#), [81](#), [82](#), [83](#)
- [Stockert06b] O. Stockert, **E. Faulhaber**, K. Schmalzl, W. Schmidt, H. S. Jeevan, M. Deppe, C. Geibel, T. Cichorek, T. Nakanishi, M. Loewenhaupt, F. Steglich. ‘Peculiarities of the antiferromagnetism in CeCu_2Si_2 .’ *Journal of Physics: Conference Series*, **51**, (2006) 211. [111](#)

Danksagung

An erster Stelle möchte ich mich bei Prof. Dr. Michael Loewenhaupt bedanken, der es mir ermöglichte, die vielen notwendigen Experimente für diese Arbeit durchzuführen und die Verfolgung eigener Ideen förderte. Er hat es auch verstanden, ein kreatives Arbeitsklima zu schaffen, welches einige der vorgestellten Ergebnisse erst realisierbar machte und stand immer für anregende Diskussionen zur Verfügung. Ich bedanke mich weiterhin bei Prof. Dr. Jochen Wosnitza und bei Prof. Dr. Thomas Brückel für die Erstellung der Gutachten.

Für zahlreiche konstruktive Diskussionen sowie für seine unendliche Geduld und seine Kooperationsbereitschaft danke ich Dr. Oliver Stockert. Insbesondere die langen anstrengenden Nacht-Experimente wären ohne ihn nicht möglich gewesen.

Ich möchte mich auch bei Micha Deppe, H. S. Jeevan sowie Dr. Christoph Geibel für die Proben und die anregenden Diskussionen bedanken. Ohne Sie wären die Experimente nicht möglich gewesen.

Ich möchte mich an dieser Stelle auch bei den Instrument- und Kryostatverantwortlichen bedanken, die die Durchführung der teilweise sehr schwierigen Experimente unterstützt und teilweise erst ermöglicht haben. Hier zu nennen sind: Dr. Karel Prokesch, Dr. Norbert Stüßer, Dr. Michael Meissner, Dr. Peter Smeibidl und Sebastian Gerischer vom Hahn-Meitner-Institut in Berlin, Jean-Louis Ragazzoni, Dr. Beatrice Grenier, Dr. Wolfgang Schmidt, Dr. Michael 'Marek' Koza, Dr. Peter Fouquet, Dr. Bachier, Dr. Gerry McIntyre sowie Dr. Karin Schmalzl vom Institut Laue-Langevin in Grenoble und Dr. Astrid Schneidewind, Dr. Peter Link und Dirk Etzdorf vom FRM2 in München.

Von vielen Mitarbeitern der Fachrichtung Physik an der Technischen Universität Dresden habe ich Unterstützung sowohl zu physikalischen als auch administrativen Fragen erhalten. Dr. Andreas Kreyßig versteht es, eine kreativ entspannte, aber auch effiziente Umgebung zu schaffen und bot moralische Unterstützung, wofür ich sehr dankbar bin. Als kompetenter Ansprechpartner ringt er fast jedem Problem eine Lösung ab. Für diese Hilfe und seine immer wieder aufmunternde Art bin ich ihm dankbar. Dr. Mathias Doerr ist bei administrativen Problemen nie um eine verwegene Antwort verlegen, dies hat meine administrativen Aufgaben deutlich erleichtert. Herzlich bedanken möchte ich mich auch bei Frank Radtke sowie Berthold Köhler für die fachfremden Diskussionen und ihre ermutigenden Worte.

Auch bei meinen Arbeitskollegen möchte ich mich herzlichst bedanken. Allen voran ist hier Matthias Frontzek zu nennen, der meine Launen insbesondere in der Endphase ertrug und immer ein offenes Ohr für meine Wehwehchen hat. Auch bei Elke Wachsmuth, die immer ein freundliches Wort auf den Lippen hat, möchte ich mich an dieser Stelle bedanken.

Für die Korrekturlesungen dieses Manuskriptes möchte ich mich bei Matthias Frontzek, Ulrike Frontzek, Dr. Andreas Kreyßig, Dr. Oliver Stockert sowie meinen Eltern bedanken. Die zahlreichen Hinweise haben die Lesbarkeit enorm verbessert.

Meinen Eltern danke ich ganz herzlich für ihre Unterstützung, den steten Glauben an mich und die anhaltende Ermutigung.

Versicherung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die vorliegende Dissertation wurde am Institut für Festkörperphysik der Technischen Universität Dresden unter der wissenschaftlichen Betreuung von Herrn Professor Dr. Michael Loewenhaupt in Kooperation mit Herrn Dr. Oliver Stockert vom Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden angefertigt.

Ich erkenne hiermit die Promotionsordnung der Technischen Universität Dresden an.

Dresden, den 20. Dezember 2007