
Quantenphasenübergänge in den Schwere-Fermionen-Systemen
 $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{M}_x)_2\text{Si}_2$ und $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$

Von der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Dresden

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte
DISSERTATION

von
Tanja Westerkamp
geb. am 20.08.1978 in Hannover

- 1.Referent: Prof. Dr. F. Steglich
- 2.Referent: Prof. Dr. J. Wosnitza
- 3.Referent: Prof. Dr. P. Gegenwart

eingereicht am: 14.10.2008

mündliche Prüfung (Disputation) am: 06.04.2009

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Messmethoden	5
2.1	Kryotechnik, Thermometrie und hohe Magnetfelder	5
2.2	Elektrischer Widerstand	6
2.2.1	Messgröße	6
2.2.2	Aufbau	7
2.3	Magnetostriktion und thermische Ausdehnung	8
2.3.1	Messgrößen	8
2.3.2	Aufbau	9
2.4	Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität	9
2.4.1	Messgröße und -methode	9
2.4.2	Aufbau	10
2.4.3	Messung des de Haas-van Alphen-Effekts	12
3	Physikalische Grundlagen	15
3.1	Schwere-Fermionen-Systeme	15
3.1.1	Das Kondo-Gitter-Modell	16
3.2	Phasenübergänge	17
3.3	Quantenkritisches Verhalten	19
3.3.1	Das Hertz-Millis-Szenario	20
3.3.2	Das Lokale-Momente-Szenario	22
3.4	Unordnungsphänomene	24
3.4.1	Spingläser	24
3.4.2	Griffiths-Phasen	26
3.4.3	Clusterglas-Phasen	28
4	Yb(Rh_{1-x}M_x)₂Si₂	31
4.1	Das System YbRh ₂ Si ₂ - Einführung	32
4.1.1	Hall-Effekt	35
4.1.2	Einfluss von Druck und Dotierung	37
4.2	Ergebnisse - Stöchiometrisches System	39

INHALTSVERZEICHNIS

4.2.1	Elektrischer Widerstand	39
4.2.2	Magnetostriktion	44
4.2.3	Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität	47
4.3	Analyse und Interpretation der T^* -Linie	55
4.4	Ergebnisse - Dotiertes System	59
4.4.1	Dotierung auf dem Rhodium-Platz	59
4.4.2	Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität	60
4.4.3	Magnetostriktion und thermische Ausdehnung	71
4.5	Diskussion	78
4.6	Zusammenfassung	85
5	CePd_{1-x}Rh_x	89
5.1	Die Legierungsreihe CePd _{1-x} Rh _x - Einführung	90
5.2	Messergebnisse	95
5.2.1	Beschreibung der verwendeten Proben	95
5.2.2	Wechselfeldsuszeptibilität an Polykristallen	97
5.2.3	Wechselfeldsuszeptibilität an Einkristallen	99
5.2.4	Widerstandsmessungen	104
5.3	Analyse und Diskussion	105
5.4	Zusammenfassung	113
6	Zusammenfassung	115
	Literaturverzeichnis	119

Kapitel 1

Einleitung

Technische Anwendungen verdanken ihre Entwicklung häufig grundlegenden physikalischen Entdeckungen. Insbesondere in der Materialentwicklung finden Erkenntnisse aus dem Forschungsgebiet der Festkörperphysik Eingang. Eine große Herausforderung in diesem Bereich stellt die Erforschung stark korrelierter Elektronensysteme dar. Eine erfolgreiche theoretische Beschreibung solcher Systeme liefert die semi-phänomenologische Landau-Theorie der Fermi-Flüssigkeiten [1]. Sie ermöglicht es, die im Festkörper wechselwirkenden Elektronen bei tiefen Temperaturen als Quasiteilchen in direkter Analogie zum freien Elektronengas zu beschreiben [2]. Auf diese Weise können genaue Voraussagen zu den Tieftemperatureigenschaften von Metallen getroffen werden. Im Rahmen dieser Theorie und ihrer Erweiterungen ließen sich bisher beispielsweise Suprafluidität, konventionelle Supraleitung sowie das Schwere-Fermionen-Verhalten von $4f$ - und $5f$ -Elektronensystemen besser verstehen. In den letzten zwei Jahrzehnten wurden jedoch immer wieder Verbindungen entdeckt, die sich bei tiefen Temperaturen nicht vollständig im Bild der Fermi-Flüssigkeiten beschreiben lassen [3,4]. Unter ihnen finden sich zahlreiche Schwere-Fermionen-Systeme, wie beispielsweise CeCu_2Si_2 [5], aber auch Hochtemperatursupraleiter.

Häufige Ursache solchen Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhaltens sind Quantenphasenübergänge. Dies sind Phasenübergänge, die nicht auf Grund thermischer Fluktuationen auftreten, sondern am absoluten Nullpunkt der Temperatur T als Funktion eines anderen Kontrollparameters wie Druck, Magnetfeld oder Dotierung entstehen. Um Quantenphasenübergänge zu beschreiben, wurde die Landau-Theorie der Phasenübergänge dahingehend erweitert, dass Quantenfluktuationen berücksichtigt werden [6, 7]. Diese Erweiterung der Theorie wird als Hertz-Millis-Modell bezeichnet. In Schwere-Fermionen-Systemen ist für die Ausbildung eines Quantenphasenübergangs außerdem das Wechselspiel der verschiedenen Korrelationsmechanismen der f -Elektronen von Bedeutung [8].

Einige der Systeme, die Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten zeigen, können sehr gut mit der Hertz-Millis-Theorie verstanden werden. Hier seien als Beispiele CeNi_2Ge_2 [9]

und CePd_2Si_2 [10] genannt. In beiden Verbindungen tritt itineranter Antiferromagnetismus unter Ausbildung von Spindichtewellen auf. In diesen Systemen stellt der Quantenphasenübergang einen kritischen Punkt am Ende der magnetischen Phasengrenzlinie zweiter Ordnung dar und wird daher als quantenkritischer Punkt bezeichnet. Er zeichnet sich durch seinen Einfluss in einem mitunter großen Temperaturbereich aus. In diesem als quantenkritisch bezeichneten Bereich wird Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten beobachtet. Der quantenkritische Punkt wird außerdem als mögliche Ursache für unkonventionelle Supraleitung in Betracht gezogen. Diese tritt beispielsweise in CePd_2Si_2 und in Hochtemperatursupraleitern in einem Bereich auf, der den quantenkritischen Punkt verdeckt.

Unter den Systemen, die einen quantenkritischen Punkt aufweisen, finden sich jedoch auch solche, die die Aussagen der Standardtheorie nicht erfüllen. Hier sind vor allem die antiferromagnetischen Systeme $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ und YbRh_2Si_2 zu nennen. Sie unterscheiden sich von den itineranten Systemen dadurch, dass der Magnetismus durch lokale Momente erzeugt wird. Die magnetische Ordnung kann durch Änderung der Dotierung bzw. des Magnetfeldes kontinuierlich zu $T = 0$ unterdrückt werden [11]. An dieser Stelle befindet sich ebenfalls ein quantenkritischer Punkt im Phasendiagramm. Das Verhalten im quantenkritischen Bereich bei endlicher Temperatur weicht jedoch von den Vorhersagen ab.

Das Phasendiagramm von YbRh_2Si_2 weist in diesem Bereich eine zusätzliche Crossover-Linie auf, die in Messungen des Hall-Effekts beobachtet wurde und als deren Ursache ein Lokalisierungsprozess der f -Elektronen am quantenkritischen Punkt vermutet wird [12]. Daraus ergab sich die Motivation, diese Verbindung im Rahmen dieser Arbeit intensiv daraufhin zu untersuchen, um einen Teil zum Verständnis des komplexen Problems quantenkritischen Verhaltens beizutragen. Ziel war es, die Existenz der Crossover-Linie in anderen Messgrößen zu untersuchen und dadurch weitere Anhaltspunkte zum Mechanismus des vermuteten Lokalisierungseffekts zu erhalten.

Neben der Untersuchung antiferromagnetischer Systeme ist das Verständnis quantenkritischen Verhaltens in Ferromagneten von großem Interesse, da theoretische Betrachtungen unterschiedliches Verhalten vorhersagen. Bisher gibt es jedoch kein Beispiel eines auf Cer basierenden ferromagnetischen Kondo-Gitter-Systems, das einen quantenkritischen Punkt aufweist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ untersucht. Diese Legierungsreihe entwickelt sich durch Rh-Dotierung von einem ferromagnetischen Kondo-Gitter-System zu einem paramagnetischen zwischenvalenten System. Am Rande der ferromagnetischen Instabilität kommt es vermutlich zur Ausbildung eines kurzreichweitig geordneten Bereichs, wodurch die Untersuchung dieses Systems motiviert wurde. Diesem System kommt auf Grund der auftretenden Konkurrenz zwischen Kondo-Wechselwirkung, magnetischen Korrelationen und Unordnung ein prototypischer Charakter zu.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert. In Kapitel 2 werden die untersuchten Messgrößen

beschrieben, sowie die zu deren Messung bei tiefen Temperaturen zwischen 20 mK und 4.5 K erforderlichen Apparaturen. Insbesondere wird der für Messungen des de Haas-van Alphen-Effekts konstruierte technische Aufbau vorgestellt.

Kapitel 3 beinhaltet eine kurze Einführung in die für die untersuchten Systeme relevanten physikalischen Grundlagen. Dazu gehören Erläuterungen zum Schwere-Fermionen-Verhalten, zum Kondo-Gitter-Modell, zu Quantenphasenübergängen sowie zu Unordnungseffekten wie Spinglasverhalten und Griffiths-Phasen.

In Kapitel 4 wird zunächst die Schwere-Fermionen-Verbindung YbRh_2Si_2 vorgestellt, die sich in unmittelbarer Nähe zu einem quantenkritischen Punkt befindet. Dazu werden bisherige Resultate zusammengefasst. Insbesondere wird auf den Hall-Effekt in diesem System eingegangen, der auf Grund seines ungewöhnlichen Verhaltens, Teile der Messungen dieser Arbeit motiviert hat. Auch der Einfluss von Dotierung der Proben im Vergleich zu Experimenten unter hydrostatischem Druck wird betrachtet. Anschließend werden erst die Ergebnisse der Messungen an undotiertem YbRh_2Si_2 gezeigt. Dies sind Tieftemperaturmessungen des elektrischen Widerstandes, die Aufschluss über die Probenqualität der verwendeten Einkristalle geben. Weiterhin werden Messungen des Magnetwiderstandes, der Magnetostriktion und der Wechselfeldsuszeptibilität vorgestellt. Deren Ergebnisse deuten zusammen mit dem Hall-Effekt und Magnetisierungsdaten auf eine zusätzliche Energieskala im Magnetfeld-Temperatur-Phasendiagramm hin. Außerdem werden Messungen des de Haas-van Alphen-Effekts präsentiert, in denen erstmals Oszillationen mit einer Frequenz oberhalb von 10 kT beobachtet wurden. Die Resultate der Messungen an undotiertem YbRh_2Si_2 werden analysiert. Anschließend widmet sich der zweite Teil dieses Kapitels den Messergebnissen der Wechselfeldsuszeptibilität, der Magnetostriktion und der thermischen Ausdehnung an Proben, die auf den Rhodium-Plätzen leicht mit Iridium oder Cobalt dotiert wurden. Durch die entstehende Volumenänderung zeigen sich interessante Effekte sowohl bezüglich des Magnetismus als auch bezüglich der in YbRh_2Si_2 entdeckten neuen Energieskala. Die Ergebnisse werden im Kontext zum undotierten System interpretiert und zusammengefasst.

Nach einer Einführung der ferromagnetischen Legierungsreihe $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ befasst sich Kapitel 5 mit diesem, vom Kondo-Effekt beeinflussten System am Rande der Instabilität seiner ferromagnetischen Phase. Die Untersuchung ist motiviert durch die Suche nach einem ferromagnetischen quantenkritischen Punkt in Schwere-Fermionen-Systemen und die Beobachtung ungewöhnlichen Verhaltens der thermischen Ausdehnung in diesem Bereich des Phasendiagramms, die kurzreichweitige Ordnung vermuten lassen. Hier werden Messergebnisse der Wechselfeldsuszeptibilität an poly- und einkristallinen Proben präsentiert. Das beobachtete, von der Frequenz des magnetischen Wechselfeldes abhängige Verhalten wird im Rahmen der Theorie zu Griffiths-Phasen und Clusterbildungsprozessen diskutiert, wobei weitere Messergebnisse zu Hilfe genommen werden.

Kapitel 6 enthält die Zusammenfassung dieser Arbeit sowie einen Ausblick.

Kapitel 2

Messmethoden

Für die Untersuchung der Eigenschaften stark korrelierter Elektronensysteme ist es unerlässlich, Experimente bei möglichst tiefen Temperaturen durchzuführen. Denn nur so ist es möglich, thermische Einflüsse wie Gitterschwingungen zu unterdrücken und Erkenntnisse über die Grundzustandseigenschaften der Systeme zu gewinnen. Insbesondere für die Beobachtung von Quanteneffekten ist es wichtig, thermische Anregungen zu unterdrücken.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Tieftemperaturexperimente im Bereich von 20 mK bis 4.5 K an den intermetallischen Verbindungen YbRh_2Si_2 und $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ durchgeführt. In diesem Kapitel werden die untersuchten Messgrößen sowie die zu deren Bestimmung verwendeten Messmethoden und Aufbauten beschrieben.

2.1 Kryotechnik, Thermometrie und hohe Magnetfelder

Als effektive Methode zur Kühlung im Millikelvin-Bereich hat sich die kontinuierliche Kühlung durch einen Kreislauf eines Helium-Gemisches aus den beiden Isotopen ^3He und ^4He erwiesen. Zur ausführlichen Einleitung in die Kryotechnik sei hier auf Ref. [13] verwiesen. Alle hier vorgestellten Messungen wurden in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischungskryostaten Kelvinox400 der Firma Oxford Instruments durchgeführt. Die Mischkammer erreicht ohne Last eine Temperatur von 6 mK. Die Kühlleistung beträgt $400 \mu\text{W}$ bei einer Temperatur von 100 mK. Die Messungen erfolgen im Temperaturbereich von 20 mK bis zu 4.5 K. Um Messungen oberhalb von 0.9 K durchzuführen, wird der Mischungskryostat als Verdampfungskryostat betrieben. Es stehen mehrere Probenhalter für die verschiedenen Messgrößen zum Anbau an die Mischkammer des Kryostaten zur Verfügung.

Ein wichtige Komponente bei Tieftemperaturexperimenten ist die genaue Bestimmung der Temperatur. Im hier verwendeten Kryostat wurden drei kalibrierte Ru-

thенийoxid- und Germanium-Widerstandsthermometer benutzt, die in verschiedenen Temperaturbereichen sensitiv sind. Sie befinden sich in einer magnetfeldkompensierten Zone nahe der Mischkammer. Zusätzlich befinden sich, zur Kontrolle der guten thermischen Ankopplung der Probe an die Mischkammer, im Magnetfeld kalibrierte Rutheniumoxid-Thermometer direkt auf den Probenhaltern.

Zur Erzeugung eines Magnetfeldes umfasst der Aufbau einen supraleitenden 20 Tesla-Magneten, der zwischen 18 und 20 T betrieben werden kann, wenn das ^4He -Bad durch Dampfdruckerniedrigung mittels Abpumpen des Gases über der Oberfläche auf 2.2 K gekühlt wird. Zusätzlich verfügt die Anlage über eine Modulationsspule, die zur Erzeugung kleiner magnetischer Wechselfelder mit einer Amplitude von bis zu 0.02 T betrieben werden kann. Die Modulationsspule wird direkt in die Bohrung des großen Magneten eingesetzt, so dass sie sich ebenfalls im ^4He -Bad befindet.

2.2 Elektrischer Widerstand

2.2.1 Messgröße

Der temperaturabhängige spezifische elektrische Widerstand $\rho(T)$ eines metallischen Festkörpers wird durch verschiedene Streuprozesse der Elektronen beeinflusst, deren einzelne Beiträge sich addieren.

Bei hohen Temperaturen wird ρ von der Elektron-Phonon-Streuung ρ_{e-ph} dominiert [14,15]. Dieser Beitrag ist bei tiefen Temperaturen vernachlässigbar, da $\rho_{e-ph} \sim T^5$ gilt. Dort wird das Verhalten im Wesentlichen von der Elektron-Elektron-Streuung ρ_{e-e} beeinflusst. Gemäß Landaus Theorie der Fermi-Flüssigkeiten [1] ist hier eine T^2 -Abhängigkeit zu erwarten. In diesem Modell korrespondieren die thermischen Anregungen fermionischer Quasiteilchen eins zu eins zu denen eines freien Elektronengases (siehe Abschnitt 3.1). Beispielsweise in der Nähe von Quantenphasenübergängen kann es jedoch zu Abweichungen vom T^2 -Verhalten kommen. Dieses sogenannte Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten (NFF-Verhalten) kann anhand des Widerstands $\rho(T)$ analysiert werden.

Im Grenzfall $T \rightarrow 0$ dominiert die Streuung der Ladungsträger an Gitterfehlern und Störstellen. Dieser Beitrag ist temperaturunabhängig, charakterisiert die Qualität einer Probe und wird als Restwiderstand ρ_0 bezeichnet. Bei tiefen Temperaturen gilt also

$$\rho = \rho_0 + A \cdot T^\varepsilon, \quad (2.1)$$

wobei der Koeffizient A eine Konstante ist und der Exponent ε im Regime der Landau-Fermi-Flüssigkeit (LFF) den Wert 2 annimmt, während er im NFF-Regime davon abweicht.

Des Weiteren eignet sich ρ zur Bestimmung von Phasenübergängen, da sowohl bei Temperaturänderungen als auch bei Änderung eines äußeren magnetischen Feldes, also der Messung des isothermen Magnetwiderstandes $\rho(H)$, Anomalien an den Phasengrenzen auftreten können.

2.2.2 Aufbau

Die Widerstandsmessungen wurden mit der Vier-Punkt-Methode vorgenommen. Dazu wurden $25\ \mu\text{m}$ dicke Golddrähte mit Silberleitpaste¹ möglichst weit außen auf die Probe geklebt und fünf Minuten bei 400°C ausgehärtet. Die Kontaktwiderstände erreichten auf diese Weise bei Raumtemperatur Werte unterhalb von $1\ \Omega$.

Die Messungen an YbRh_2Si_2 erfolgten mit dem in Abb. 2.1 skizzierten Aufbau. Mittels eines Lock-In-Verstärkers wird eine Wechselspannung mit $113.77\ \text{Hz}$ erzeugt. Ein Widerstand im Kreislauf zwischen Spannungsquelle und Probe wirkt als Strombegrenzer und sorgt für einen konstanten Stromfluss durch die Probe.

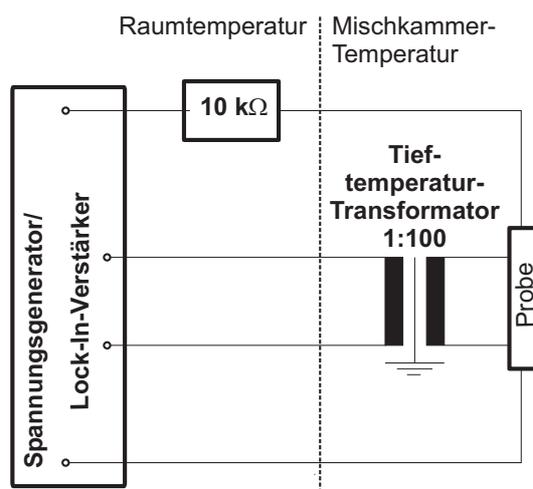


Abb. 2.1: Schematisches Schaltbild für die Widerstandsmessung nach der 4-Punkt-Methode

Die Stromkontakte sind an den Außenkanten der Probe aufgebracht. Über die innen liegenden Kontakte wird die Spannung, die über der Probe abfällt, abgegriffen. Der Spannungsabfall wird mit Hilfe eines Tieftemperatur-Transformators² um den Faktor 100 verstärkt und mit dem Lock-In-Verstärker ausgelesen. Der Transformator ist an der Mischkammer befestigt. Der Messstrom muss je nach Temperaturbereich so gewählt werden, dass Aufheizungen der Kontakte und damit auch der Probe bei tiefsten Tem-

¹Nr. 6838 der Firma DuPont de Nemours (Dtl.) GmbH

²Modell LTT-m der Firma Cambridge Magnetic Refrigeration Ltd.

peraturen vermieden werden. Bei den Messungen an YbRh_2Si_2 wurde mit einem Messstrom von $I = 50 \mu\text{A}$ gearbeitet.

Für die Messung der $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ -Proben wurde dagegen kein Tieftemperatur-Transformator verwendet und die Spannung mit einer Widerstandsmessbrücke ausgelesen³.

2.3 Magnetostriktion und thermische Ausdehnung

2.3.1 Messgrößen

Die Magnetostriktion beschreibt allgemein die Volumenänderung ΔV eines Materials unter dem Einfluss eines äußeren Magnetfeldes. Sie ergibt sich aus der partiellen Ableitung der freien Enthalpie G nach Druck p und Magnetfeld H :

$$\left(\frac{\partial^2 G}{\partial p \partial H}\right)_T = \left(\frac{\partial V}{\partial H}\right)_{T,p} . \quad (2.2)$$

Damit ergibt sich der Magnetostruktionskoeffizient

$$\lambda_V = \frac{1}{\mu_0 V} \left(\frac{\partial V}{\partial H}\right)_{T,p} , \quad (2.3)$$

der per Definition auf das ursprüngliche Volumen V der Probe normiert ist und in der Einheit $[\text{T}^{-1}]$ angegeben wird.

Ist die Messung auf die Längenänderung in einer Richtung beschränkt, ergibt sich der lineare Magnetostruktionskoeffizient

$$\lambda_{lin} = \frac{1}{\mu_0 L} \left(\frac{dL}{dH}\right)_{T,p} . \quad (2.4)$$

Die thermische Ausdehnung beschreibt die Volumen- bzw. Längenänderung der Probe als Funktion der Temperatur. Sie ergibt sich aus der Ableitung von G nach p und T . Somit ergibt sich der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient

$$\alpha_{lin} = \frac{1}{L} \left(\frac{dL}{dT}\right)_{H,p} \quad (2.5)$$

entlang einer kristallografischen Richtung in Analogie zum Magnetostruktionskoeffizienten. Unter der Voraussetzung, dass keine Scherungen auftreten, kann der Volumenausdehnungskoeffizient α_V als Linearkombination der unabhängigen Richtungen der Kristallsymmetrie der Probe bestimmt werden.

³Modell LR700 der Firma Linear Research Inc.

2.3.2 Aufbau

Die Längenänderungen der untersuchten Proben wurden mit Hilfe eines kapazitiven Dilatometers gemessen. Dazu wurde die jeweilige Probe in der Messzelle zwischen zwei Gehäuseteilen, die nur durch zwei Blattfedern miteinander verbunden sind, gespannt. Die untere Kondensatorplatte befindet sich in dem Gehäuseteil, der mit dem Probenstab an der Mischkammer starr verbunden ist. Die obere Kondensatorplatte ist an der Unterseite des durch die Blattfedern gehaltenen Teils montiert. Ändert die Probe ihre Länge, wird dies direkt auf den Plattenabstand des Kondensators übertragen und kann mit einer hochauflösenden Kapazitätsmessbrücke⁴ detektiert werden. Mit dieser Methode ist die Messung der Längenänderung auf eine Richtung beschränkt. Es wird also der lineare Magnetostruktions- bzw. Ausdehnungskoeffizient bestimmt. Zusätzlich ist die Messung durch den Aufbau der verwendeten Messzelle auf Längenänderungen nur parallel zur Magnetfeldrichtung möglich.

Dieses Prinzip geht auf Brändli und Griesson [16] zurück und wurde kontinuierlich weiterentwickelt [17–20]. Die verwendete Messzelle wurde von F. Kromer für Messungen der Magnetostruktion in Feldern bis zu 20 T entwickelt. Details zum Aufbau der Zelle und zur Berechnung der Längenänderung aus der Kapazität finden sich in Ref. [21].

Die ideale Probenlänge liegt zwischen 1 und 3 mm. Kürzere Proben verschlechtern die Auflösung des Messsignals, während in längeren Proben, insbesondere bei der Messung der thermischen Ausdehnung, ein nicht zu vernachlässigender Temperaturgradient innerhalb der Probe auftreten könnte.

2.4 Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität

2.4.1 Messgröße und -methode

Die magnetische Suszeptibilität χ stellt, wie auch die Magnetostruktion und die thermische Ausdehnung, eine thermodynamische Messgröße dar. Sie ergibt sich aus der zweiten partiellen Ableitung der freien Enthalpie G nach der Magnetfeldstärke H . Es gilt

$$\chi = \left(-\frac{\partial^2 G}{\partial H^2} \right)_{T,p} = \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_{T,p} . \quad (2.6)$$

Diese Größe ist über die Messung der Magnetisierung $M(H)$ als Funktion des Feldes experimentell zugänglich. Allerdings muss dann zur Bestimmung von χ die Steigung durch Ableiten des Datensatzes ermittelt werden. Hysterese-Effekte sind somit schwierig darzustellen. Die Messung im konstanten Feld als Funktion der Temperatur ist nicht direkt möglich.

⁴Modell AH2500A der Firma Andeen-Hagerling, Inc.

Einen direkten Zugang zur Messung der Suszeptibilität liefert die Gegeninduktionsmethode, mit der die Wechselfeldsuszeptibilität χ_{AC} gemessen wird. Mit dieser Methode ist es möglich, durch ein sehr kleines, äußeres, magnetisches Wechselfeld $b(t) = b_{AC}e^{i\omega t}$ die Magnetisierung einer Probe mit einer Frequenz $\nu = 2\pi\omega$ periodisch zu ändern. Somit kann direkt die Feldableitung der Magnetisierung als Funktion der Temperatur gemessen werden, auch ohne statisches, äußeres Magnetfeld. Es wird also die Anfangssteigung von $M(H)$ gemessen, die nur im Falle einer linearen Magnetisierung dem Wert von M/H entspricht. Durch das angelegte Magnetfeld $b(t)$ wird in einer Aufnehmerspule, in der sich die Probe befindet, eine Spannung

$$U_{ind}(t) = -N \frac{d\Phi}{dt} = -NA \frac{dB}{dt} \quad (2.7)$$

induziert. N entspricht dabei der Windungszahl dieser Spule. Φ bezeichnet den magnetischen Fluss, A den Probenquerschnitt und B die magnetische Induktion. Die zeitlich periodische Anregung spiegelt sich in der zeitlichen Änderung des magnetischen Flusses wider. Die daraus resultierende Magnetisierung $M(t)$ lässt sich in eine Fourier-Reihe entwickeln. Die magnetische Wechselfeldsuszeptibilität wird über deren erstes Glied definiert, so dass gilt:

$$U_{ind} = U' + iU'' = \frac{2\pi\nu}{\sqrt{2}} N A b_{AC} (\chi' + i\chi''), \quad (2.8)$$

wobei U' entsprechend der Lenzschen Regel um 90° phasenverschoben zur Anregung ist. U'' stellt den Hysterese- bzw. Verlustanteil dar und ist um 180° phasenverschoben.

2.4.2 Aufbau

In Abb. 2.2 ist der Aufbau für die Suszeptibilitätsmessungen schematisch dargestellt. Mit der im Heliumbad befindlichen Modulationsspule wird ein magnetisches Wechsel­feld erzeugt. Dazu wird mit einem Spannungsgenerator eine Sinusspannung erzeugt, die über einem in Reihe geschalteten $1\text{ k}\Omega$ -Widerstand abfällt. Somit ist ein Wechselstrom mit konstanter Amplitude gewährleistet. Die Magnetfeld-Amplitude wurde hier in der Regel zwischen 5 und $11\ \mu\text{T}$ gewählt, die Frequenz zwischen 10 und etwa 1000 Hz . Im Feldzentrum der Modulationsspule befinden sich die Aufnehmerspulen samt Probe. Die in den Aufnehmerspulen induzierte Spannung wird mit einem Tieftemperatur-Transformator vervielfacht, hier mit Faktoren von 30 oder 100 . Das Signal wird mit Hilfe des Lock-In-Verstärker phasensensitiv ausgelesen.

Die Messungen wurden mit zwei verschiedenen Probenhaltern durchgeführt, die aber dasselbe Messprinzip verwenden. Die Probe befindet sich im Zentrum einer kleinen Spule, die zu einem astatischen Spulenpaar gehört. Das heißt, das Spulenpaar ist gegensinnig mit gleicher Windungszahl gewickelt und in Reihe geschaltet. So wird nur das Probensignal gemessen, weil sich die Beiträge der Aufnehmerspulen im Idealfall

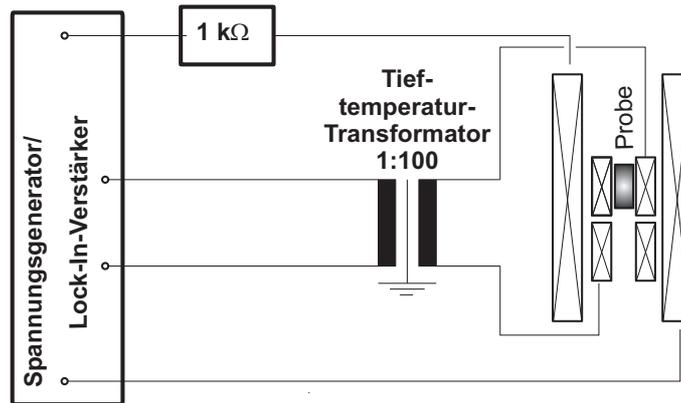


Abb. 2.2: Schematischer Aufbau für die Suszeptibilitätsmessungen

kompensieren. Einer der verwendeten Probenhalter wurde von F. Weickert gefertigt und Details dazu sind in Ref. [22] beschrieben. Der Innendurchmesser der Spulen beträgt 1.8 mm. Der zweite verwendete Probenhalter bietet zusätzlich die Möglichkeit, die Probe zwischen den Messungen zu rotieren. Auf Grund des Rotators eignet sich dieser Probenhalter auch für die Messung des de Haas-van Alphen (dHvA)-Effekts. Dazu wurde der von J. Custers entworfene Probenhalter [23] modifiziert, siehe Abb. 2.3. Das Spulensystem wurde dabei so gestaltet, dass auch hier die Probe in einer der Aufnehmerspulen sitzt, um eine hohe Auflösung zu erzielen. Die Achse der beiden Spulen steht senkrecht zu einer zwischen ihnen verlaufenden Drehachse, an der ein Zahnrad befestigt ist. Das Zahnrad wird von einer Gewindestange des Rotators angetrieben. Die elektrischen Zuleitungen zu den Aufnehmerspulen, sowie ein Silberdraht zur thermischen Ankopplung der Probe an die Mischkammer, sind von den Außenseiten des Probenhalters durch einen Hohlraum in der Drehachse zu den Spulen und zur Probe geführt. Somit ist eine Drehung um 180° und mehr problemlos möglich. Der Innendurchmesser der Spulen beträgt nur 1 mm, so dass auch kleinere Proben mit großem Füllfaktor und somit guter Auflösung gemessen werden können. Die Spulen wurden mit je 1000 Windungen aus Kupferdraht mit einem Durchmesser von $20 \mu\text{m}$ auf Spulenträger aus STYCAST mit einer Wandstärke von 0.3 mm gewickelt.

Da der Spulenabgleich bei beiden Probenhaltern nicht perfekt ist, muss das Leersignal von den Messungen abgezogen werden. Die Temperaturabhängigkeit des Hintergrundes ist vernachlässigbar. Es wurde jedoch eine Magnetfeldabhängigkeit beobachtet, die bei Messungen als Funktion eines statischen, äußeren Magnetfeldes zu berücksichtigen ist. Um die zur induzierten Spannung proportionale Suszeptibilität zu erhalten, werden die Messdaten mit einem Faktor auf Messwerte aus einem SQUID-Magnetometer⁵ bei 4 K skaliert.

⁵Modell MPMS der Firma Quantum Design

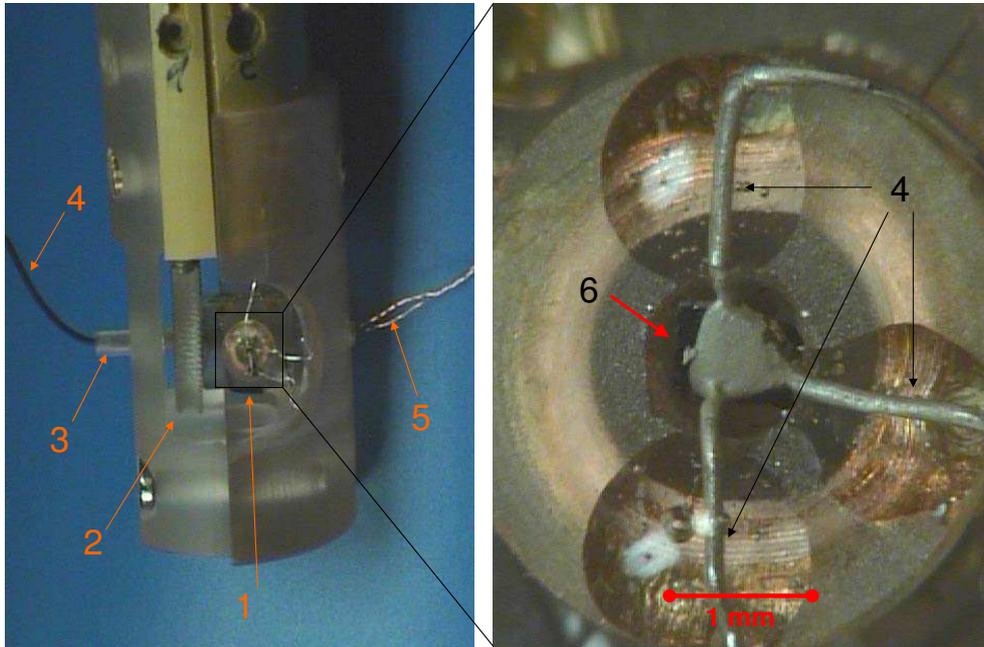


Abb. 2.3: Neuer Aufbau des rotierbaren Spulensystems zur Messung des dHvA-Effekts. Links: Probenhalter mit Spulensystem (1), Zahnrad (2), rohrförmige Drehachse mit Drahtdurchführung (3), Silberdrähten zur thermischen Ankopplung (4) und den elektrischen Kontakten (5) der Spulen. Rechts: Vergrößerung der Spule mit Probe (6). Die thermischen Kontakte (4) sind mit Epoxy-Kleber am Spulenträger befestigt. Die zweite Spule befindet sich auf der anderen Seite der Drehachse.

2.4.3 Messung des de Haas-van Alphen-Effekts

Die Messung des dHvA-Effekts ist eine effektive Methode zur Bestimmung der Topologie von Fermiflächen und zur Ermittlung effektiver Elektronenmassen. Bei tiefen Temperaturen ist es möglich, in sehr reinen Proben Oszillationen der magnetischen Suszeptibilität als Funktion eines hohen, äußeren Magnetfeldes zu messen. Diese Schwingungen sind als Funktion der inversen Feldstärke $1/H$ periodisch.

Bereits 1930 sagte L. D. Landau diesen Effekt im Rahmen der Theorie freier Elektronen voraus [24]. Er ist als Konsequenz der Quantisierung geschlossener Elektronenbahnen im Magnetfeld zu interpretieren und stellt somit die makroskopische Beobachtung eines reinen Quanteneffekts dar. Etwa 30 Jahre später fand L. Onsager heraus, dass eine Schwingungsperiode $\Delta(1/H)$ proportional zu $1/A_e$ ist, wobei A_e ein extremer Querschnitt der Fermifläche ist [25].

Eine ausführliche Beschreibung zur Theorie des dHvA-Effekts sowie zur experimen-

tellen Durchführung und Auswertung der Messungen finden sich in Ref. [26]. An dieser Stelle werden nur die messtechnischen Details des verwendeten Aufbaus erläutert. Die Messungen erfolgten mit der Feldmodulationsmethode. Das Messprinzip entspricht also dem für die Wechselfeldsuszeptibilität. Der vorhandene Probenhalter zur Messung des dHvA-Effekts wurde modifiziert, wie in Abschnitt 2.4.2 beschrieben und in Abb. 2.3 dargestellt. Des Weiteren wurden verschiedene Aufbauten der Messelektronik getestet. Letztlich bewährt hat sich ein Aufbau mit einem Strom-/Spannungsgenerator⁶ zur Erzeugung von Wechselströmen. Bei einer Proben temperatur von 50 mK können maximal 0.5 A(rms) angelegt werden. Dies entspricht bei der verwendeten Modulationsspule einer Magnetfeldamplitude von $B = 5.4$ mT. Höhere Wechselfelder führen zur Aufheizung der Probe durch die auftretenden Wirbelströme. Deshalb wird auch die Frequenz des Wechselfeldes möglichst klein gewählt. Zusätzlich wurden zwei $4\ \Omega$ -Widerstände mit Kühlrippen in Reihe geschaltet. Auf diese Weise konnte ein rauscharmes Wechselfeld mit konstanter Amplitude durch die Modulationsspule erzeugt werden. Das in den Aufnehmerspulen induzierte Signal wird mit einem Lock-In-Verstärker ausgelesen. Auf Grund der Magnetfeldabhängigkeit der Suszeptibilität, ist es für die Analyse günstiger die zweite Harmonische des Messsignals zu detektieren, weil dort die Amplitude des Probensignals bereits unterdrückt ist. Somit sind die dHvA-Amplituden direkt zu beobachten. Dazu wird das Signal mit einem Faktor 30 bei Mischkammertemperatur transformiert. Dieser Faktor wird hier auf Grund der niedrigen Wechselfeldfrequenz gewählt, um den Arbeitsbereich des Transformators ausreichend zu nutzen. Auf weitere Verstärker konnte verzichtet werden. Die Außenleiter der zum Anschluss an den Lock-In-Verstärker verwendeten Koaxialkabel wurden zur Abschirmung genutzt.

Mit diesem Aufbau ist es gelungen dHvA-Oszillationen in YbRh_2Si_2 zu messen. Die Ergebnisse sind in Abschnitt 4.2.3 dargestellt.

⁶Modell 6811B der Firma Agilent Technologies GmbH

Kapitel 3

Physikalische Grundlagen

3.1 Schwere-Fermionen-Systeme

Metalle mit stark korrelierten Elektronen sind innerhalb der Physik kondensierter Materie von großem Interesse. Neben den Hochtemperatur-Supraleitern sind darunter besonders die Schwere-Fermionen-Systeme ein wichtiges Beispiel. Für eine ausführliche theoretische Beschreibung dieser Systeme sei hier auf Ref. [27] verwiesen. Einen experimentellen Überblick geben die Ref. [28–30].

Das Verhalten von Schwere-Fermionen-Systemen wird durch die starken Korrelationen der magnetischen Momente der ungepaarten Spins der f -Elektronen bestimmt. Experimentell zugängliche Messgrößen sind dadurch bei tiefen Temperaturen stark erhöht, so dass sich diese Systeme besonders gut zur Untersuchung von Grundzustandseigenschaften eignen. Schwere-Fermionen-Verhalten wurde erstmals bei tiefen Temperaturen in der Verbindung CeAl_3 beobachtet [31]. Durch die Entdeckung des ersten Schwere-Fermionen-Supraleiters CeCu_2Si_2 [5] wurde die Physik schwerer Fermionen zu einem ausgedehnten Forschungsgebiet. Die Eigenschaften dieser Verbindungen werden von den starken lokalen Korrelationen ihrer teilweise gefüllten f -Schalen bestimmt [2] und lassen sich im Bild der Landau-Theorie für Fermi-Flüssigkeiten verstehen.

Die Landau-Theorie der Fermi-Flüssigkeiten entspricht einer semi-phänomenologischen Beschreibung niederenergetischer Anregungen in einem System wechselwirkender Fermionen. Die Theorie unterliegt der Annahme, dass die Struktur des Anregungsspektrums ähnlich dem unabhängiger Elektronen ist. Die Landau-Theorie geht davon aus, dass eine Eins-zu-eins-Korrespondenz zwischen den Zuständen eines komplexen, wechselwirkenden Systems und denen eines Gases unabhängiger Fermionen existiert. Das Vielteilchenproblem der wechselwirkenden Elektronen kann durch einen effektiven Hamilton-Operator des Einteilchenproblems beschrieben werden. In das effektive Potenzial gehen das Feld der Atomkerne sowie die Modifikation durch die anderen Elektronen ein, so dass die Eigenschaften des Vielteilchensystems wiedergegeben werden. Im Bild der Landau-Fermi-Flüssigkeit (LFF) werden die freien Elektronen durch

sogenannte Quasiteilchen ersetzt. Im einfachsten Sinne lassen sie sich als nackte Elektronen mit einer sie umgebenden Wechselwirkungs-, „Wolke“ verstehen [32]. Sie werden ebenfalls durch Impuls und Spin charakterisiert, gehorchen der Fermi-Verteilung und können über die effektive Masse m^* parametrisiert werden.

In Schwere-Fermionen-Systemen ist diese effektive Masse m^* um zwei bis drei Größenordnungen gegenüber der freien Elektronenmasse erhöht. Sie kann experimentell über den Sommerfeld-Koeffizienten γ der spezifischen Wärme bestimmt werden, der in diesen Systemen extrem große Werte von etwa $1 \text{ J}/(\text{mol K}^2)$ annehmen kann. Auch dHvA-Messungen sind konsistent dazu. Schwere-Fermionen-Systeme weisen eine charakteristische Temperaturskala T_0 auf, die in der Regel zwischen 10 und 100 K liegt. Für Temperaturen deutlich unterhalb von T_0 gilt die Fermi-Flüssigkeitsbeschreibung nach Landau. Zu beobachten sind dann beispielsweise eine quadratische Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes (siehe Gl. (2.1)), ein linearer Temperaturverlauf der spezifischen Wärme ($C \sim \gamma T$) sowie eine temperaturunabhängige Suszeptibilität. Bei $T \gg T_0$ verhalten sich Schwere-Fermionen-Verbindungen wie gewöhnliche, magnetische Seltenerd- oder Aktinid-Systeme, die itinerante Leitungselektronen mit konventionellen Massen und gut lokalisierte f -Elektronen aufweisen [2].

Für die theoretische Beschreibung von Schwere-Fermionen-Systemen wird die Tatsache genutzt, dass die thermodynamischen Eigenschaften dieser Verbindungen dem Verhalten verdünnter magnetischer Systeme gleichen. So lassen sich z. B. unmagnetische Systeme, in die Ce-Ionen als Verunreinigung dotiert wurden, ähnlich beschreiben. Die magnetischen Momente der Ce-Ionen werden durch den Kondo-Effekt unterhalb der sogenannten Kondo-Temperatur T_K abgeschirmt.

3.1.1 Das Kondo-Gitter-Modell

Der Kondo-Effekt geht zurück auf die Entdeckung eines Widerstandsminimums bei tiefen Temperaturen in Metallen mit magnetischen Verunreinigungen. Das Minimum konnte von J. Kondo theoretisch erklärt werden und stellt einen Vielteilcheneffekt dar [33]. Die stark lokalisierten f -Elektronen hybridisieren mit den Leitungselektronen, die an den magnetischen Störstellen gestreut werden. Der dazugehörige Ein-Teilchen-Hamilton-Operator hat folgende Form:

$$\mathcal{H}_K = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + J \cdot \mathbf{S} \cdot \mathbf{s}. \quad (3.1)$$

Der erste Term beschreibt das Leitungsband, wobei $\epsilon_{\mathbf{k}}$ die Dispersion des Leitungsbandes darstellt und $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$ und $c_{\mathbf{k}\sigma}$ ein Leitungselektron mit Wellenvektor \mathbf{k} und Spin σ erzeugen bzw. vernichten. Der zweite Term beschreibt die Wechselwirkung des Spins \mathbf{S} der magnetischen Verunreinigung auf einem Gitterplatz mit der Spindichte \mathbf{s} der Leitungselektronen an diesem Gitterplatz. J ist dabei die Austauschkopplung.

Für Systeme, wie die Schwere-Fermionen-Verbindungen, in denen das gesamte Gitter aus magnetischen Ionen besteht, wurde dieses Modell zum Kondo-Gitter-Modell erweitert. Ihm liegt der Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}_{KG} = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} c_{\mathbf{k}\sigma} + J \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}_i \quad (3.2)$$

zu Grunde [34]. Er unterscheidet sich von \mathcal{H}_K darin, dass über die Gitterplätze i der magnetischen Ionen summiert wird. \mathcal{H}_{KG} berücksichtigt also mehr als eine magnetische Verunreinigung. Unterhalb der charakteristischen Temperatur T_0 werden, analog zu T_K , die lokalen magnetischen Momente durch den Kondo-Effekt teilweise abgeschirmt. Auf Grund dieses Effekts wird die Ausbildung eines Landau-Fermi-Flüssigkeitszustandes in Schwere-Fermionen-Systemen bei tiefen Temperaturen ermöglicht. Die lokalen f -Momente tragen dann neben den Leitungselektronen zum Fermi-Volumen bei, das sich demzufolge vergrößert [34].

3.2 Phasenübergänge

Wechselt ein Stoff auf Grund einer Änderung eines externen Parameters wie z. B. Temperatur, Druck oder Magnetfeld von einem makroskopischem Zustand des Systems in einen anderen, wird dies als Phasenübergang bezeichnet.

Phasenübergänge werden nach P. Ehrenfest über die niedrigste unstetige Ableitung eines thermodynamischen Potentials am Umwandlungspunkt klassifiziert. Eine Unstetigkeit in der Entropie S , der Magnetisierung M oder im Volumen V kennzeichnet somit einen Phasenübergang erster Ordnung. Phasenübergänge mit Unstetigkeiten in den zweiten Ableitungen des thermodynamischen Potentials werden als zweiter Ordnung oder kontinuierlich bezeichnet. Phasenübergänge höherer Ordnung werden häufig als Crossover bezeichnet und spielen in der Theorie der Phasenübergänge keine Rolle. Eine allgemeine Beschreibung von Phasenübergängen erster und zweiter Ordnung wurde von L. D. Landau geliefert [35]. Grundlage ist die Einführung eines Ordnungsparameters, der zwischen geordneten und ungeordneten Phasen unterscheidet, und die Reihenentwicklung des thermodynamischen Potentials nach Potenzen des Ordnungsparameters. Der Ordnungsparameter ist nur in der geordneten Phase von null verschieden. In einem Ferromagneten beispielsweise ist das die Magnetisierung. In Supraleitern stellt die Paarwellenfunktion der Cooper-Paare den Ordnungsparameter dar. Eine ausführliche Beschreibung zur Theorie der Phasenübergänge findet sich z. B. in Ref. [36].

Phasenübergänge erster Ordnung

An Phasenübergängen erster Ordnung ändert sich der Ordnungsparameter sprunghaft, wie zum Beispiel die Dichte beim Übergang zwischen flüssigem und festem Aggregatzustand. An der Übergangstemperatur koexistieren beide Phasen, dabei tritt latente

Wärme auf. Bei magnetischen Phasenübergängen beispielsweise treten durch die Ausbildung metastabiler Phasen am Übergangspunkt Hystereseeffekte in der Magnetisierung als Funktion eines äußeren Magnetfeldes auf. Dieser Effekt hat in der Wechselfeldsuszeptibilität $\chi_{AC}(T) = \partial M(T)/\partial H$ das Auftreten eines Imaginärteils, auch Hystereseanteil genannt, zur Folge. Experimentell ist diese Messgröße deshalb gut geeignet, um zwischen Phasenübergängen erster und zweiter Ordnung zu unterscheiden.

Phasenübergänge zweiter Ordnung

In Phasenübergängen zweiter Ordnung tritt ein System bei Erreichen der Übergangstemperatur durch spontane Symmetriebrechung in die geordnete Phase ein. Der Ordnungsparameter η verhält sich nach der Landau-Theorie in der geordneten Phase gemäß $\eta = |T - T^*|^{0.5}$, wobei T^* die Übergangstemperatur ist. Er nimmt mit steigender Temperatur ab und verschwindet stetig bei T^* .

In der Landau-Theorie unberücksichtigt sind Fluktuationen des Ordnungsparameters. Während der thermodynamische Mittelwert des Ordnungsparameters in der ungeordneten Phase null ist, sind es die Fluktuationen nicht [37]. Nähert sich das System dem Übergangspunkt, werden die Korrelationen zwischen den Fluktuationen langreichweitig. Ihre typische Längenskala, die Korrelationslänge ξ divergiert dann am Übergangspunkt mit $\xi \sim |t|^{-\nu}$, wobei $t = |T - T^*|/T^*$ und ν der kritische Exponent ist. Analog dazu divergiert auch die Korrelationszeit $\tau_c \sim \xi^z \sim |t|^{-\nu z}$. z ist der dynamische kritische Exponent. In Metallen gilt beispielsweise $z = 2$ für antiferromagnetische Ordnung und $z = 3$ für ferromagnetische Ordnung.

Diese Divergenzen sind für sogenannte kritische Phänomene verantwortlich. Fluktuationen am Übergangspunkt treten dadurch auf allen Längen- und Zeitskalen auf. Das System wird dann als skaleninvariant bezeichnet [38]. Als Konsequenz daraus hängen alle Messgrößen über ein Potenzgesetz von den externen Parametern ab. Die sich ergebenden kritischen Exponenten charakterisieren somit das kritische Verhalten in der Nähe eines Phasenübergangs. Eine Übersicht der kritischen Exponenten je nach Dimensionalität und verwendeter Methode zu deren Bestimmung findet sich z. B. in Ref. [39].

Eine weitere Eigenschaft von kontinuierlichen Phasenübergängen ist die Universalität [40]. Das heißt, dass die kritischen Exponenten für ganze Klassen von Phasenübergängen, die in den verschiedensten physikalischen Systemen auftreten, dieselben sind. Diese Universalitätsklassen sind ausschließlich über die Symmetrie des Ordnungsparameters und die räumliche Dimension des Systems bestimmt. Der zu Grunde liegende Mechanismus ist die Divergenz der Korrelationslänge. Die Hypothese der Existenz dieser Universalitätsklassen wurde 1971 von Wilson durch die Renormierungstheorie bestätigt [41]. Die so entstandene Theorie zu Phasenübergängen zweiter Ordnung wird Landau-Ginzburg-Wilson-Theorie genannt.

Während bisher nur auf Phasenübergänge bei endlicher Temperatur eingegangen

wurde, widmet sich der nächste Abschnitt den Phasenübergängen bei $T = 0$ - dem Phänomen des Quantenphasenübergangs.

3.3 Quantenkritisches Verhalten

In einigen Schwere-Fermionen-Systemen treten auf Grund konkurrierender Wechselwirkungen bei tiefen Temperaturen Abweichungen vom LFF-Verhalten auf, die auf die Existenz eines quantenkritischen Punktes (QKP) hindeuten. Dies wird im Folgenden genauer erläutert und einige theoretische Modelle dazu kurz vorgestellt.

Neben der Kondo-Wechselwirkung, die eine Abschirmung der lokalen magnetischen Momente bewirkt und LFF-Verhalten ermöglicht, treten in einem Kondo-Gitter zusätzlich Wechselwirkungen zwischen den lokalen Momenten auf. Dies können einerseits direkte Austauschwechselwirkungen zwischen den f -Orbitalen sein, aber sie werden andererseits auch durch die Polarisierung der Leitungselektronen erzeugt. Diese indirekte RKKY-Wechselwirkung, benannt nach Ruderman und Kittel [42] sowie Kasuya [43] und Yosida [44], wird in quadratischer Ordnung in J durch den Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}_{RKKY} = \sum_{i,j} I_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (3.3)$$

dargestellt, wobei die Kopplung durch $I_{ij} = N(E_F)J^2F(k_F R_{ij})$ gegeben ist. R_{ij} steht für den Abstand zwischen den Gitterplätzen i und j , $N(E_F)$ beschreibt die Zustandsdichte an der Fermikante und es gilt $F(x) = (x \cos x - \sin x)/x^4$ [34].

Das Wechselspiel zwischen der Kondo-Wechselwirkung und der RKKY-Wechselwirkung bestimmt das Phasendiagramm eines Kondo-Gitters. Dies wurde erstmals theoretisch für eine eindimensionale Kette von Kondo-Spins durch S. Doniach gezeigt [8]. Für die Energieskalen gilt

$$T_K \sim \exp\left(-\frac{1}{N(E_F)J}\right) \quad (3.4)$$

und

$$T_{RKKY} \sim N(E_F)J^2. \quad (3.5)$$

Für schwache Kopplung J dominiert die RKKY-Wechselwirkung, wie im T - J -Phasendiagramm in Abb. 3.1 dargestellt. Das System weist somit einen antiferromagnetischen Grundzustand auf. Mit zunehmender Kopplung gewinnt die Kondo-Wechselwirkung an Einfluss. Ab einem kritischen Wert J_C kommt es auf Grund der Abschirmung der lokalen Momente zur vollständigen Unterdrückung des antiferromagnetischen Grundzustandes. Das System wechselt dann in den LFF-Zustand. An dieser Stelle tritt laut Doniach bei $T = 0$ ein Phasenübergang zweiter Ordnung auf - ein Quantenphasenübergang. Die genaue Lage von J_C im T - J -Phasendiagramm ist nicht bekannt. Dieses Modell ist gegenüber realen Schwere-Fermionen-Systemen stark vereinfacht. Es

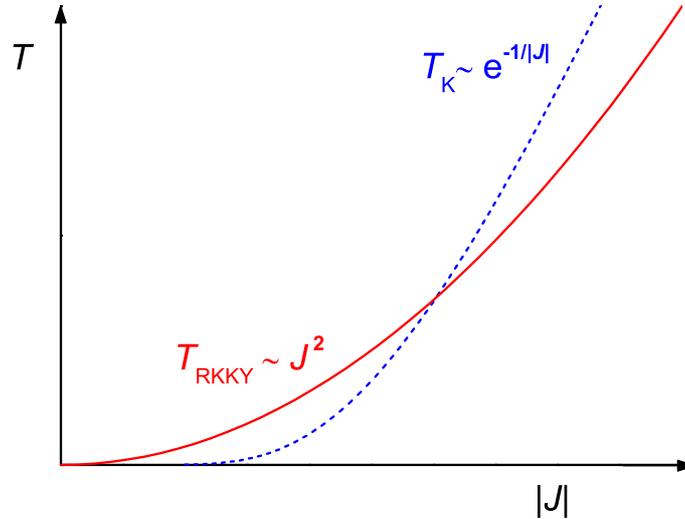


Abb. 3.1: Im diesem, als Doniach-Diagramm bekannten, Phasendiagramm sind T_K (durchgezogene Linie) und T_{RKKY} (gestrichelte Linie) in Abhängigkeit von der Kopplungsstärke J aufgetragen. Im Bereich schwacher Austauschkopplung dominiert die RKKY-Wechselwirkung. Mit zunehmender Kopplung überwiegt die Kondo-Wechselwirkung.

hat sich jedoch gezeigt, dass die Konkurrenz zwischen der Kondo- und der RKKY-Wechselwirkung auch in diesen Systemen eine entscheidende Rolle für das Verständnis quantenkritischen Verhaltens spielt.

In zahlreichen Verbindungen ist es möglich, einen Phasenübergang zweiter Ordnung durch einen äußeren Parameter, der direkt mit der Kopplungsstärke J verknüpft ist, zu einem QKP bei $T = 0$ zu verschieben [3]. Solch ein Parameter kann hydrostatischer Druck, chemische Substitution oder ein äußeres Magnetfeld sein. Oberhalb eines QKPs tritt bei endlicher Temperatur Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten (NFF-Verhalten) auf. Es ist durch ungewöhnliche Divergenzen von thermodynamischen und Transportgrößen gekennzeichnet, die nicht den Vorsagen der LFF-Theorie entsprechen. Das NFF-Verhalten ist bei tiefen Temperaturen beobachtbar und ermöglicht somit den experimentellen Zugang zu quantenkritischem Verhalten.

Zum Verständnis quantenkritischen Verhaltens in Schwere-Fermionen-Systemen wurden verschiedene Szenarien entwickelt, die nun kurz vorgestellt werden.

3.3.1 Das Hertz-Millis-Szenario

Das auf Hertz [6] zurückgehende und von Millis [7] sowie Moriya [45] weiterentwickelte Modell eines Szenarios für itinerante QKPe folgt zunächst dem Ansatz der Landau-Ginzburg-Wilson-Theorie. Neben den thermischen Fluktuationen des Ordnungsparameters werden aber Quantenfluktuationen am QKP berücksichtigt.

Solange die quantenmechanische Energieskala der kritischen Fluktuationen $\hbar\omega_c$

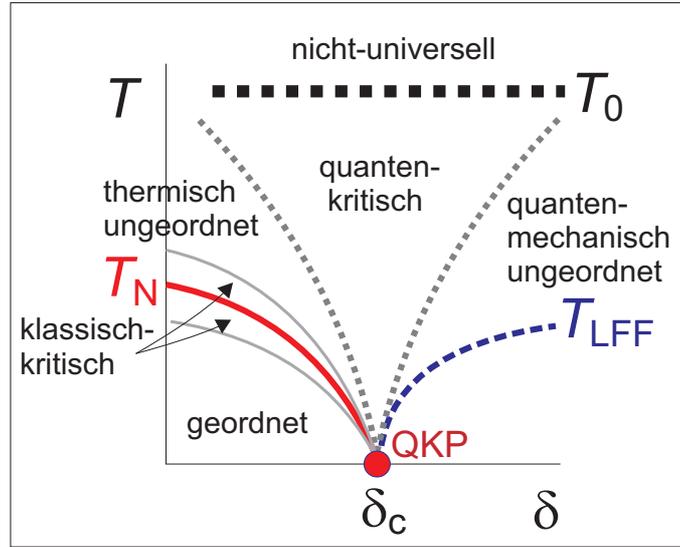


Abb. 3.2: Schematisches Phasendiagramm mit itinerantem QKP nach Hertz und Millis. Aufgetragen ist die Temperatur T über einem externen Kontrollparameter δ . Beim kritischen Wert δ_c befindet sich bei $T = 0$ der QKP. Oberhalb von der charakteristischen Temperatur T_0 verhält sich das System nicht-universell; die Elektronen sind völlig inkohärent. Abbildung gemäß Ref. [40].

klein ist gegenüber der thermischen Energieskala $k_B T$, spielt erstere bei der Betrachtung kritischer Phänomene keine Rolle. Für Phasenübergänge bei endlicher Temperatur gilt generell $\hbar\omega_c \rightarrow 0$, da die Korrelationszeit τ_c divergiert. Findet ein Phasenübergang, getrieben durch einen nicht-thermischen Parameter δ , jedoch bei $T = 0$ statt, ist die thermische Energie null. Der Phasenübergang wird dann durch Quantenfluktuationen beschrieben, die auf der Heisenbergschen Unschärferelation beruhen. Im Phasendiagramm befindet sich oberhalb solch eines QKPs ein trichterförmiger Bereich, in dem Quanten- und thermische Fluktuationen konkurrieren, siehe Abb. 3.2. Dieser Bereich wird als quantenkritisch bezeichnet und ist durch NFF-Verhalten gekennzeichnet. Entlang der Phasengrenzlinie der geordneten Phase ist das System bei endlicher Temperatur von klassisch-kritischen Fluktuationen bestimmt.

Mikroskopisch betrachtet entsteht im Falle eines antiferromagnetischen Systems auf der Seite des QKPs, auf der die Kopplung schwach ist, durch die spontane Modulation der Ladungsträgerspins itineranter Antiferromagnetismus. Es bilden sich Spindichtewellen aus. An diesem Spindichtewellen-QKP existieren Quasiteilchen mit endlicher effektiver Masse m^* und endlichem Streuquerschnitt. Auf der anderen, quantenmechanisch ungeordneten Seite liegt bei tiefen Temperaturen der LFF-Bereich. Auch für ferromagnetische Systeme wird itinerantes Verhalten vorausgesetzt.

In diesem Modell konnten zahlreiche zu erwartende Temperaturabhängigkeiten physikalischer Größen für die verschiedenen Bereiche des Phasendiagramms berechnet wer-

den. Eine Übersicht dazu findet sich z. B. in Ref. [34]. Eine detaillierte theoretische Beschreibung des Hertz-Millis-Szenarios ist in Ref. [46] gegeben.

In einigen Schwere-Fermionen-Systemen, wie etwa in CeNi_2Ge_2 [11], konnte den theoretischen Vorhersagen entsprechendes Verhalten nachgewiesen werden. Ein von den Erwartungen des Hertz-Millis-Szenarios abweichendes Verhalten wurde in einem Schwere-Fermionen-System erstmals in der Dotierungsreihe $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ [47] gefunden. Diese Verbindung weist bei $x = 0.1$ einen QKP auf. Messungen der inelastischen Neutronenstreuung an $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ [48, 49] zeigten ein ω/T -Skalierungsverhalten der dynamischen Suszeptibilität $\chi(q, \omega)$ und einen kritischen Exponenten $\alpha = 0.75$ in der Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von χ . Auch die Verbindung YbRh_2Si_2 lässt sich nicht im Rahmen des Hertz-Millis-Szenarios beschreiben. Die Ergebnisse in diesen beiden Systemen erforderten somit weitere theoretische Überlegungen. Der Nachweis lokaler magnetischer Momente in $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ legte die Vermutung nahe, dass die Abschirmung durch den Kondo-Effekt auf der magnetischen Seite dieses QKPs komplett aufgehoben wird.

3.3.2 Das Lokale-Momente-Szenario

Ein Zusammenbruch des Kondo-Effekts am QKP erfordert neben den Fluktuationen des Ordnungsparameters die Berücksichtigung weiterer Freiheitsgrade in der theoretischen Beschreibung dieses Phänomens. Die theoretischen Modelle zum lokalen QKP gehen davon aus, dass am QKP die Kohärenz der Quasiteilchen aufgebrochen wird und unabgeschirmte lokale Momente der f -Elektronen auf der einen Seite des QKPs existieren, während auf der anderen Seite LFF-Verhalten auftritt. Dies führt zu einer sprunghaften Änderung des Fermi-Volumens am QKP. Auf der LFF-Seite, auf der die f -Elektronen durch schwere Quasiteilchen beschrieben werden und auf Grund ihrer Hybridisierung mit den Leitungselektronen zur Fermi-Fläche beitragen, ist das Volumen größer als auf der anderen Seite des QKPs. Gleichzeitig wird eine Divergenz der effektiven Masse am QKP erwartet. Als Ursache dieses Effekts wird die Kopplung lokaler Momente mit den Fluktuationen anderer lokaler Momente angesehen. Dazu wurden folgende Modelle vorgeschlagen:

- (1) Der magnetische Phasenübergang geht einher mit einem kontinuierlichen Übergang der elektronischen Anregungen zwischen lokalisiertem und delokalisiertem Zustand [50, 51].
- (2) Am QKP erfolgt eine Trennung von Spin und Ladung der Quasiteilchen in sogenannte Spinonen und Holonen [52].
- (3) Die lokalen Momente bilden eine Spinflüssigkeit auf Grund von geometrischer Frustration [53] und der Übergang am QKP wird als Mott-Übergang des Systems

der f -Elektronen interpretiert [54], wobei die Existenz einer magnetischen Phase nicht zwingend erforderlich ist [55, 56].

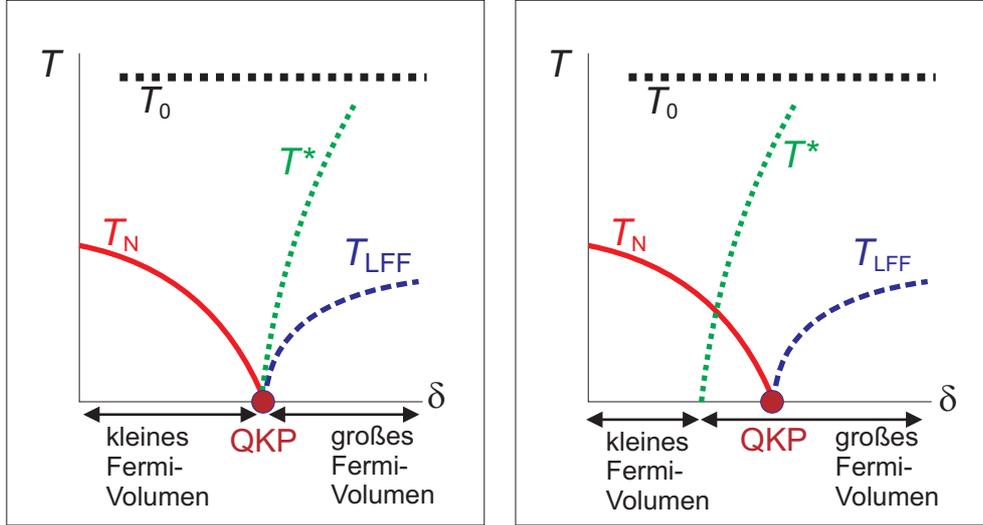


Abb. 3.3: Schematische Phasendiagramme verschiedener Szenarien. Links: lokaler QKP. Rechts: itineranter QKP. Aufgetragen ist jeweils die Temperatur T über einem externen Kontrollparameter δ . Die Energieskala T^* kennzeichnet jeweils den Übergang von lokalen Momenten auf der linken Seite der Linie zu Quasiteilchen, die zum Fermi-Volumen beitragen, auf der rechten Seite. T_N kennzeichnet den antiferromagnetischen Phasenübergang und T_{LFF} den Übergang in den LFF-Bereich bei tiefen Temperaturen. T_0 steht für den Übergang von einem völlig inkohärenten Zustand der lokalen Momente bei hoher Temperatur in ein Zwischenstadium, in dem die Kondo-Abschirmung teilweise einsetzt.

Am lokalen QKP ändert sich das Fermi-Volumen bei $T = 0$ sprunghaft. Da die f -Elektronen auf der Seite schwacher Kondo-Wechselwirkung nicht zur Fermi-Fläche beitragen, ist das Volumen dort klein. Auf der anderen Seite hybridisieren die f -Elektronen mit den Leitungselektronen und liefern somit einen Beitrag zur Fermi-Fläche, der das Volumen vergrößert. Bei endlicher Temperatur wird der Sprung des Fermi-Volumens thermisch verbreitert. Es ist ein Crossover vom einen in das andere Regime zu erwarten. In den beiden Phasendiagrammen in Abb. 3.3 ist dieser Übergang durch die Linie T^* gekennzeichnet. Im linken Phasendiagramm ist ein lokaler antiferromagnetischer QKP gemäß Modell (1) dargestellt. Der Magnetismus wird genau dort zu $T = 0$ unterdrückt, wo auch die Energieskala T^* verschwindet. Die quantenkritischen Fluktuationen enthalten nicht nur die Fluktuationen des magnetischen Ordnungsparameters sondern auch solche, die mit dem Zusammenbruch des Kondo-Effekts in Verbindung gebracht werden. Im rechten Bild dagegen sind diese beiden Energieskalen unabhängig voneinander. Innerhalb der magnetischen Phase tritt ein Übergang von kleinem zu großem Fermi-Volumen auf. Auf beiden Seiten des QKPs ist das Fermi-Volumen somit groß. Daraus

folgt, dass der Antiferromagnetismus zwischen T^* und dem QKP itineranter Natur ist und in die Kategorie der Hertz-Millis-Theorie fällt. Nach Modell (3) sollte ein QKP, unabhängig von einer magnetischen Phase, jedoch genau bei dem Wert des Kontrollparameters δ auftreten, an dem sich das Fermi-Volumen ändert, also $T^* \rightarrow 0$ geht. Somit könnten im rechten Phasendiagramm zwei QKPe verschiedener Natur auftreten. Ein Übergang von itinerantem Antiferromagnetismus zu einem durch lokale Momente erzeugten kann jedoch auch völlig kontinuierlich verlaufen [57].

3.4 Unordnungsphänomene

Eine Ursache für Unordnung im Kristallgitter metallischer Verbindungen ist das gezielte Dotieren mit einem zusätzlichen Element. Dotierung wird eingesetzt um z. B. das Gittervolumen zu beeinflussen. Dazu werden Teile einer Atomsorte durch kleinere oder größere Atome ersetzt. Auf Grund einer meist zufälligen, statistischen Verteilung im Kristallgitter erhöht sich zum einen der Restwiderstand. Zum anderen können, etwa auf Grund zusätzlicher Einflüsse auf die magnetische Struktur eines Stoffes, Effekte mit kurzreichweitiger Ordnung einsetzen. Im Folgenden wird auf solche Effekte eingegangen, die im Zusammenhang mit quantenkritischem Verhalten von Interesse sind. Die theoretische Beschreibung von Unordnungsphänomenen stellt eine große Herausforderung dar und ist dementsprechend auch nicht einheitlich und frei von Kontroversen.

3.4.1 Spingläser

Spingläser besitzen eine gewisse Analogie zu Gläsern. Eine gefrorene, unterkühlte Flüssigkeit wird als Glas bezeichnet. Dieser amorphe Zustand entsteht üblicherweise durch rasches Abkühlen einer Schmelze, so dass für den Kristallisationsprozess nicht genügend Zeit verbleibt [58]. Während in Gläsern also die ungeordnete Phase daran gehindert wird, beim Abkühlen in eine langreichweitige kristalline Ordnung überzugehen, werden in Spingläsern die Spins bzw. magnetischen Momente daran gehindert, eine langreichweitige magnetische Ordnung auszubilden. Die Spins werden eingefroren. Dieser Effekt hängt aber nicht wie in Gläsern von der Abkühlgeschwindigkeit ab.

Wichtige Voraussetzungen zur Entstehung eines Spinglases sind die zufällige Anordnung von Störstellen im System sowie die Existenz verschiedener Kopplungsarten, die den Einfrierprozess zu einem kooperativen Phänomen machen. Sind diese beiden Voraussetzungen erfüllt, ist Frustration die direkte Konsequenz [59]. Die magnetischen Momente werden, auf einer makroskopischen Zeitskala betrachtet, unterhalb der Spinglastemperatur T_f eingefroren.

Detaillierte theoretische Beschreibungen von Spingläsern erweisen sich auf Grund der kurzreichweitigen Ordnung als schwierig [60]. Experimentell konnten jedoch einige charakteristische Phänomene gefunden werden. So zeichnet sich der Übergang in die

Spinglasphase bei T_f durch ein scharfes, frequenzabhängiges Maximum in der Wechselfeldsuszeptibilität aus, wie erstmals von Cannella und Mydosh [61] beobachtet. Auch zeigen sich Remanenz [62] und Hysterese [63] unterhalb des Einfrierens in Messungen der Magnetisierung in kleinen Feldern. Diese Effekte sind darauf zurückzuführen, dass es sich bei der Spinglasphase um einen metastabilen, irreversiblen Zustand handelt.

Es gibt keine eindeutige Definition zur Klassifizierung eingefrorener Zustände als Spinglas. Zwar sollten folgende Eigenschaften erfüllt sein [60]:

- eingefrorene Momente unterhalb des Übergangs, verbunden mit einem frequenzabhängigen Peak in der Suszeptibilität,
- das Fehlen von periodischer langreichweitiger magnetischer Ordnung,
- Remanenz und magnetische Relaxation unterhalb des Übergangs auf makroskopischen Zeitskalen bei Änderung des Magnetfeldes,

es ist jedoch nicht festgelegt, ob z. B. die Größe der magnetischen Momente oder die Art der Wechselwirkung unter ihnen relevant ist. Die in Unterabschnitt 3.4.3 beschriebenen Clusterglas-Zustände werden teilweise ebenfalls als Spingläser bezeichnet.

Als klassische Spingläser gelten Edelmetalle, in die wenige Prozent von Übergangsmetallionen, wie z. B. Fe oder Mn, dotiert wurden. In diesen Materialien kommt es auf Grund der Störstellen zu einer Frustration der Spins, die versuchen sich teilweise ferro- und teilweise antiferromagnetisch auszurichten [64]. Aber auch in Isolatoren wie z. B. $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ [65] und Oxiden [66] kann Spinglasverhalten beobachtet werden.

Auch Schwere-Fermionen-Systeme, die Unordnung aufweisen, zeigen oft spinglasartiges Verhalten, selbst wenn sie sich nicht in der Nähe einer magnetisch geordneten Phase befinden, wie z. B. $\text{Y}_{1-x}\text{U}_x\text{Pd}_3$ [67], $\text{UCu}_{5-x}\text{Pd}_x$ [68] oder URh_2Ge_2 [69]. Auf Grund des Wechselspiels zwischen Unordnung, lokalen magnetischen Momenten und der durch die RKKY-Wechselwirkung erzeugten Frustration ist dieses Verhalten an sich nicht unerwartet. Allerdings sind die Übergangstemperaturen in den eingefrorenen Zustand, in Anbetracht der hohen Konzentration magnetischer Momente, überraschend niedrig. Eine mögliche Erklärung dafür ist die Kondo-Abschirmung durch die Leitungselektronen, die einen paramagnetischen Zustand bevorzugt. Daraus ergibt sich die Idee, dass ein QKP zwischen einer Spinglasphase und einem Schwere-Fermionen-Paramagneten der Ursprung des NFF-Verhaltens in diesen Verbindungen sein könnte [70]. Möglicherweise ist die Berücksichtigung des Spinglaszustandes notwendig, um ein vollständiges theoretisches Bild des NFF-Verhaltens in diesen Systemen zu erhalten. Schwere-Fermionen-Systeme sollten z. B. mittels Dotierung an einen QKP bei $T = 0$ gebracht werden können. Generell ist zu erwarten, dass solch ein von Unordnung getriebener QKP komplizierter zu beschreiben ist als ein QKP in reinen Systemen. Neuere theoretische Arbeiten [71–73] schlagen Szenarien vor, in denen die Phasenübergänge verschmieren können. In dem Fall wird es eventuell unmöglich, die genaue Position eines QKPs zu bestimmen.

3.4.2 Griffiths-Phasen

Der Begriff der Griffiths-Phase geht zurück auf R. B. Griffiths [74]. Demnach befindet sich ein verdünnter Ferromagnet in der Nähe eines klassischen kritischen Punktes in der Griffiths-Phase, wenn seine Temperatur oberhalb seiner Ordnungstemperatur aber unterhalb der Ordnungstemperatur des entsprechenden reinen Ferromagneten liegt [75]. Dieser Bereich zeichnet sich durch Divergenzen in der freien Energie aus, den sogenannten Griffiths-Singularitäten. Im Modell für klassische Systeme sind diese Singularitäten relativ schwach, so dass sie in thermodynamischen Messgrößen experimentell nicht nachzuweisen sind. In Quanten-Griffiths-Phasen ist dieses Phänomen deutlich stärker ausgeprägt und es existieren mittlerweile einige theoretische Modelle zu deren Beschreibung [70].

Im Falle einer elektronischen Quanten-Griffiths-Phase [76] fluktuieren lokale magnetische Momente, die über die Kondo-Wechselwirkung mit der Kopplungsstärke J_i an einen See aus Leitungselektronen gekoppelt sind. Die Energieskala, die die Dynamik der lokalen Momente bestimmt, ist die Kondo-Temperatur T_K . Sie hängt exponentiell vom Produkt der Kopplungsstärke und der Zustandsdichte an der Fermi-Kante ab. Hier gilt $T_K \sim \exp(-1/\rho_i J_i)$, wobei ρ_i die lokale Zustandsdichte der Leitungselektronen beschreibt. Der exponentielle Ausläufer der Verteilung von $1/\rho_i J_i$ führt zu einer Verteilung von Kondo-Temperaturen gemäß der Verteilungsfunktion $P(T_K) \sim T_K^{\alpha-1}$. Daraus resultiert eine Ansammlung von weitestgehend unabhängigen Kondo-Spins, deren charakteristische Energieskalen einer Verteilung nach dem Potenzgesetz folgen.

Magnetische Quanten-Griffiths-Phasen treten ganz analog dazu auf [70]. In der Nähe eines QKP können auf Grund von Unordnung räumliche Fluktuationen auftreten. Diese Fluktuationen erzeugen kleine Bereiche des geordneten Zustands in einem System, das sich komplett in der ungeordneten Phase befindet (oder auch kleine ungeordnete Bereiche in der ansonsten geordneten Phase). Im einfachsten Fall nicht-korrelierter Unordnung entspricht die Wahrscheinlichkeit, einen solchen geordneten Bereich oder auch Cluster mit einem bestimmten Volumen V zu erhalten, der Funktion $P(V) \sim \exp(-cV)$. c ist eine von der Stärke der Unordnung abhängige Konstante. Jeder Cluster hat ein magnetisches Gesamtmoment. Im Falle eines ferromagnetischen Übergangs ist dieses Moment proportional zur Größe bzw. zum Volumen V des Clusters. Es findet ein Quantentunnelprozess zwischen Bereichen mit entgegengesetzter Gesamtmagnetisierung statt. Weil der Tunnelmechanismus einzelnen Spins unterliegt, ist die Gesamttunnelrate $\Delta \sim \omega_0 \exp(-bV)$ eines Clusters exponentiell abhängig von der Anzahl seiner Spins bzw. seinem Volumen V . b ist dabei eine vom Tunnelmechanismus abhängige Konstante und ω_0 eine Abschneidefrequenz. Die Tunnelrate gibt an, wie groß die Energielücke zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand eines Clusters ist.

Interessanterweise wird die exponentiell kleine Wahrscheinlichkeit großer Cluster durch die exponentiell großen Tunnelzeiten zwischen den Zuständen kompensiert, so

dass die Verteilung der Energieaufspaltungen gegeben ist durch:

$$P(\Delta) \sim \int dV P(V) \delta[\Delta - \omega_0 \exp(-bV)] \sim \Delta^{\alpha-1}, \quad (3.6)$$

wobei $\alpha = c/b$ ist [70].

Das Ergebnis ist also eine Verteilung unabhängig fluktuierender Gesamtmomente der Cluster, deren Frequenzen nach einem Potenzgesetz verteilt sind. Somit zeigt sich, dass elektronische und magnetische Quanten-Griffiths-Phasen beide durch eine Ansammlung fluktuierender Momente beschrieben werden. Deren Energieskalen sind jeweils nach einem Potenzgesetz verteilt, obwohl die mikroskopischen Ursachen unterschiedlicher Natur sind.

Aus der Verteilung der Energieskalen folgen direkt die thermodynamischen Eigenschaften. So sind Quanten-Griffiths-Phasen charakterisiert durch Divergenzen nach einem Potenzgesetz, etwa durch

$$\chi(T) \sim \frac{C(T)}{T} \sim T^{\alpha-1}. \quad (3.7)$$

Der Exponent α ist dabei nicht universell und abhängig von der Stärke der Unordnung. NFF-Verhalten drückt sich durch Exponenten kleiner als eins aus. In Schwere-Fermionen-Systemen wurden Werte für α zwischen 0.5 und 1 beobachtet [3, 77]. Ist $\alpha = 1$, tritt eine logarithmische Divergenz auf. In dotierten Halbleitern wurden stärkere Divergenzen mit $\alpha \approx 0.3 - 0.4$ gefunden [78]. Eine mögliche Erklärung für diesen Trend ergibt sich aus der Stabilität der lokalisierten magnetischen Momente in Schwere-Fermionen-Systemen, während in Halbleitern lokalisierte Momente erst durch die Unordnungsfluktuationen induziert werden.

Die Thermodynamik von Quanten-Griffiths-Phasen kann durch die Skalierung weniger physikalischer Größen mit der Temperatur ermittelt werden. In einem Zufalls-Quanten-Ising-Modell [79, 80] gilt für die Suszeptibilität

$$\chi(T) \sim \frac{\mu^2(T)n(T)}{T}, \quad (3.8)$$

wobei $\mu(T)$ das mittlere magnetische Moment pro Cluster und $n(T)$ die Anzahl aktiver Cluster ist. Gleichzeitig gilt für die spezifische Wärme

$$\frac{C(T)}{T} \sim \frac{dS}{dT} \quad \text{mit} \quad S(T) \sim n(T) \ln 2. \quad (3.9)$$

Daraus folgt für eine eindimensionale, zufällige Ising-Kette ein Sommerfeld-Wilson-Verhältnis

$$R_W \sim \frac{T\chi(T)}{C(T)} \sim \left[\ln \left(\frac{1}{T} \right) \right]^2. \quad (3.10)$$

Für $T \rightarrow 0$ divergiert R_W logarithmisch.

Das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis ist ein Maß, um das magnetische Moment der Cluster und damit ihre typische Größe abzuschätzen, da sich die Cluster-Anzahl, die in beiden thermodynamischen Größen auftritt, herauskürzt. Es wird erwartet, dass dieses Ergebnis auch in höheren Dimensionen seine Gültigkeit hat [70]. Unter der Annahme, dass das Moment der Cluster mit deren Größe anwächst, sollte R_W für $T \rightarrow 0$ langsam divergieren. Die exakte experimentelle Bestimmung des Sommerfeld-Wilson-Verhältnisses ist schwierig. Dennoch stellt sie eine geeignete Möglichkeit dar, die Anwendbarkeit des Szenarios der magnetischen Quanten-Griffiths-Phase auf reale Systeme zu prüfen.

Des Weiteren kann ein Zusammenhang zwischen der Größe der Cluster in der Quanten-Griffiths-Phase und der zu beobachtenden Entropie hergestellt werden. Weil in einer magnetischen Quanten-Griffiths-Phase große Cluster zwischen zwei Magnetisierungszuständen tunneln, beträgt die verfügbare Entropie pro Cluster $S_{cluster} \approx k_B \ln 2$. Die anderen mikroskopischen Freiheitsgrade sind eingefroren. Ist $N_{cluster}$ die Anzahl aller Cluster, so lässt sich die Gesamtentropie abschätzen als $S \approx N_{cluster} S_{cluster}$. Für die Entropie pro Spin gilt dann:

$$S_{spins} = \frac{S}{N_{spins}} \approx \frac{N_{cluster}}{N_{spins}} S_{cluster} \approx \frac{N_{cluster}}{N_{spins}} k_B \ln 2, \quad (3.11)$$

wobei N_{spins} die Anzahl aller Spins ist. Somit wird die Entropie pro Spin umso stärker reduziert, je größer die auftretenden Cluster sind und daher die Anzahl an Clustern im System abnimmt. In bisherigen Kandidaten unter den Schwere-Fermionen-Verbindungen für Griffiths-Verhalten [3, 77] wurden molare Spinentropien in der Größenordnung von $R = k_B N_A$ gefunden, was für sehr kleine Cluster spricht. Daher ist in diesen Systemen vermutlich eher von einer elektronischen Quanten-Griffiths-Phase auszugehen, in der einzelne Kondo-Spins fluktuieren.

Die Frage, ob Quanten-Griffiths-Phasen überhaupt in einem experimentell beobachtbaren Temperaturbereich auftreten, wird kontrovers diskutiert [81–83]. Im Wesentlichen hängt die Beobachtbarkeit von den Annahmen über die Stärke der Dissipation im System ab [72]. Im Ising-Modell wird ein QKP durch Unordnung exponentiell ausgeschmiert, wobei die Phasengrenzlinie auch im Ausläufer der magnetischen Phase zweiter Ordnung bleibt. Auf Grund des Ausläufers ist hier eine Quanten-Griffiths-Phase nicht beobachtbar. Betrachtet man jedoch einen Magneten mit Heisenbergscher Spin-Symmetrie, sollte der QKP nicht ausgeschmiert werden [73]. Auf seiner unmagnetischen Seite werden deutliche Divergenzen nach dem Potenz-Gesetz erwartet. Die Quanten-Griffiths-Phase bleibt bis zu tiefsten Temperaturen stabil.

3.4.3 Clusterglas-Phasen

In den theoretischen Betrachtungen von Quanten-Griffiths-Phasen in der Nähe eines QKPs in Abschnitt 3.4.2 wurden generell keine Wechselwirkungen zwischen den Clus-

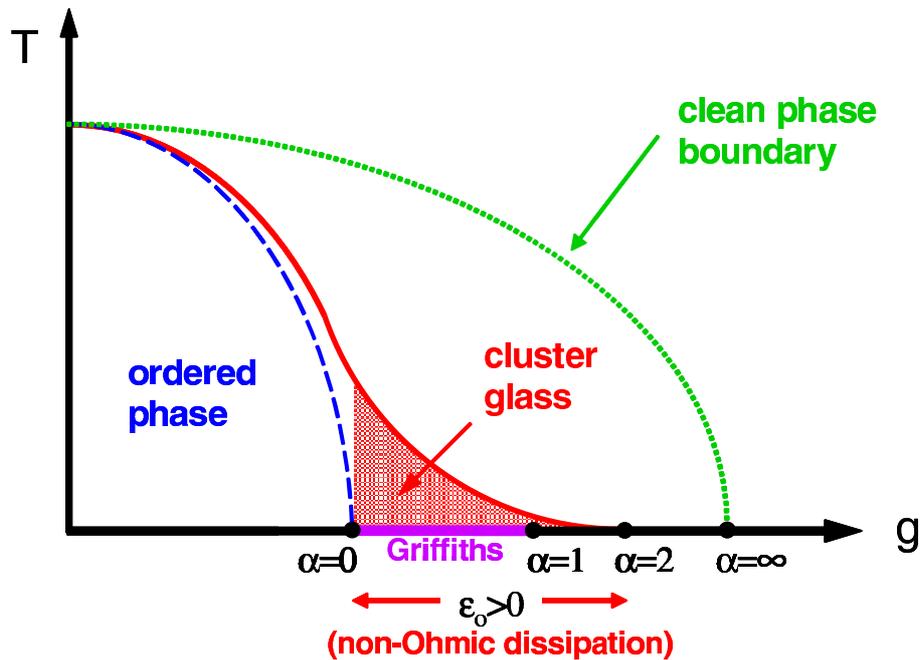


Abb. 3.4: Schematische Darstellung der Ausbildung einer Clusterglas-Phase als Ausläufer einer magnetische Phase im Heisenberg-Modell auf Grund magnetischer Wechselwirkungen zwischen den Clustern. Aufgetragen ist die Temperatur T über einem Unordnungsparameter g . Bedeutung der Linien: blau gestrichelt für die Phasengrenze einer geordneten Phase ohne Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung zwischen den Clustern, rot durchgezogen für den Verlauf unter Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung, grün gepunktet für den theoretischen Verlauf der Phasengrenze eines reinen Systems. Der rot schraffierte Bereich stellt die Clusterglas-Phase dar. Entnommen aus Ref. [71].

tern berücksichtigt, sondern lediglich Wechselwirkungen mit den Leitungselektronen. Nach der Argumentation von Dobrosavljević und Miranda [71] ist diese Betrachtungsweise unvollständig, weil in itineranten Systemen die magnetischen Momente immer über die langreichweitige RKKY-Wechselwirkung interagieren [84]. Daraus folgt, dass selbst die Dynamik von räumlich weit von einander getrennten Clustern nicht als unabhängig betrachtet werden kann. Die Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung führt zu einer zusätzlichen Dämpfung der Dynamik der Cluster bis hin zum Einfrieren in einem Clusterglas-Zustand, wie es in Abb. 3.4 dargestellt ist. Der Parameter g ist ein Maß für die Unordnung im System und unterdrückt dessen magnetische Ordnung. Die gestrichelte, blaue Linie stellt den Fall dar, dass die RKKY-Wechselwirkung nicht berücksichtigt ist. Sie führt für $T \rightarrow 0$ zu einem QKP. Die durchgezogene, rote Linie kennzeichnet den Verlauf der Phasengrenze unter Einbeziehung der magnetischen Wechselwirkung zwischen den Clustern, in deren Ausläufer sich eine Clusterglas-Phase (schraffierter Bereich) ausbildet, die die Quanten-Griffiths-Phase überlagert. Der

Griffiths-Exponent $\alpha = d/z$ nimmt ab, je näher sich das System an der langreichweitig magnetisch geordneten Phase befindet. d ist die Dimensionalität des Ordnungsparameters und z der dynamische Exponent des Systems. Der violette Bereich kennzeichnet die überlagerte Quanten-Griffiths-Phase zwischen $\alpha = 0$ und $\alpha = 1$. Hinreichend große Cluster können auch schon im Bereich bis $\alpha = 2$ einfrieren. Der Dämpfungsexponent $\varepsilon_0 = 2 - \alpha$ ist auf Grund der magnetischen Wechselwirkung im Bereich $0 \leq \alpha \leq 2$ größer als null.

Kapitel 4

$\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{M}_x)_2\text{Si}_2$

Quantenkritisches Verhalten in Schwere-Fermionen-Systemen wurde in der Vergangenheit im Wesentlichen an Ce-Systemen untersucht. Ein Grund dafür ist unter anderem die im Vergleich zu Yb-Verbindungen leichtere Herstellung der Proben. Als bedeutende Beispiele sind hier CeCu_2Si_2 [5] und $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ [47] zu nennen, aber auch CePd_2Si_2 [10] sowie CeCoIn_5 [85]. Seit einiger Zeit wird vermehrt nach Yb-Systemen gesucht, die sich in der Nähe eines QKP befinden. Auf Grund der Elektron-Loch-Analogie zwischen den elektronischen Konfigurationen des Ce^{3+} -Zustandes mit einem Elektron in der $4f$ -Schale und des Yb^{3+} -Zustandes mit einer bis auf ein Elektron gefüllten $4f$ -Schale ergibt sich eine interessante Alternative, die Physik in der Nähe eines QKPs zu studieren. In Yb-Systemen verringert sich die Austauschwechselwirkung zwischen den lokalen Momenten der $4f$ -Elektronen und den Leitungselektronen mit steigendem Druck. Somit ist es möglich, ein nicht-magnetisches Yb-System unter Druck in einen magnetischen Zustand zu zwingen und dessen Entwicklung in der Nähe eines QKPs zu beobachten.

Die Verbindung YbRh_2Si_2 hat sich in den letzten Jahren als Prototyp unter den auf Yb basierenden Schwere-Fermionen-Systemen zur Untersuchung quantenkritischen Verhaltens herausgestellt. Auf Grund seiner unmittelbaren Nähe zu einem QKP und dem Vorteil, dass es sich um eine stöchiometrische Verbindung handelt, die zudem in sehr guter Qualität hergestellt werden kann, ist YbRh_2Si_2 ideal geeignet neue Erkenntnisse auf dem Gebiet der stark korrelierten Elektronensysteme zu erbringen. Des Weiteren lässt sich das quantenkritische Verhalten in YbRh_2Si_2 nicht im etablierten Modell des Hertz-Millis-Szenarios erklären. Ziel ist durch genauere Untersuchungen einen Beitrag zum Verständnis eines lokalen QKPs zu leisten.

Im Folgenden werden zunächst bisher bekannte, charakteristische und in Bezug auf diese Arbeit relevante Eigenschaften von YbRh_2Si_2 zusammengestellt. Anschließend werden die Ergebnisse dieser Arbeit präsentiert. Zum einen wird das quantenkritische Verhalten von YbRh_2Si_2 untersucht. Zum anderen wird gezeigt, welchen Einfluss die Dotierung von Ir oder Co auf dem Rh-Platz auf das Phasendiagramm hat.

4.1 Das System $YbRh_2Si_2$ - Einführung

$YbRh_2Si_2$ kristallisiert in der tetragonal-raumzentrierten Struktur, die der Raumgruppe $I4mmm$ zuzuordnen ist. Die Kristallstruktur ist in Abb. 4.1 schematisch dargestellt. Es besteht eine deutliche Anisotropie zwischen der tetragonalen ab -Ebene und der c -Richtung des Kristalls, mit den Gitterparametern $a = 9.01 \text{ \AA}$ und $c = 9.86 \text{ \AA}$. Im Nullfeld ordnet $YbRh_2Si_2$ bei sehr tiefer Temperatur von $T_N = 70 \text{ mK}$ antiferromagnetisch, wobei das magnetische Moment mit nur etwa $10^{-3} \mu_B/Yb$ sehr klein ist [86].

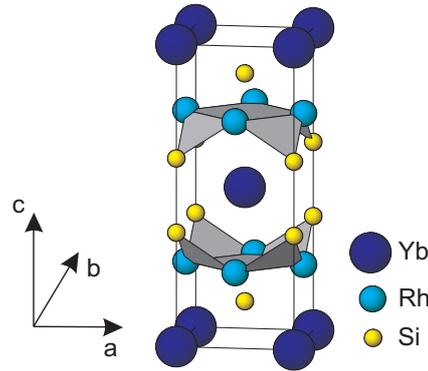


Abb. 4.1: Tetragonal-raumzentrierte Kristallstruktur von $YbRh_2Si_2$

Durch Anlegen eines kleinen äußeren Magnetfeldes von $B_c = 0.06 \text{ T}$ in der tetragonalen Ebene ($H \perp c$) wird die magnetische Ordnung vollständig unterdrückt. Entlang der magnetisch härteren Richtung ($H \parallel c$) wird dazu ein Feld von $B_c = 0.66 \text{ T}$ benötigt [87].

Aus Messungen der inelastischen Neutronenstreuung an $YbRh_2Si_2$ hat sich ergeben, dass der achtfach entartete Grundzustand der Yb^{3+} -Ionen durch das Kristallfeld entsprechend dem Kramers-Theorem in vier Duplett-Zustände aufgespalten wird [88]. Dabei sind der Grundzustand und die angeregten Niveaus deutlich voneinander separiert. Es ergibt sich ein Niveau-Schema mit Energien von 0, 17, 25 und 43 meV für die vier Zustände.

$YbRh_2Si_2$ weist am kritischen Feld B_c bei $T = 0$ einen magnetfeld-induzierten QKP auf. Vom antiferromagnetischen Zustand wird das System durch Anlegen eines Magnetfeldes in einen LFF-Zustand getrieben. Im Magnetfeld-Temperatur-Phasendiagramm tritt oberhalb des QKPs in einem trichterförmigen Bereich NFF-Verhalten auf. Dies äußert sich in einer weitestgehend linearen Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands [89], wie es in Abb. 4.2 A für $B \parallel c$ gezeigt ist. Während der Exponent der Temperaturabhängigkeit innerhalb der antiferromagnetischen Phase und des LFF-Bereichs 2 ist, nimmt er im übrigen Bereich des Phasendiagramms den Wert 1 an. Weiterhin zeigt der Koeffizient $\Delta C/T$ des Beitrags der $4f$ -Elektronen zur spezifi-

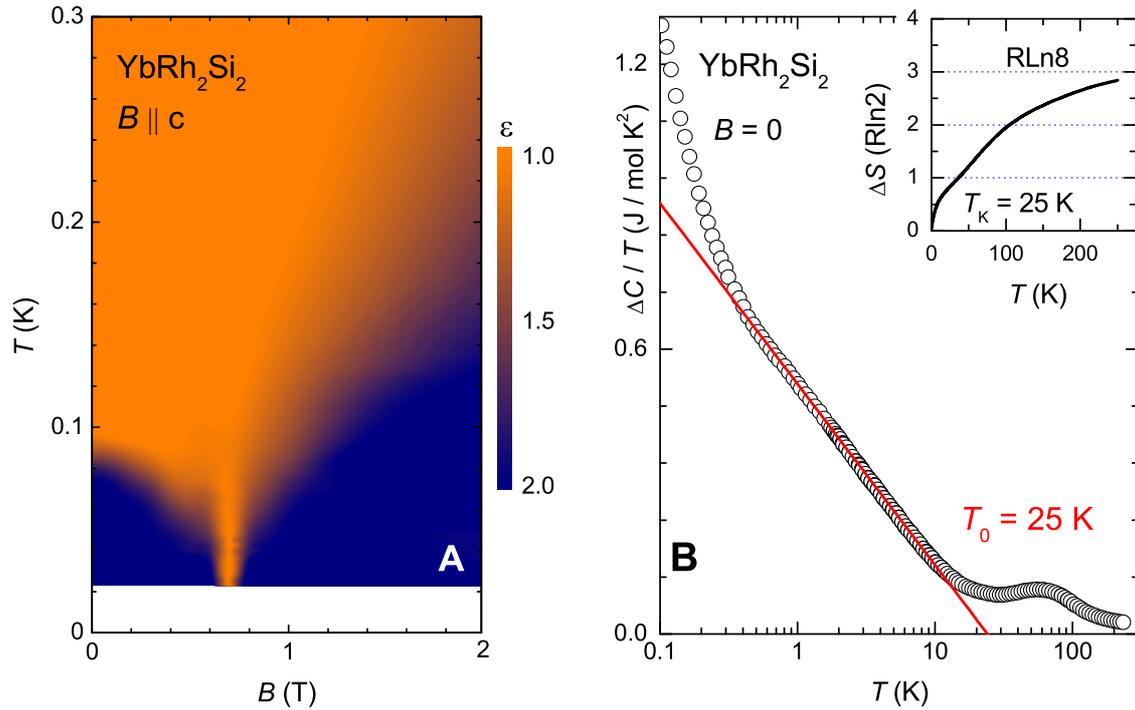


Abb. 4.2: **A** Exponent ε der Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands $\rho = \rho_0 + A \cdot T^\varepsilon$ durch Farbkodierung im B - T -Phasendiagramm dargestellt. Entnommen aus Ref. [89]. **B** Beitrag der $4f$ -Elektronen in YbRh_2Si_2 zum Koeffizienten der spezifischen Wärme auf einer logarithmischen Temperaturskala. Die Linie kennzeichnet die $\log(T_0/T)$ -Abhängigkeit mit $T_0 = 25$ K. Im Inset ist die magnetische Entropie in Einheiten von $R \ln 2$ aufgetragen. Entnommen aus [90].

schen Wärme unterhalb von etwa 10 K einen logarithmischen Temperaturverlauf, dargestellt in Abb. 4.2 **B**. Eine Interpolation dieses Verhaltens ergibt einen Wert von $T_0 = 25$ K, der als charakteristische Temperatur der Spin-Fluktuationen interpretiert werden kann. Aus der Entropie, wie sie im Inset von Abb. 4.2 **B** gezeigt ist, lässt sich die Einzelionen-Kondo-Temperatur T_K des Duplett-Grundzustandes im Kristall auf einen Wert abschätzen, der mit T_0 übereinstimmt. Dieses Verhalten wurde bereits in vielen anderen Schwere-Fermionen-Systemen in der Nähe eines QKP beobachtet [91].

YbRh_2Si_2 mit einem nominellen Ge-Anteil von 5% anstelle von Si befindet sich noch dichter am QKP als reines YbRh_2Si_2 . In dieser Verbindung wurde eine Divergenz des Grüneisenparameters Γ , dem dimensionslosen Verhältnis von thermischer Ausdehnung zu spezifischer Wärme, mit $\Gamma \sim T^{-0.7}$ beobachtet [9]. Im Hertz-Millis-Modell wird eine Divergenz mit einem Exponenten von -1 erwartet. Der Sommerfeld-Koeffizient γ_0 der spezifischen Wärme als Funktion von $(B - B_c)$ divergiert bei Annäherung an den QKP von der LFF-Seite her stärker als logarithmisch, was ebenfalls gegen das Hertz-Millis-Szenario spricht [89].

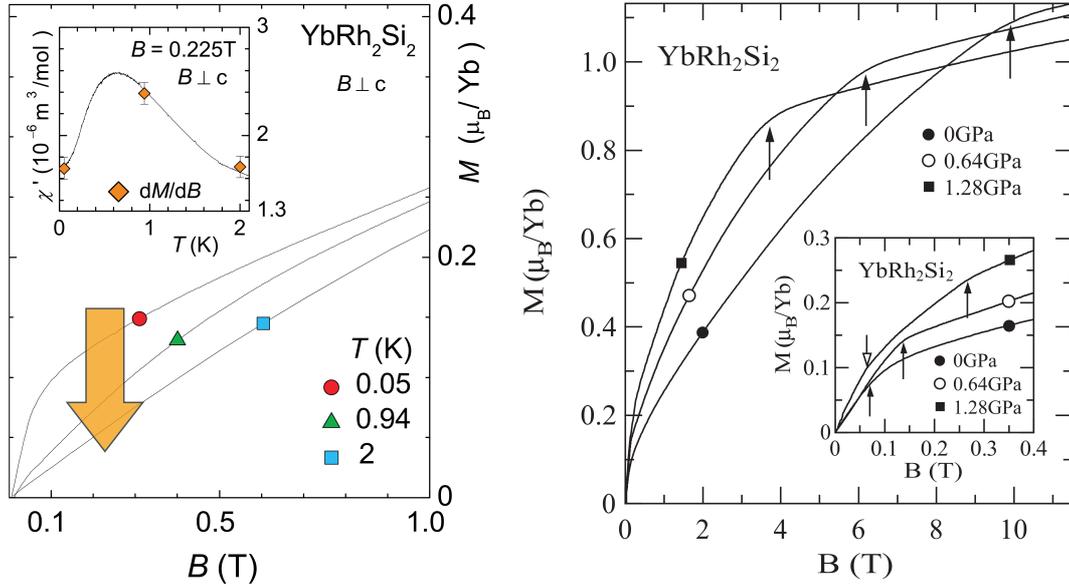


Abb. 4.3: Magnetisierung M von YbRh_2Si_2 in Abhängigkeit von der Feldstärke B . Links: $M(B)$ für kleine Magnetfelder bei drei verschiedenen Temperaturen T . Die Messungen zeigen eine Steigungsänderung, die mit zunehmender Temperatur zu höheren Feldern verschiebt und verbreitert. Im Inset ist die Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ gezeigt, die auf Grund der Steigungsänderung in M ein Maximum aufweist. Entnommen aus Ref. [23]. Rechts: $M(B)$ unter hydrostatischem Druck im größeren Feldbereich bei konstanter Temperatur von $T = 50$ mK für drei verschiedene Drücke. Bei Normaldruck wird ab etwa 10 T ein Abflachen der Kurve beobachtet, welches unter Druck zu kleineren Feldern verschiebt. Im Inset ist eine Vergrößerung des Bereichs kleiner Felder gezeigt. Entnommen aus Ref. [92].

Die isotherme Magnetisierung von YbRh_2Si_2 als Funktion des Magnetfeldes zeigt eine deutliche Steigungsänderung bei etwa 50 mT bei tiefer Temperatur, die mit steigender Temperatur zu höheren Feldern verschiebt und sich verbreitert. Dementsprechend tritt in der Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Temperatur bei konstantem Magnetfeld ein breites Maximum auf. Im linken Graph in Abb. 4.3 ist dieses Verhalten der Magnetisierung $M(B)$ für verschiedene Temperaturen gezeigt. Der Pfeil symbolisiert eine Messung der Suszeptibilität $\chi(T)$, die im Inset gezeigt ist. Die dort eingezeichneten Punkte ergeben sich aus der Ableitung der Magnetisierung. Des Weiteren zeigt die Magnetisierung, wie rechts in Abb. 4.3 gezeigt, im hohen Feld bei etwa 10 T ein erneutes Abflachen der Kurve. Dies deutet auf eine magnetfeld-induzierte Unterdrückung des Kondo-Effekts hin. Im entsprechenden Inset ist dargestellt, wie der antiferromagnetische Übergang unter Druck zu höheren Feldern verschoben wird (schwarze Pfeile). In der Messkurve bei $p = 1.28$ GPa ist ein weiterer Knick zu erkennen (offener Pfeil), der etwa bei 50 mT auftritt.

Eine weitere bemerkenswerte Eigenschaft von YbRh_2Si_2 ist die erstmalige Beob-

achtung eines Signals in der Elektronen-Spin-Resonanz (ESR) in einem Kondo-Gitter-System unterhalb der Kondo-Temperatur [93]. Typischerweise verursachen die Spinfluktuationsraten der Kondo-Ionen in diesen Systemen eine sehr große ESR-Linienbreite, so dass kein Signal detektiert werden kann. Eine systematische Untersuchung von Kondo-Gitter-Systemen hat jedoch ergeben, dass ferromagnetische Fluktuationen in diesen Systemen ein ESR-Signal erzeugen [94].

In YbRh_2Si_2 wurden bereits einige Hinweise gefunden, dass die quantenkritischen Fluktuationen eine starke ferromagnetische Komponente haben, die das Verhalten bei $B > B_c$ dominiert [95]. So ist das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis mit einem Wert von 20 stark erhöht. Die Suszeptibilität $\chi(T)$ divergiert im Nullfeld oberhalb von 0.3 K. Die Pauli-Suszeptibilität $\chi_0(B)$ divergiert im LFF-Regime bei Annäherung an den QKP. Das Verhältnis A/χ_0 ist feldunabhängig, wobei A der Koeffizient des quadratischen Terms von $\rho(T)$ ist. Weiterhin deutet das konstante Korringa-Verhältnis auf Grund seines kleinen Wertes auf die Existenz ferromagnetischer Fluktuationen hin [96].

Diese Ergebnisse zeigen, dass YbRh_2Si_2 ein vielfältiges und interessantes Phasendiagramm in der Nähe eines QKP aufweist. Die Anomalien in Magnetisierungs- und Suszeptibilitätsmessungen deuten zusammen mit den Ergebnissen der Hall-Effekt-Experimente, die im nächsten Abschnitt zusammengefasst werden, auf eine zusätzliche Energieskala im Phasendiagramm hin.

4.1.1 Hall-Effekt

Ausgehend von den unkonventionellen Szenarien für quantenkritisches Verhalten in Schwere-Fermionen-Systemen, die eine Lokalisierung der f -Elektronen am QKP erwarten, ergibt sich als Konsequenz ein Sprung im Fermi-Volumen als Funktion eines externen Kontrollparameters von einer Seite des QKP zur anderen. Da der Hall-Effekt auf eine Änderung des Fermi-Volumens als Funktion des Magnetfeldes empfindlich reagieren sollte [52], wurden entsprechende Messungen an YbRh_2Si_2 vorgenommen [12].

Dazu wurden zwei Experimente durchgeführt. Zunächst wurde die Hall-Spannung V_H senkrecht zum entlang der c -Richtung des Kristalls angelegten Magnetfeld B_1 und zur Stromrichtung gemessen. Daraus ergibt sich der Hall-Widerstand ρ_H , siehe Abb. 4.4 A. Es wurde in Abhängigkeit von der Temperatur jeweils ein Magnetfeld B_0 gefunden, bei dem $\rho_H(B_1)$ eine Steigungsänderung des sonst linearen Verlaufs erfährt. Je tiefer die Temperatur ist, desto schärfer ist dieser Übergang ausgeprägt. Er lässt sich durch die Anpassung des Integrals einer empirischen Crossover-Stufenfunktion

$$f(B, T) = A_1 - \frac{A_2 - A_1}{1 + \left(\frac{B}{B_0}\right)^p} \quad (4.1)$$

bestimmen [12]. Nach der Integration ist B_0 das Crossover-Feld, bei dem die Steigungsänderung auftritt. A_1 und A_2 entsprechen der Anfangs- bzw. der Endsteigung der Messkurven, p ist ein Mass für die Schärfe des Übergangs.

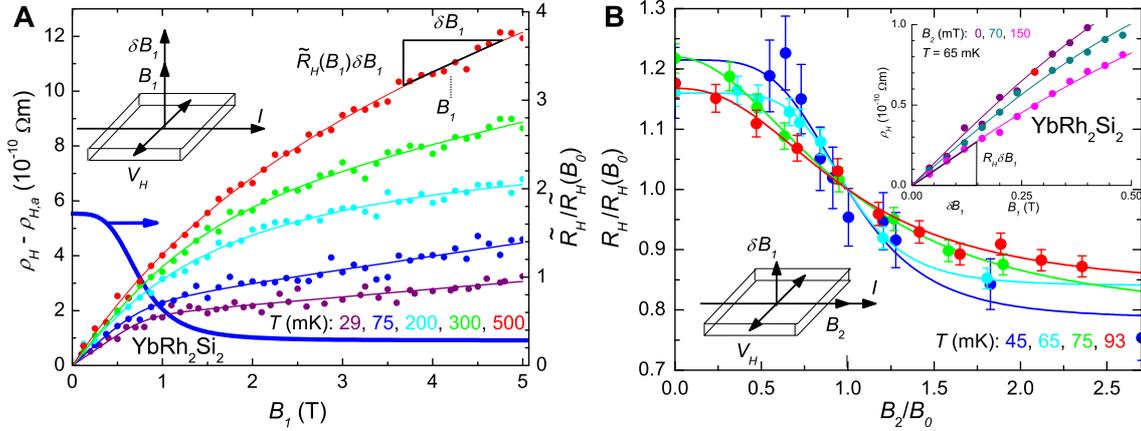


Abb. 4.4: **A** Normaler Hall-Widerstand ρ_H aufgetragen über dem senkrecht zur Stromrichtung I angelegten Magnetfeld B_1 für fünf Temperaturen. Die Linien ergeben sich aus der Anpassung einer Crossover-Funktion. Für $T = 75$ mK ist die Ableitung \tilde{R}_H der Crossover-Funktion gezeigt (rechte Achse). **B** Linearer Hall-Koeffizient R_H aufgetragen über dem in Stromrichtung angelegten Magnetfeld B_2 für vier Temperaturen, jeweils normiert auf die Werte am Crossover-Feld B_0 . R_H entspricht der Anfangssteigung von $\rho_H(B_1)$ bei dem jeweils zusätzlich angelegten Kreuzfeld B_2 . Entnommen aus Ref. [12]

Als zweites Experiment wurde mit gekreuzten Magnetfeldern gemessen. Dafür wurde neben einem kleinen Feld δB_1 in c -Richtung zusätzlich ein Feld B_2 in Richtung des Stromflusses I angelegt und variiert, siehe Abb. 4.4 **B**. So lässt sich die Anfangssteigung des Hall-Widerstandes, der Hall-Koeffizient R_H , als Funktion von B_2 bestimmen. Hieraus ergibt sich jeweils eine Stufenfunktion, an die $f(B, T)$ direkt angepasst werden kann.

Die beobachteten Anomalien aus beiden Experimenten ergeben im B - T -Phasendiagramm eine neue Crossover-Linie, die zusätzlich zu der antiferromagnetischen Phasengrenzlinie und dem Übergang in den LFF-Bereich jenseits des QKPs auftritt. Diese Linie endet ebenfalls am QKP und wurde zunächst als Hall-Linie bezeichnet, da sie erstmals aus den Hall-Effekt-Messungen ermittelt wurde. Im Folgenden wird sie hier als T^* -Linie behandelt. Die zunehmende Schärfe der Übergänge bei sinkender Temperatur deutet auf einen Sprung des Hall-Koeffizienten bei $T = 0$ hin, welcher durch einen Sprung des Fermi-Volumens zu erklären wäre.

Ausgehend von den Hall-Effekt-Messungen an YbRh_2Si_2 stellt sich die Frage, ob $T^*(B)$ eine Energieskala darstellt. In dem Fall wäre $T^*(B)$ die Signatur der Änderung des Fermi-Volumens bei endlicher Temperatur. Um dies zu prüfen, sind Messungen thermodynamischer Größen notwendig.

4.1.2 Einfluss von Druck und Dotierung

Durch hydrostatischen Druck oder Dotierung kann das Gittervolumen eines Kristalls verändert werden. In Selten-Erd-Verbindungen kann dieser Effekt einen großen Einfluss auf den Grundzustand des Systems haben. Während in Ce-Verbindungen durch das Komprimieren des Gitters ein magnetischer Zustand unterdrückt werden kann, verhalten sich Yb-Verbindungen als Elektron-Loch-Analogon zum Ce entgegengesetzt. Der magnetische Yb^{3+} -Zustand wird bei kleinerem Gittervolumen favorisiert und somit ein magnetischer Grundzustand stabilisiert. Dies führt zu einer Erhöhung der magnetischen Übergangstemperatur. Entsprechend wird in Yb-Systemen durch das Aufweiten des Gitters mittels geeigneter Dotierung die magnetische Ordnung unterdrückt.

Die am stöchiometrischen YbRh_2Si_2 durchgeführten Messungen unter hydrostatischem Druck ergeben das Druck-Temperatur-Phasendiagramm in Abb. 4.5. Die Néel-Temperatur T_N von 70 mK bei Normaldruck nimmt unter Druck wie erwartet zu. Außerdem wurde ab einem Druck von etwa 1 GPa sowohl in Widerstandsmessungen [97] als auch in der Magnetisierung $M(B)$ [92] eine zusätzliche Anomalie bei T_L beobachtet, die unterhalb von T_N auftritt.

Das Dotieren einer Probe führt immer zu stärkerer Unordnung im System, aber bei einer kleinen Menge an Fremdatomen kann dieser Effekt oft weitestgehend vernachlässigt werden. Somit erzeugt das Dotieren eines Systems mit größeren Fremdatomen zunächst eine Aufweitung des Gitters. In YbRh_2Si_2 wurde versucht, auf dem Si-Platz das zu Si isoelektrische, aber größere Ge zu substituieren. Dies gelang bis zu einer nominellen Konzentration von 5% Ge. Der tatsächliche Ge-Anteil lag laut Analysen bei 1-2%. In dieser Zusammensetzung wird die Übergangstemperatur zwar erniedrigt, das System befindet sich aber mit $T_N = 20$ mK weiterhin auf der magnetischen Seite des p - T -Phasendiagramms [89]. Unter Druck verhält sich die Verbindung wie das undotierte System, nur um eine Druckdifferenz von -0.2 GPa, die der Gitteraufweitung entspricht, verschoben [97]. Dies ist ebenfalls im Druck-Temperatur-Phasendiagramm in Abb. 4.5 dargestellt.

Es ist bisher nicht gelungen, einen höheren Ge-Gehalt zu erreichen, der das System durch Dotierung direkt zum QKP treiben würde. Eine stärkere Aufweitung des Gitters wurde stattdessen mittels La-Dotierung auf dem Yb-Platz erzielt. Dies führt zwar zu einer Verdünnung des magnetischen Moments, der Volumeneffekt ist für geringe La-Konzentrationen aber deutlich stärker [98]. Es hat sich gezeigt, dass auf diesem Wege Proben hergestellt werden konnten, die bei tiefen Temperaturen LFF-Verhalten zeigen [99]. Proben mit einem La-Gehalt von 10% lassen sich durch das Anlegen von hydrostatischem Druck in die magnetische Phase zwingen. Im Druck-Temperatur-Phasendiagramm ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit reinem YbRh_2Si_2 bei einer Verschiebung um etwa -0.8 GPa [100]. Allerdings treten hier verstärkt Unordnungseffekte auf, die in Widerstandsmessungen die Anomalie des Phasenübergangs soweit verbreitern, dass dieser erst in der Ableitung als Funktion der Temperatur detektiert

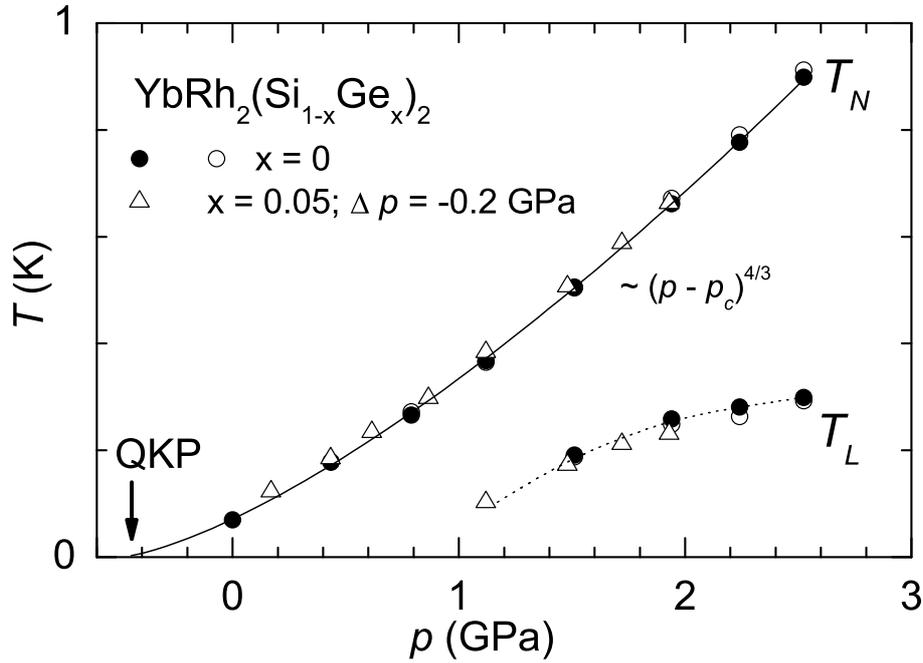


Abb. 4.5: Druck-Temperatur-Phasendiagramm von YbRh_2Si_2 und $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ erstellt aus Widerstandsmessungen. Dabei wurden die Daten der Ge-dotierten Probe um $\Delta p = -0.2$ GPa verschoben. Es sind zum einen die Übergangstemperaturen T_N eingezeichnet, an die sich eine Funktion proportional zu $(p - p_c)^{4/3}$ anpassen lässt (durchgezogene Linie). Zum anderen ergibt sich unter Druck eine zweite Skala unterhalb von T_N , die mit T_L benannt wurde. Ihre Punkte sind durch die gestrichelte Linie verbunden. Entnommen aus Ref. [97].

werden kann.

Eine andere Verbindung, die sich deutlich auf der LFF-Seite befindet, ist YbIr_2Si_2 . Druckmessungen an diesem System sollen zeigen, in wie weit YbIr_2Si_2 und YbRh_2Si_2 miteinander verglichen werden können, also ob im Wesentlichen das veränderte Gittervolumen eine Rolle spielt, oder ob zusätzliche Faktoren einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss haben.

Aus all diesen Ergebnissen und im Zusammenhang mit den Hall-Effekt-Daten im undotierten YbRh_2Si_2 ergibt sich eine neue Fragestellung. Welchen Effekt hat die Dotierung auf dem Rh-Platz mit kleinen Konzentrationen von Ir zur Gitteraufweitung bzw. von Co zur Komprimierung des Gitters auf das Phasendiagramm? Zum einen sollte der Einfluss auf die magnetische Ordnung untersucht werden. Zum anderen - motiviert durch Ergebnisse dieser Arbeit zum stöchiometrischen YbRh_2Si_2 - ist der Effekt auf die T^* -Linie von großem Interesse. Die Ergebnisse der Untersuchungen an dotierten Proben sind im Abschnitt 4.4 dargestellt.

4.2 Ergebnisse - Stöchiometrisches System

Seit der ersten Synthese im Jahre 1999 durch O. Trovarelli [101] wurde YbRh_2Si_2 sehr genau charakterisiert und die Probenpräparation deutlich verbessert. Der Restwiderstand ρ_0 konnte von anfangs $2\text{-}3\ \mu\Omega\text{cm}$ auf beinahe $0.5\ \mu\Omega\text{cm}$ gesenkt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Proben dieser neuesten Generation auf ihre Tieftemperatureigenschaften untersucht. Die Proben wurden von C. Krellner im Indium-Fluss gezüchtet. Details dazu werden in Ref. [102] veröffentlicht. In Tabelle 4.1 sind die Nummern für die in den jeweiligen Messungen verwendeten Proben aufgelistet.

Messmethode	Probennr.	Bemerkungen
Widerstand	63116_2	$\rho_0 = 0.55\ \mu\Omega\text{cm}$
Magnetostriktion	63114_4	$L = 2.49\ \text{mm}$
AC-Suszeptibilität	63112_3 63116_6	Indium-Einschlüsse würfelförmig, Kantenlänge je ca. $0.6\ \text{mm}$
dHvA	63116_6	s.o.

Tabelle 4.1: Probennummern der jeweils verwendeten Proben

4.2.1 Elektrischer Widerstand

An einem Einkristall wurde sowohl die Temperatur- als auch die Magnetfeldabhängigkeit des elektrischen Widerstands bei tiefen Temperaturen untersucht. Dies gibt zunächst Aufschluss über die Probenqualität, die Einfluss auf den Restwiderstand ρ_0 der Probe hat. Außerdem kann, im Vergleich zu bisherigen Messdaten, der Einfluss der Probenqualität auf den Widerstandsverlauf analysiert werden. Die Probe wurde so kontaktiert, dass der Stromfluss j senkrecht zur c -Richtung des Einkristalls gemessen wurde. Außerdem erfolgte der Probeneinbau im Kryostaten so, dass ein Magnetfeld entlang der Stromrichtung angelegt werden konnte.

Im Nullfeld kennzeichnet eine scharfe Anomalie im elektrischen Widerstand $\rho(T)$ den antiferromagnetischen Phasenübergang in YbRh_2Si_2 , siehe Abb. 4.6. Die Temperaturabhängigkeit ist oberhalb des Übergangs bei $T_N = 75\ \text{mK}$ weitestgehend linear, während innerhalb der antiferromagnetischen Phase T^2 -Verhalten auftritt. Die quadratische Extrapolation des Verlaufs unterhalb von T_N zu $T = 0$ ergibt einen Restwiderstand von $\rho_0 = 0.553\ \mu\Omega\text{cm}$. Dieser Wert beweist die sehr gute Probenqualität. Das Restwiderstandsverhältnis beträgt etwa 136, wobei ein Raumwiderstandswert $\rho_0 = 75\ \mu\Omega\text{cm}$ [23] verwendet wurde. Die Anomalie am Phasenübergang verschiebt sich mit zunehmendem Feld zu tieferen Temperaturen. Die entsprechenden Werte für T_N sind im B - T -Phasendiagramm in Abb. 4.7 **D** eingetragen. In Abb. 4.6 ist deutlich zu erkennen, dass der Phasenübergang am kritischen Feld $B_c = (0.05 \pm 0.003)\ \text{T}$ vollständig

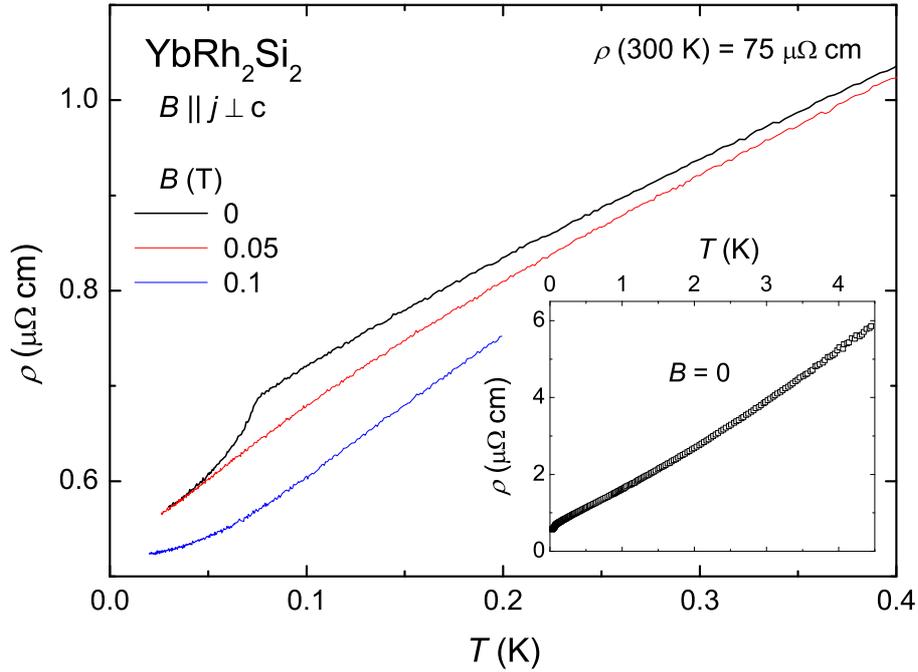


Abb. 4.6: Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands ρ für $B = 0$, B_c und $2B_c$, mit $B \parallel j \perp c$. Inset: $\rho(T)$ über dem gesamten gemessenen Tieftemperaturbereich ($B = 0$).

unterdrückt ist und der Widerstand als Funktion der Temperatur bei tiefen Temperaturen in etwa linear verläuft. Es tritt also im gemessenen Temperaturbereich bis hinab zu $T = 25$ mK kein LFF-Verhalten oberhalb des QKP auf. Im Gegensatz zum exakt linearen Verlauf über mehrere Dekaden in der Temperatur, wie er an Proben der ersten Generation mit einem Restwiderstand von $\rho_0 \approx 2 \mu\Omega\text{cm}$ gemessen wurde, zeigt eine Analyse der neuen Daten jedoch Abweichungen von diesem Verhalten, wie am Ende dieses Abschnitts in Abb. 4.8 gezeigt. Bemerkenswert ist außerdem, dass das kritische Feld um 0.01 T kleiner ist als in bisher untersuchten Proben [23]. Für Felder oberhalb des kritischen Feldes ist bei tiefen Temperaturen der Eintritt in das LFF-Regime zu beobachten. Der Temperaturverlauf des Widerstands geht hier ohne Anomalie von linearem zu quadratischem Verhalten über. Die durch quadratische Anpassung bestimmten Übergangstemperaturen T_{LFF} sind ebenfalls in Abb. 4.7 D eingetragen. Für $B = 0.1$ T ist die entsprechende Messkurve in Abb. 4.6 gezeigt.

Der longitudinale, isotherme Magnetwiderstand $\rho(B)$ zeigt unterhalb von $T_N = 75$ mK ein Maximum am kritischen Feld B_c der antiferromagnetischen Phase, wie in Abb. 4.7 A dargestellt. Für $B > B_c$ fällt der Magnetwiderstand ab, durchläuft einen Wendepunkt und steigt schließlich in höherem Feld wieder leicht an. Der Wendepunkt tritt auch in Messungen bei Temperaturen oberhalb der Ordnungstemperatur auf. Die Ableitung nach dem Feld ergibt am Wendepunkt ein Minimum, das bei tiefer Temperatur scharf ausgeprägt ist, siehe Abb. 4.7 B. Mit zunehmender Temperatur findet

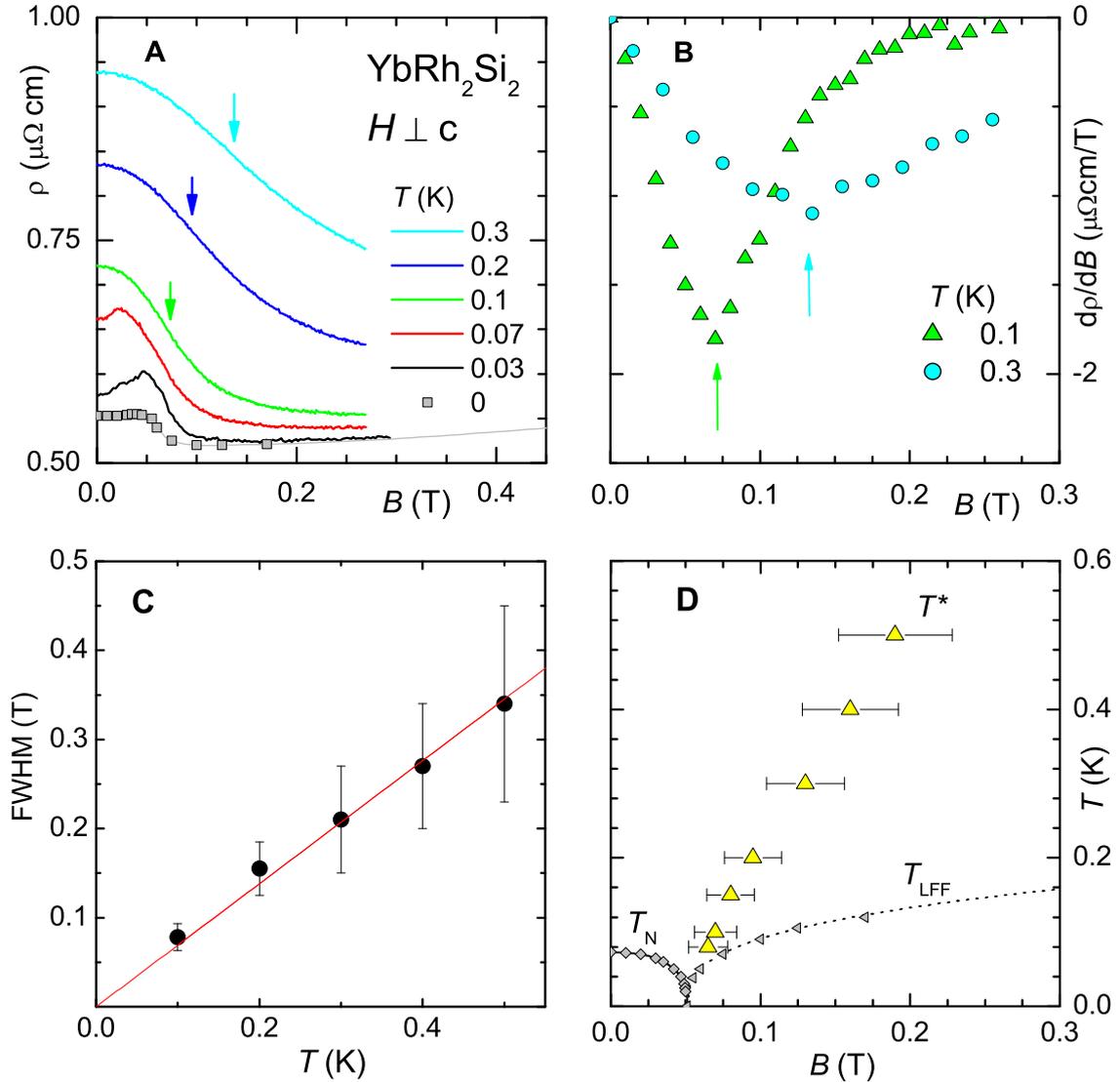


Abb. 4.7: **A** Longitudinaler Magnetwiderstand $\rho(B)$ von YbRh_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen sowohl unter- als auch oberhalb von T_N . Die Pfeile markieren die Wendepunkte für $T > T_N$. Zusätzlich sind die aus $\rho(T)$ durch quadratische Extrapolation bestimmten Werte des Restwiderstandes ρ_0 eingezeichnet. **B** zeigt die Ableitung nach dem Feld für zwei ausgewählte Kurven, wobei das Minimum dem Wendepunkt in $\rho(B)$ entspricht. **C** zeigt die Halbwertsbreiten (Full Width at Half Maximum - FWHM) dieser Minima für mehrere Temperaturen. Die durchgezogene Linie ergibt sich aus der Anpassung einer linearen Funktion an die Datenpunkte und geht für $T \rightarrow 0$ zu null. In **D** sind alle ermittelten Wendepunkte von $\rho(B)$ im B - T -Phasendiagramm eingetragen und als T^* bezeichnet. Außerdem sind die ebenfalls aus den Widerstandsmessungen bestimmten Übergänge in die antiferromagnetische Phase und in den LFF-Bereich gezeigt und zur Veranschaulichung mit Linien verbunden.

eine Verbreiterung statt, wie die Auftragung der Halbwertsbreiten von $d\rho(B)/dB$ in Abb. 4.7 **C** zeigt. Die Halbwertsbreite lässt sich als Funktion der Temperatur linear zu null extrapolieren. Dies entspräche einer sprunghaften Änderung des Magnetwiderstandes bei $T = 0$ am QKP. Eingezeichnet ins B - T -Phasendiagramm (Abb. 4.7 **D**) ergeben die Wendepunkte eine von T_N und T_{LFF} separierte Linie T^* im Phasendiagramm, die mit der aus den Hall-Effekt-Messungen bestimmten Crossover-Linie zu vergleichen ist, siehe dazu Abschnitt 4.18. Unterhalb von T_N wird der Wendepunkt durch die Überlagerung mit dem Phasenübergang verschoben, so dass eine Analyse hier nicht sinnvoll ist. Die durch $\rho(T)$ und $\rho(B)$ für diese Probe bestimmten Werte für T_N und T_{LFF} sind ebenfalls eingezeichnet. Die dazu eingezeichneten Linien dienen der Veranschaulichung der Übergänge und sind in den später folgenden Abbildungen des B - T -Phasendiagramms zur Orientierung jeweils wieder eingezeichnet.

Neben den Messkurven des Magnetwiderstandes für fünf verschiedene Temperaturen sind in Abb. 4.7 **A** die extrapolierten Werte für den Restwiderstand ρ_0 für $T = 0$ eingetragen. Sie wurden durch Extrapolation von $\rho(T)$ zu $T = 0$ ermittelt. Sowohl oberhalb als auch unterhalb des kritischen Feldes ist der Temperaturverlauf bei tiefsten Temperaturen quadratisch. Aus einer entsprechenden Anpassung ergibt sich jeweils der Restwiderstand. Im Gegensatz dazu bleibt der Widerstandsverlauf am kritischen Feld bis zur tiefsten gemessenen Temperatur linear. Somit ergäbe auch eine Extrapolation zu $T = 0$ einen deutlich kleineren Restwiderstand, so dass dieser Wert hier nicht verwendet wurde. In der Feldabhängigkeit des Restwiderstandes ist am QKP eine Stufe zu beobachten, jedoch kein Maximum bei B_c .

Die Messungen des temperaturabhängigen elektrischen Widerstands am kritischen Magnetfeld der antiferromagnetischen Phase haben gezeigt, dass in der untersuchten Probe Abweichungen von einem exakt linearen Verlauf auftreten. Aus diesem Grund werden nun die neuen Messungen mit älteren an Proben mit höherem Restwiderstand [101] verglichen und auf ihr Temperaturverhalten gemäß $\Delta\rho = \rho - \rho_0 \sim T^\varepsilon$ analysiert. Dazu ist in Abb. 4.8 der Exponent $\varepsilon = \frac{\partial \ln \Delta\rho}{\partial \ln T}$ über der Temperatur aufgetragen. Während die Daten aus Ref. [101] unterhalb von etwa 7 K nahezu konstant einen Exponenten von 1 aufweisen, zeigt sich, dass der Exponent in der neuen Probe bei $T \approx 4$ K mit $\varepsilon \approx 1.2$ ein Maximum erreicht. Bei tieferer Temperatur $T \approx 0.3$ K durchläuft der Exponent mit $\varepsilon \approx 0.8$ ein Minimum bis er schließlich bei tiefsten Temperaturen einen Wert nahe 1 erreicht. Da in dieser Auftragung die Wahl von ρ_0 entscheidend ist, wurde dieser Wert durch lineare Extrapolation zu $T = 0$ bestimmt und anschließend die Analyse für verschiedene ρ_0 -Werte innerhalb des gesamten Fehlerbereichs der Anpassung durchgeführt. Dabei hat sich gezeigt, dass sich nur bei tiefster Temperatur leichte Abweichungen des Exponenten vom Wert 1 ergeben. Der sonstige Kurvenverlauf bleibt jedoch unverändert. Neben dieser temperaturabhängigen Exponentenanalyse wurden bei tiefen Temperaturen Anpassungen von Potenzgesetzen vorgenommen. Für verschieden große Temperaturbereiche führt dies zu unterschiedlichen

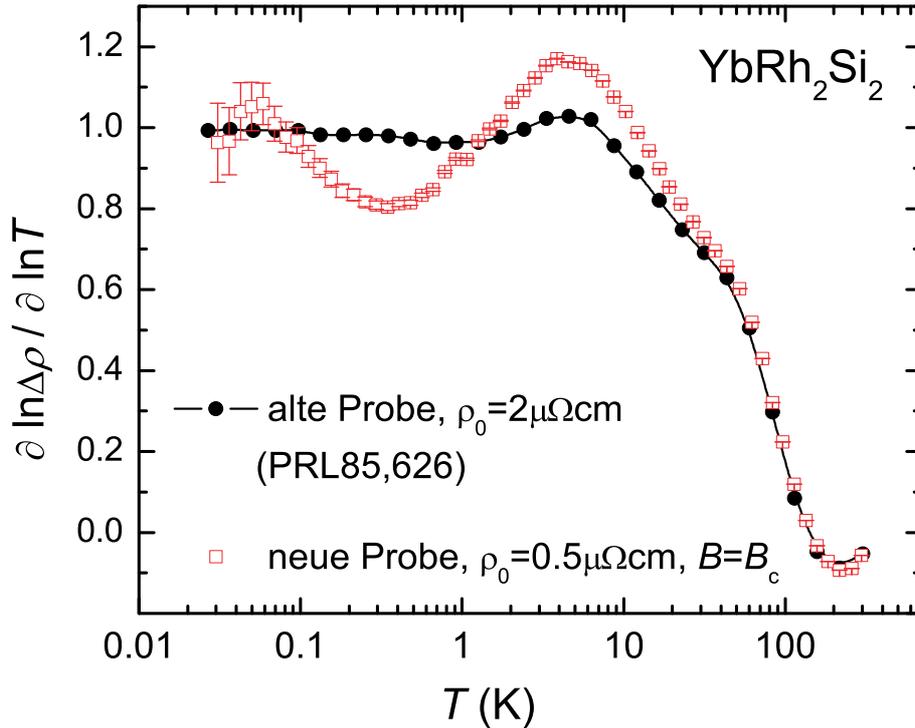


Abb. 4.8: Exponent ε der Temperaturabhängigkeit des Widerstands $\rho = \rho_0 + AT^\varepsilon$. Vergleich zweier Proben unterschiedlicher Qualität. Mit zunehmender Probenqualität (kleinerer Restwiderstand ρ_0) zeigen sich Abweichungen vom linearen Verlauf bei tiefen Temperaturen.

Exponenten. Werden nur die Daten unterhalb von 0.1 K für die Anpassung verwendet, ergibt sich ein Exponent von $\varepsilon = 1 \pm 0.01$. Eine Anpassung im Temperaturbereich bis 0.2 K liefert einen Exponenten $\varepsilon = 0.831 \pm 0.004$.

Der Verlauf der Exponentenauftragung zeigt Ähnlichkeiten zu quasi-klassischen Berechnungen für den quantenkritischen Bereich eines itineranten, antiferromagnetischen QKP in drei Dimensionen in den Ref. [103, 104]. Dort wurde die Abhängigkeit des Widerstandsexponenten von der Probenqualität analysiert. Das Wechselspiel von stark anisotroper Streuung auf Grund von Spinfluktuationen und isotroper Streuung an Störstellen führt demnach in einem weiten Temperaturbereich in Abhängigkeit von der mittleren freien Weglänge der Elektronen zu ungewöhnlichen Widerstandsexponenten. Es wird davon ausgegangen, dass es auf der Fermi-Fläche sogenannte „heiße“ und „kalte“ Bereiche gibt. Als „heiß“ werden solche Bereiche bezeichnet, die durch den antiferromagnetischen Ordnungsvektor \mathbf{Q} verbunden sind. Hier ist die Streuung an Spinfluktuationen am effektivsten. Die übrigen Bereiche der Fermi-Fläche, in denen LFF-Verhalten erwartet wird, werden als „kalt“ bezeichnet. In den Berechnungen wurde eine temperaturabhängige Verteilung der „heißen“ und „kalten“ Bereiche angenommen. Dies führt zu einem Bild, in dem der Exponent als Funktion der Tempe-

ratur für stark verunreinigte Proben bei tiefen Temperaturen direkt einen Wert von $3/2$ annimmt. Für eine Probe ohne Verunreinigungen steigt er auf einen Wert von 2, da hier wie bei einer elektrischen Parallelschaltung die Streuung an „heißen“ Bereichen durch normale Streuung in „kalten“ Bereichen kurzgeschlossen wird. Für Proben mittlerer Reinheit tritt bei abnehmender Temperatur zunächst ein Maximum auf, das mit abnehmendem Verunreinigungsgrad stärker ausgeprägt ist. Anschließend erreicht der Exponent bei tiefen Temperaturen Werte zwischen 1 und 1.5. Dieses Modell passt beispielsweise sehr gut zum beobachteten Widerstandsverhalten in sehr sauberen $CePd_2Si_2$ -Einkristallen, dessen Temperaturabhängigkeit sich bei tiefen Temperaturen proportional zu $T^{1.2}$ verhält [105]. Da $YbRh_2Si_2$ generell nicht im Rahmen des Hertz-Millis-Szenarios für itinerante 3D-QKPe erklärt werden kann, ist die hier beobachtete Abweichung von den Tieftemperaturwerten des Exponenten nicht verwunderlich.

Unter der Annahme temperaturunabhängiger Anteile „heißer“ und „kalter“ Fermi-Flächen und einem beim erwarteten Sprung des Fermi-Volumens am QKP unbeteiligten Teil der Fermi-Fläche, erscheint eine Anpassung des Modells an die in $YbRh_2Si_2$ beobachteten Exponenten möglich [106]. Zumindest deutet die beobachtete Restwiderstandsabhängigkeit des temperaturabhängigen elektrischen Widerstands auf eine Anisotropie der quantenkritischen Streurate hin.

4.2.2 Magnetostriktion

Motiviert durch den Hall-Effekt und die Magnetisierung in $YbRh_2Si_2$ wurden Messungen der Magnetostriktion an einem $YbRh_2Si_2$ -Einkristall durchgeführt. Dazu wurde die Probe mit der Probennummer 63114.4 in das hochauflösende Dilatometer eingebaut. Die Längenänderung wurde entlang der [110]-Richtung, also innerhalb der tetragonalen ab-Ebene, bestimmt. Das äußere Magnetfeld wurde in derselben Richtung angelegt, also senkrecht zur c -Richtung des Kristalls.

Die Messungen wurden im Wesentlichen in dem für den antiferromagnetischen Phasenübergang und den Übergang bei T^* relevanten Feldbereich durchgeführt. Zusätzlich erfolgten Messungen bis zu $B = 18$ T, um das Hochfeldverhalten zu untersuchen, da die Magnetisierung von $YbRh_2Si_2$ bei etwa 10 T ein Abflachen zeigt, das auf die Unterdrückung des Kondo-Effekts hindeutet [92].

Die in kleinen Magnetfeldern erzielten Ergebnisse lassen sich in zwei Bereiche unterteilen. Der eine Bereich besteht aus Messungen, die bei Temperaturen unterhalb der Néel-Temperatur T_N durchgeführt wurden, so dass der antiferromagnetische Phasenübergang zu beobachten ist, der andere Bereich aus Messungen oberhalb von T_N .

Der Magnetostruktionskoeffizient λ wurde durch die Berechnung der Ableitung der Längenänderung ΔL nach dem Feld über Intervalle von 5-20 mT ermittelt. In Abb. 4.9 sind die relative Längenänderung $\Delta L/L$ und der Magnetostruktionskoeffizient λ für $T \leq T_N$ gezeigt. Die Unterdrückung der antiferromagnetischen Ordnung erzeugt ein Maximum in $\Delta L/L$ und führt somit zu einer sprunghaften Änderung von λ bei

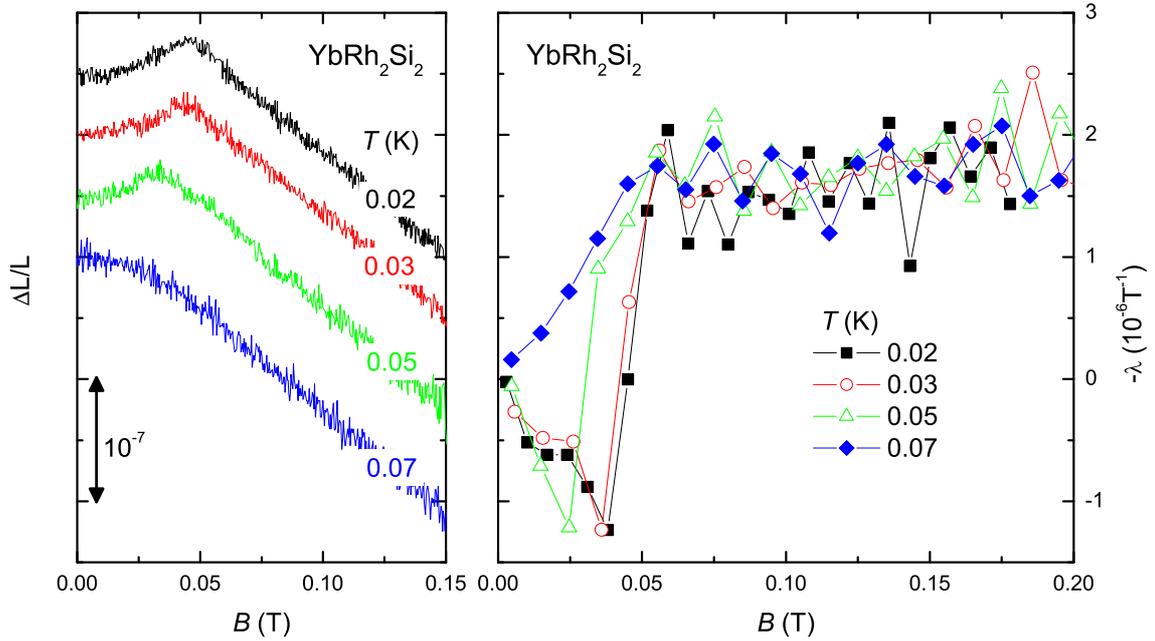


Abb. 4.9: Relative Längenänderung $\Delta L/L$ (links) entlang der $[110]$ -Richtung sowie der jeweils daraus bestimmte lineare Magnetostruktionskoeffizient λ (rechts) von YbRh_2Si_2 aufgetragen über B für $T \leq T_N$. Die Maxima in $\Delta L/L$ entsprechen dem kritischen Feld B_c der antiferromagnetischen Phase.

$B = B_c$, wie es für einen Phasenübergang zweiter Ordnung zu erwarten ist. Zusätzlich ist in λ eine Steigungsänderung der Kurven oberhalb von B_c zu beobachten. Messungen oberhalb von T_N zeigen, dass diese Signatur auch ohne das vorherige Auftreten eines Phasenübergangs beobachtet wird, siehe Abb. 4.10 links. Es ist zu beobachten, dass sich diese Anomalie mit zunehmender Temperatur verbreitert und zu höheren Magnetfeldern verschiebt. Für gewöhnliche Metalle wird eine lineare Abhängigkeit der Magnetostraktion vom angelegten äußeren Magnetfeld beobachtet [107]. Somit kann das Abknicken in der Magnetostraktion in YbRh_2Si_2 als Anzeichen eines Wechsels zwischen zwei verschiedenen metallischen Zuständen interpretiert werden.

Zur Bestimmung der Position dieser Anomalien, wurde das Integral der empirischen Crossover-Funktion Gl. (4.1), das bereits für die Ergebnisse der Hall-Messungen verwendet wurde [12], an die Messdaten angepasst. Dabei ist B_0 das Feld, bei dem die Magnetostraktion eine drastische Steigungsänderung zeigt. Die Positionen von $B_0(T)$ ergeben im Phasendiagramm ebenfalls eine Linie T^* , wie rechts in Abb. 4.10 gezeigt ist. Auffällig ist die Ähnlichkeit zu den Ergebnissen der Magnetwiderstandsmessungen. Die Lage der Anomalien bei B_0 im Phasendiagramm stimmt, wie später gezeigt wird, gut überein. Das gleiche gilt auch für die entsprechenden Anomalien in Hall-Effekt, Magnetisierung und Suszeptibilität.

In Yb-Systemen ist der Ionenradius der magnetischen Yb^{3+} - kleiner als der, der un-

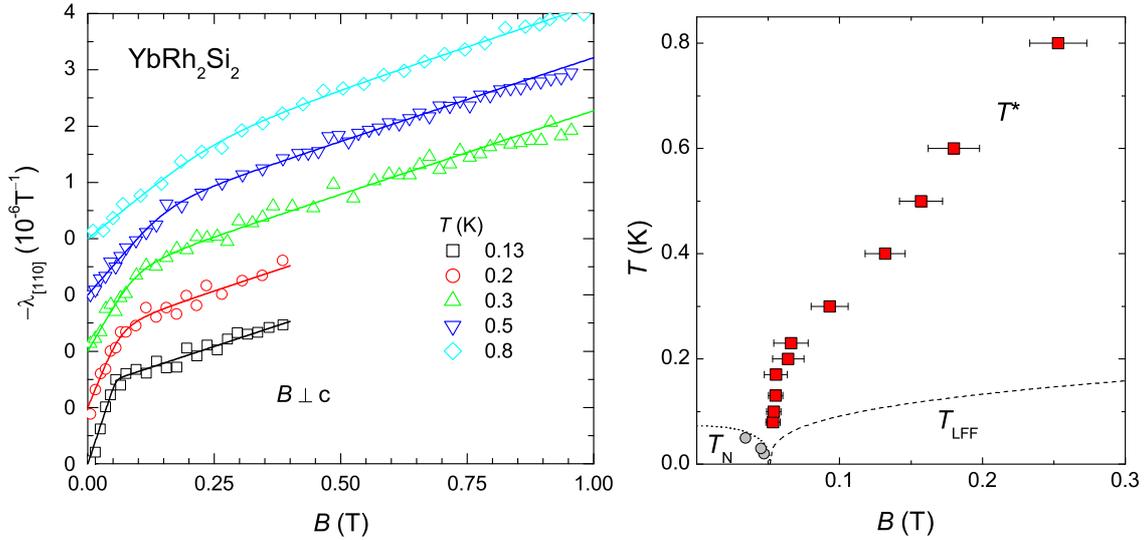


Abb. 4.10: Linearer Magnetostruktionskoeffizient λ von YbRh_2Si_2 aufgetragen über dem Magnetfeld B für $T > T_N$ (links). Die Linien ergeben sich aus der Anpassung einer Crossover-Funktion zur Bestimmung eines Crossover-Feldes B_0 . Rechts sind diese Werte im B - T -Phasendiagramm eingetragen. Zusätzlich sind als Linien die Grenzen der antiferromagnetischen Phase und des LFF-Bereichs aus Abb. 4.7 eingezeichnet, sowie die Maxima bei B_c in $\Delta L/L$ aus Abb. 4.9.

magnetischen Yb^{2+} -Konfiguration. Diese Tatsache lässt erwarten, dass bei zunehmender magnetischer Polarisation das Gittervolumen abnimmt, wie es z. B. in $\text{YbCu}_{5-x}\text{Ag}_x$ beobachtet wurde [108]. Abb. 4.11 zeigt, dass die Länge wie erwartet mit steigendem Feld abnimmt. Bei einem Feld von $B_p = (10 \pm 0.2)$ T ist eine drastische Steigungsänderung zu beobachten, die mit einer Stufe im Magnetostruktionskoeffizienten λ korrespondiert. Unterhalb von B_p steigt der Absolutwert $|\lambda(B)|$ mit zunehmendem Feld bis er bei B_p plötzlich abfällt und bei einem konstanten Wert bleibt. Dieser Effekt zeigt zwischen 20 mK und 800 mK bis auf eine leichte thermische Verbreiterung der Stufe keinerlei Temperaturabhängigkeit.

Die Magnetfeldabhängigkeit des linearen Magnetostruktionskoeffizienten deutet auf eine leichte Zunahme der Yb-Valenz hin. In hohen Magnetfeldern oberhalb von 10 T scheint die Zeeman-Energie $g\mu_B B_p$ mit $g = 3.7 \pm 0.4$ zur Kondo-Energie $k_B T_K$ vergleichbar große Werte anzunehmen [90], so dass die Polarisation der $4f$ -Momente die physikalischen Eigenschaften dominiert. Dieses Ergebnis steht in Übereinstimmung zur Magnetisierung $M(B)$, in der ein Knick bei 10 T hin zu einem schwächeren Anstieg beobachtet wurde (vgl. Abb. 4.3) [92]. Darauf deutet außerdem eine deutliche Abnahme des Sommerfeld- sowie des A-Koeffizienten für Magnetfelder $B > B_p$ hin, die eine Unterdrückung des Schwere-Fermionen-Verhaltens nahe legen [90].

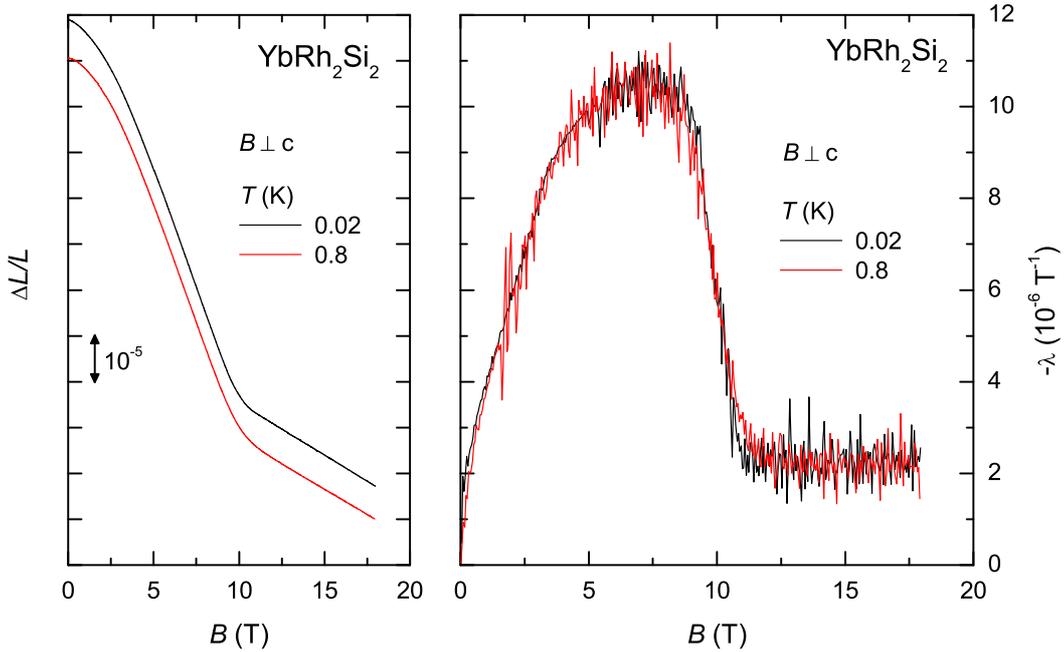


Abb. 4.11: Relative Längenänderung $\Delta L/L$ (links) und linearer Magnetostruktionskoeffizient $-\lambda$ (rechts) von YbRh₂Si₂ als Funktion von B gemessen bis 18 T bei 0.02 K und 0.8 K. Bei $B_p = (10 \pm 0.2)$ T ergibt sich eine Stufe in λ .

4.2.3 Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität

Wie im linken Teilbild von Abb. 4.3 dargestellt ist, konnte gezeigt werden, dass im Realteil der temperaturabhängigen Wechselfeldsuszeptibilität $\chi_{AC}(T)$ zum Knick in der Magnetisierung korrespondierende Maxima auftreten [23]. Diese breiten Maxima im Realteil der temperaturabhängigen Wechselfeldsuszeptibilität $\chi_{AC}(T)$ wurden an zwei Proben der neuen Generation (siehe Tabelle 4.1) vermessen. Sie stimmen mit den Maxima in Proben schlechterer Qualität überein [23, 101] und sind in Abb. 4.12 A im Phasendiagramm eingetragen. Des Weiteren wurde an YbRh₂Si₂ erstmals $\chi_{AC}(B)$, also die isotherme Wechselfeldsuszeptibilität als Funktion eines äußeren Magnetfeldes, gemessen. Da im gesamten beobachteten Temperatur- und Feldbereich der Imaginärteil $\chi'' = 0$ ist, entspricht der Realteil $\chi'(B)$ der Ableitung der Magnetisierung $M(B)$ nach dem Feld. Im Gegensatz zur statischen Magnetisierung, die bei tiefen Temperaturen mit einem kapazitiven Magnetometer mit Gradientenfeld gemessen wird, lässt sich auf diese Weise der antiferromagnetische Phasenübergang sehr gut auflösen. Für drei verschiedene Temperaturen sind die Daten in Abb. 4.12 B gezeigt. Bei der tiefsten, gemessenen Temperatur von 20 mK ergibt sich ein scharfes Maximum am kritischen Feld B_c der antiferromagnetischen Phase. Mit zunehmender Temperatur verbreitert sich das Maximum und verschwindet oberhalb der Néel-Temperatur T_N komplett. Es bleibt allerdings ein Abfallen der Suszeptibilität mit zunehmendem Feld erhalten, das zu einem

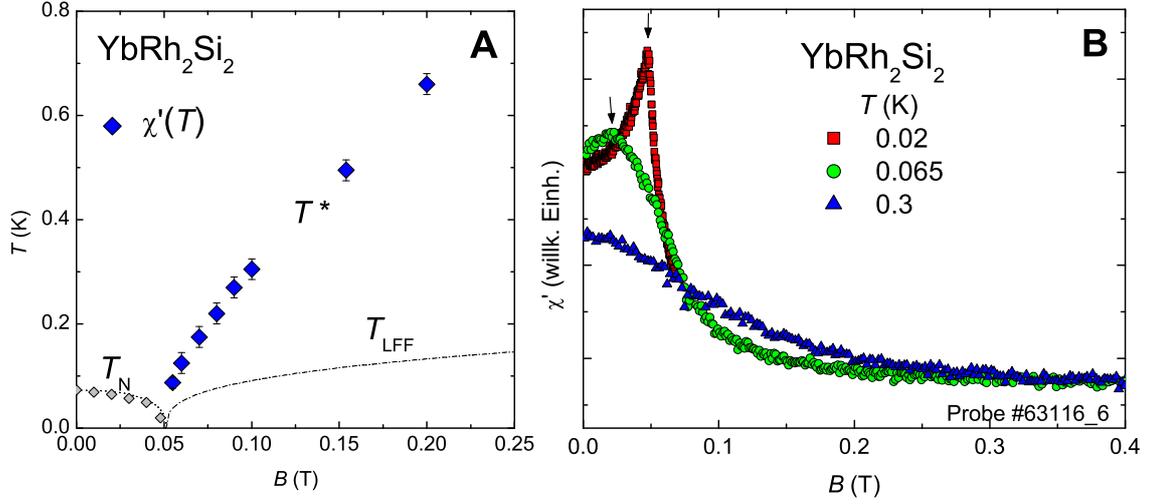


Abb. 4.12: **A** B - T -Phasendiagramm mit den Positionen der breiten Maxima aus $\chi'(T)$. Außerdem sind die Grenzen der antiferromagnetischen Phase, mit den aus χ' bestimmten Übergängen (graue Rauten), und des LFF-Bereichs eingezeichnet. **B** Isotherme Suszeptibilität $\chi'(B)$. Die Pfeile kennzeichnen jeweils das kritische Feld der antiferromagnetischen Phase.

Minimum in der Feldableitung führt. Dieser Effekt verbreitert sich ebenfalls und ergibt sich logischerweise aus der beobachteten Steigungsänderung in der Magnetisierung $M(B)$, da hier $\chi'(B) = dM/dB$ gilt.

Mit Hilfe des für die dHvA-Messungen entwickelten Probenhalters mit eingebautem Rotator war es zudem möglich, die Winkelabhängigkeit des kritischen Feldes B_c zu analysieren. Das scharfe Maximum am kritischen Feld B_c lässt sich gut detektieren, auch wenn Modulations- und Aufnehmerspule nicht mehr parallel stehen und somit das Signal schwächer wird. Von Interesse ist hier der funktionale Verlauf zwischen den beiden Werten für $B \perp c$ und $B \parallel c$. In Abb. 4.13 sind die Maxima in $\chi'(B)$ als Funktion des Winkels dargestellt.

Entsprechend dem Kramers-Theorem, besitzt YbRh_2Si_2 einen Duplett-Grundzustand, da Yb eine ungerade Anzahl von Elektronen aufweist. Im Magnetfeld wird dieser entartete Zustand aufgespalten. Für einen isolierten Duplett-Zustand kann ein effektiver Spin $\tilde{S} = \frac{1}{2}$ eingeführt werden, der es ermöglicht das System zu beschreiben [109]. Hierzu lässt sich ein effektiver Spin-Hamilton-Operator aufstellen:

$$\mathcal{H} = \mu_B(\mathbf{B} \mathbf{g} \tilde{\mathbf{S}}). \quad (4.2)$$

\mathbf{B} ist der Magnetfeldvektor, \mathbf{g} der Tensor des Landé-Faktors, der die Anisotropie des Kristalls berücksichtigt. Da es sich bei YbRh_2Si_2 um ein System mit tetragonaler Symmetrie handelt, gilt für den Landé-Faktor:

$$g = \sqrt{g_{\parallel}^2 \cos^2 \theta + g_{\perp}^2 \sin^2 \theta}, \quad (4.3)$$

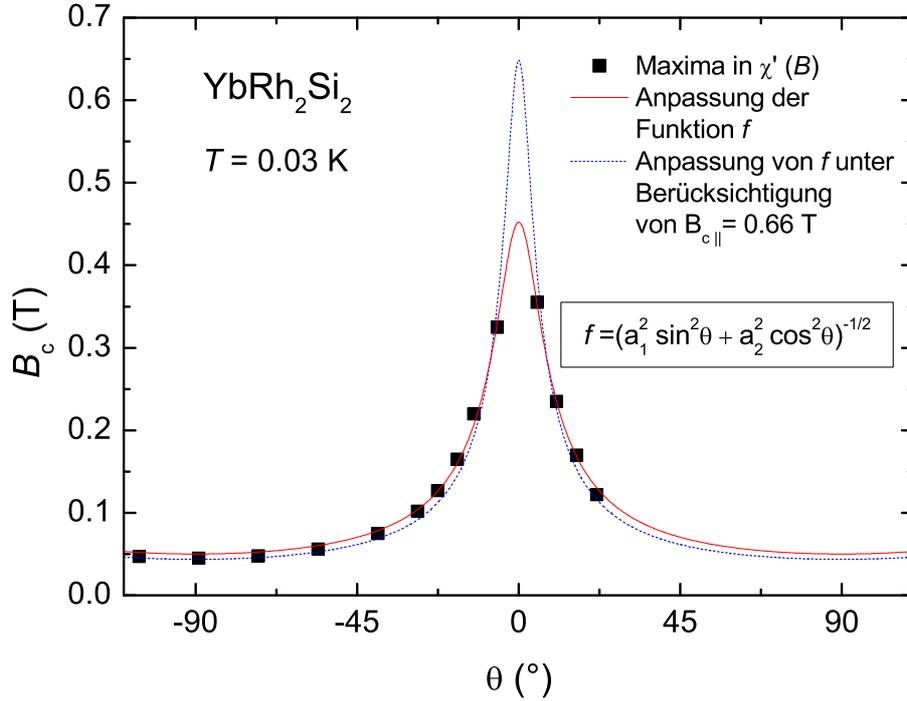


Abb. 4.13: Winkelabhängigkeit des kritischen Feldes B_c in YbRh₂Si₂. Dabei entspricht ein Winkel von $\pm 90^\circ$ einem äußeren statischen Feld senkrecht zur c -Richtung des Kristalls ($B \perp c$) und 0° der Parallelstellung ($B \parallel c$). Zur Anpassung der Funktion f wurden einmal die gemessenen Datenpunkte verwendet (durchgezogene Linie). Die zweite Anpassung (gestrichelte Linie) berücksichtigt zusätzlich einen Punkt $B_c = 0.66$ [87] für $B \parallel c$.

wobei θ der Winkel zwischen dem angelegten Feld und der c -Richtung des Kristalls ist [109].

Entsprechend lässt sich die Anisotropie des Landé-Faktors über das Resonanzfeld B_{res} der Elektronen-Spin-Resonanz (ESR) bestimmen, für die die Resonanzbedingung $\hbar\omega = \mu_B g B_{res}$ gilt. Der Landé-Faktor g ist somit proportional zu $(B_{res})^{-1}$. In YbRh₂Si₂ wurden so für die beiden Koeffizienten die Werte $g_{\parallel} = 0.17 \pm 0.07$ und $g_{\perp} = 3.561 \pm 0.006$ ermittelt [93]. Das Verhältnis beträgt somit $g_{\perp}/g_{\parallel} \approx 21$.

In YbRh₂Si₂ ist das kritische Feld B_c entlang der c -Richtung deutlich größer als entlang der Basalebene. Somit muss entlang der magnetisch härteren c -Richtung deutlich mehr Energie aufgewendet werden, um die antiferromagnetische Ordnung aufzubrechen. In Abb. 4.13 ist gezeigt, dass die Winkelabhängigkeit von B_c ebenfalls der Anisotropie des Landé-Faktors entspricht mit $B_c \sim 1/g$. Es wurde eine Funktion f angepasst, für die $f \sim 1/g$ gilt. Somit sind die Koeffizienten a_1 und a_2 von f proportional zu den Koeffizienten g_{\perp} und g_{\parallel} von g . Die Anpassung von f an die gemessenen kritischen Felder liefert die Werte $a_1 = (20.0 \pm 0.4) \text{ T}^{-1}$ und $a_2 = (2.21 \pm 0.06) \text{ T}^{-1}$. Das Verhältnis ergibt $a_1/a_2 = g_{\perp}/g_{\parallel} \approx 9$. Es fällt allerdings auf, dass die angepasste

Funktion für $B||c$ lediglich einen Wert von $B_c = 0.45$ T erreicht. Mit dem verwendeten Probenhalter konnte das kritische Feld entlang der c -Richtung nicht bestimmt werden, weil in diesem Fall die Aufnehmerspulen senkrecht zur Modulationsspule stehen und somit kein Signal induziert werden kann. Aus früheren Widerstandsmessungen wurde jedoch parallel zur c -Richtung ein kritisches Feld $B_c = 0.66$ T ermittelt [87]. Wird dieser Wert bei der Anpassung berücksichtigt, ergeben sich die Koeffizienten $a_1 = (22.9 \pm 0.8) \text{ T}^{-1}$ und $a_2 = (1.54 \pm 0.04) \text{ T}^{-1}$ und damit ein Verhältnis von 14.9. Der höhere Wert entspricht einer stärkeren Anisotropie, ist jedoch trotzdem kleiner als das aus der ESR bestimmte Verhältnis von 21. Da sich das kritische Feld senkrecht zur c -Richtung mit zunehmender Probenqualität verändert hat, ist nicht auszuschließen, dass dieser Effekt auch parallel zu c auftritt, so dass sich die Stärke der Anisotropie verändert haben könnte. Zudem zeigen neuere Messungen der ESR an verschiedenen Proben eine Probenabhängigkeit der Anisotropie [110]. Außerdem wurde mit der ESR die Winkelabhängigkeit bei $T = 5$ K untersucht, während die Wechselfeldsuszeptibilität hier bei 30 mK gemessen wurde. Dies könnte auf eine Abnahme der Anisotropie des g -Faktors zu tiefen Temperaturen hindeuten.

de Haas-van Alphen-Effekt

Mit demselben Probenhalter, der zur Bestimmung der Winkelabhängigkeit des kritischen Feldes B_c verwendet wurde, konnte der dHvA-Effekt in $YbRh_2Si_2$ beobachtet werden. Dazu wurde die Wechselfeldsuszeptibilität als Funktion des Magnetfeldes bis zu 20 T gemessen. Das Modulationsfeld wurde mit einer Amplitude von bis zu 5.4 mT betrieben, wobei eine Frequenz unterhalb von 20 Hz gewählt wurde. Größere Wechselfelder führten zur Aufheizung der Probe. Die Messungen wurden an der Probe 63116.6 durchgeführt. Sie stammt aus derselben Charge wie die für die Widerstandsmessungen verwendete Probe, die ein Restwiderstandsverhältnis von etwa 140 aufweist. Somit ist davon auszugehen, dass die hier verwendete Probe von vergleichbar guter Qualität ist.

Entlang der [110]-Richtung des Kristalls konnten auf diese Weise oberhalb von 13 T dHvA-Oszillationen beobachtet werden. In Abb. 4.14 ist ein dHvA-Spektrum gezeigt, das aus Messdaten zwischen 15.5 und 17.4 T bei einer Temperatur von $T = 40$ mK bestimmt wurde. Bei $F = 13.9$ kT tritt ein scharfer Peak auf. Bei dieser dHvA-Frequenz wurden unabhängig von den Parametern des Modulationsfeldes die stärksten Oszillationen beobachtet. Zwei weitere Peaks, deren Amplituden jedoch deutlich kleiner sind, befinden sich bei 2.6 kT und 5.7 kT. Ihre Amplituden konnten durch Anlegen eines größeren Wechselfeldes soweit erhöht werden, dass ihre Positionen genau bestimmt werden konnten, allerdings nicht weit genug, um weitere Analysen durchzuführen.

Die in den Aufnehmerspulen induzierte Spannung ist proportional zur zeitabhängigen Magnetisierung $M(t)$, siehe Abschnitt 2.4. Deren Stärke wirkt sich direkt auf die dHvA-Amplitude aus. In der Reihenentwicklung von $M(t)$ treten die Bessel-Funktionen erster Art $J_k(\lambda)$ als Faktor auf, wobei k die Harmonischen der verwendeten Wechsel-

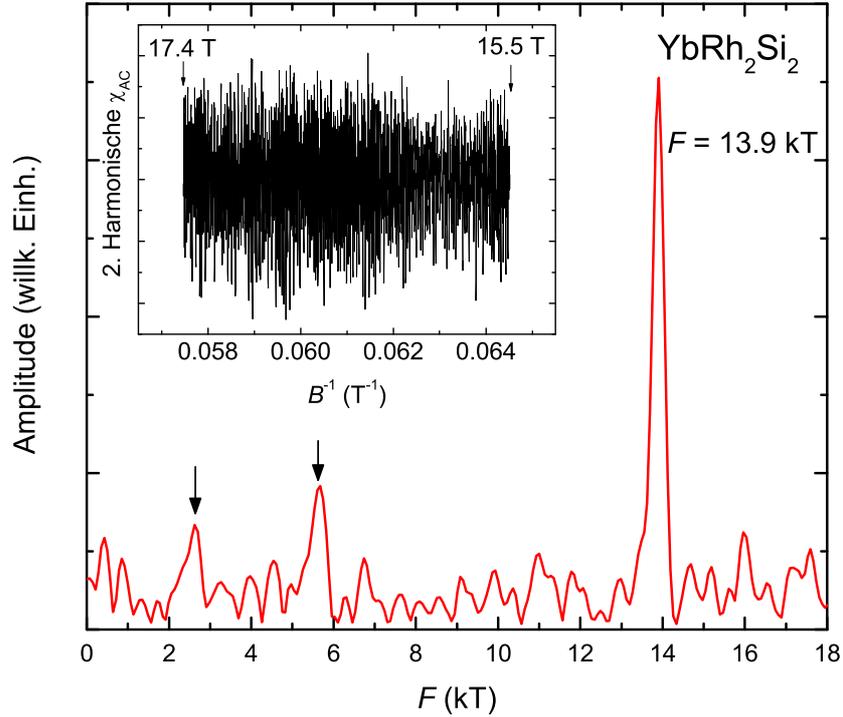


Abb. 4.14: dHvA-Spektrum nach Fourier-Transformation der 2. Harmonischen der Wechselfeldsuszeptibilität als Funktion von $1/B$ (siehe Inset). Aufgetragen ist die Amplitude über der dHvA-Frequenz F . Gemessen wurde in einem Wechselfeld mit $b_{ac} = 3.2 \text{ mT}$ und $\nu = 19.077 \text{ Hz}$. Die Proben temperatur lag bei 40 mK . Die stärkste Amplitude liegt bei der Frequenz $F = 13.9 \text{ kT}$. Zwei weitere, weitaus schwächere dHvA-Peaks sind bei 2.6 und 5.7 kT durch Pfeile gekennzeichnet.

feldfrequenz kennzeichnet. Außerdem gilt

$$\lambda = \frac{2\pi F b_{ac}}{B^2}. \quad (4.4)$$

Diese Größe ist durch Anpassung der Wechselfeldamplitude b_{ac} so zu wählen, dass die Bessel-Funktion $J_k(\lambda)$ bei gegebener Feldstärke B des statischen Feldes und der zu beobachtenden dHvA-Frequenz F einen möglichst großen Wert annimmt. Im ungünstigsten Fall würde eine Nullstelle in der Bessel-Funktion getroffen, was eine Unterdrückung der Oszillationen bedeutet. In YbRh_2Si_2 wurde die 2. Harmonische der Modulationsfrequenz mit dem Lock-In-Verstärker detektiert, um das Hintergrundsignal des Probenhalters zu unterdrücken und nur den oszillatorischen Anteil der Suszeptibilität aufzunehmen. Auf Grund von anderen Dämpfungsfaktoren, die später diskutiert werden, konnten Oszillationen nur oberhalb von 13 T beobachtet werden. Die Wechselfeldamplitude b_{ac} konnte maximal auf 5.4 mT erhöht werden. Unter diesen Bedingungen ergeben sich solche Werte für λ , dass $J_2(\lambda)$ im Bereich des Anstiegs vor dem ersten Maximum der Bessel-Funktion liegt. Somit ist klar, dass höhere dHvA-Frequenzen im

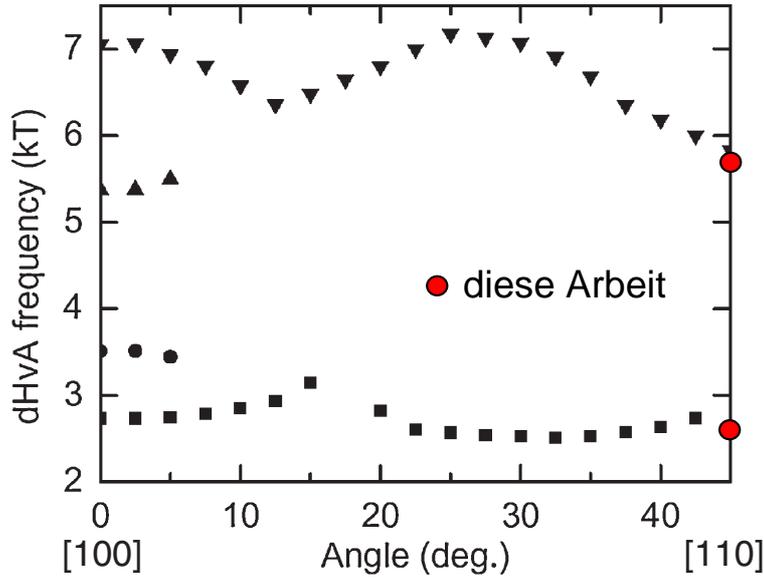


Abb. 4.15: Winkelabhängigkeit der dHvA-Frequenzen. Der Winkel 0° entspricht der [100]-Richtung, 45° der [110]-Richtung. Bild entnommen aus Ref. [111] und um eigene Daten ergänzt.

betrachteten Bereich, bei ansonsten gleichen Parametern, stärker ausgeprägt sind als niedrige.

Von anderen Gruppen wurden ebenfalls dHvA-Oszillationen in YbRh_2Si_2 gefunden [111,112]. Entlang der [110]-Richtung wurden unterhalb von 10 kT ähnliche Frequenzen beobachtet [111], wie die beiden hier gezeigten, siehe Abb. 4.15. Keiner der anderen Gruppen ist es jedoch bisher gelungen, eine dHvA-Frequenz oberhalb von 10 kT zu messen. Dies könnte zum einen an der von Knebel et al. [111] verwendeten Torque-Methode liegen, die für höhere dHvA-Frequenzen weniger empfindlich ist. Zum anderen könnte auch die Probenqualität von Bedeutung sein, da diese direkten Einfluss auf die mittlere freie Weglänge der Elektronen hat. Diese wiederum ist umso relevanter je größer die zu beobachtende dHvA-Frequenz F ist, weil F gemäß der Onsager-Relation direkt proportional zum Extremalquerschnitt der Fermi-Fläche ist. Die Beobachtung hoher dHvA-Frequenzen setzt also eine große mittlere freie Weglänge voraus. Rourke et al. [112] geben für ihre Probe ein Restwiderstandsverhältnis von 100 an.

Es wurden bereits Berechnungen der Bandstruktur mit dem Verfahren der lokalen Dichte-Approximation (LDA) durchgeführt, mit deren Hilfe dHvA-Frequenzen für YbRh_2Si_2 theoretisch bestimmt wurden [111,112]. Dazu wurden verschiedene Erweiterungen der LDA verwendet.

Unabhängig davon wurden von G. Zwirgagl renormierte Bandstrukturrechnungen für YbRh_2Si_2 durchgeführt, aus denen ebenfalls die Fermi-Flächen bestimmt wurden. Das verwendete Verfahren ist detailliert in Ref. [2] beschrieben. Bandstrukturrech-

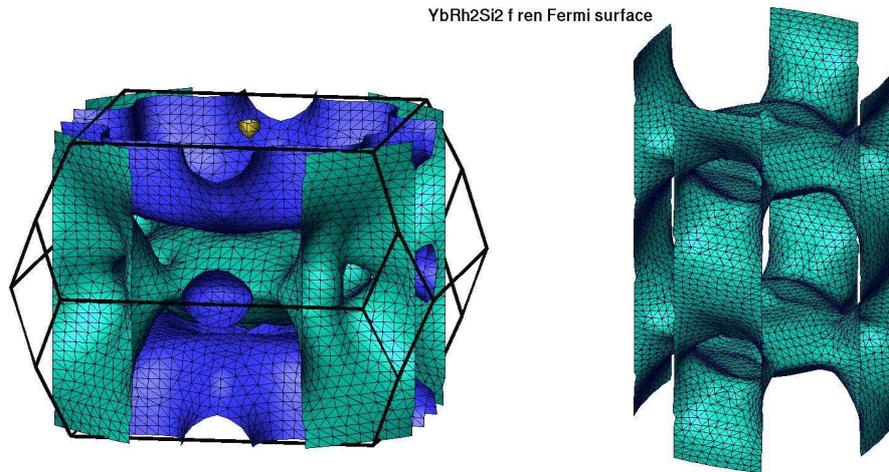


Abb. 4.16: Links: Durch renormierte Bandstrukturrechnungen bestimmte Fermi-Fläche von YbRh_2Si_2 [113] innerhalb der Brillouin-Zone. Rechts: Darstellung der mehrfach verbundenen Fermi-Fläche über zwei Brillouin-Zonen. Im Inneren dieser Fermi-Fläche gibt es einen Querschnitt entlang 110, für den die Berechnungen eine dHvA-Frequenz von etwa 13 kT ergeben. Entnommen aus Ref. [113].

nungen für Systeme mit f -Elektronen gelten auf Grund der starken Korrelationen als besonders kompliziert. Die renormierte Bandstrukturrechnung berücksichtigt, dass die in Standard-Bandstrukturrechnungen verwendete LDA die f -Bänder zu breit und ihren Abstand zur Fermi-Energie zu groß berechnet. Diese Parameter werden daher im Anschluss an die LDA mit Hilfe von aus Experimenten bekannten Größen wie dem Sommerfeld-Koeffizienten der spezifischen Wärme renormiert. Diese Methode hat sich beispielsweise bei der theoretischen Beschreibung des Systems CeCu_2Si_2 bewährt [114]. Die renormierte Bandstrukturrechnung an YbRh_2Si_2 liefert die links in Abb. 4.16 innerhalb der Brillouin-Zone gezeigten Fermi-Flächen. Die mehrfach verbundene (grüne) Fermi-Fläche, die rechts über zwei Brillouin-Zonen dargestellt ist, enthält Quasiteilchen mit schweren Massen und weist entlang der 110-Richtung einen dHvA-Querschnitt auf, der sich im Inneren des sich ergebenden „Gerüsts“ befindet. Die dazugehörige dHvA-Frequenz wurde mit etwa 13 kT berechnet [113]. Dieses Ergebnis steht in relativ guter Übereinstimmung zu der experimentell gefundenen dHvA-Frequenz bei 13.9 kT. Dies kann als Indiz dafür angesehen werden, dass die f -Elektronen in YbRh_2Si_2 in Feldern oberhalb von B_0 , also auf der rechten Seite von $T^*(B)$ im Phasendiagramm, nicht vollständig lokalisiert sind, sondern zur Fermi-Fläche beitragen. Allerdings ist noch zu berücksichtigen, in wie weit die berechneten dHvA-Frequenzen magnetfeldabhängig sind, da das Kristallfeld nicht-trivial vom Magnetfeld abhängt. Über diese renormierte Bandstrukturrechnung lässt sich auch das magnetische Anregungsspektrum, das durch inelastische Neutronenstreuung ermittelt wurde [88], qualitativ beschreiben [113].

Unabhängig von der Messmethode werden die dHvA-Amplituden einer Probe durch

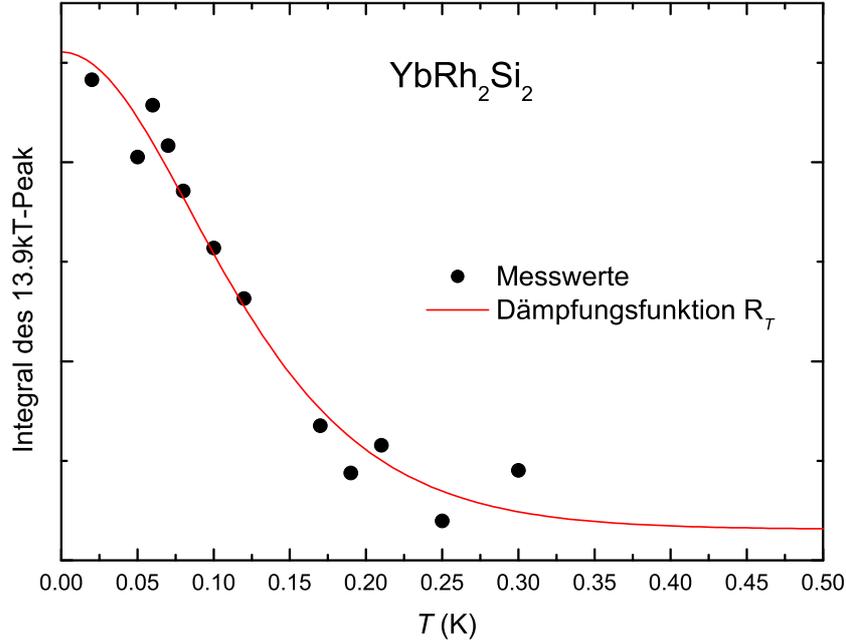


Abb. 4.17: Dämpfung der dHvA-Amplitude als Funktion der Temperatur T . Aufgetragen ist das Integral über den 13.9 kT-dHvA-Peak in einem festen Frequenz-Bereich als Funktion der Temperatur T . Die durchgezogene Linie ist die Anpassung der Dämpfungsfunktion R_T (siehe Text) an die Datenpunkte mit $B_{\text{mittel}} = 16.395$ T.

mehrere Faktoren gedämpft. Dies ist in der Lifshitz-Kosevich-Formel berücksichtigt, die den oszillatorischen Anteil der Magnetisierung beschreibt [26]. Eine wesentliche Rolle spielt dabei die Temperatur. Je höher die Temperatur ist, desto stärker ist die Fermi-Verteilung ausgeschmiert, angeregte Zustände oberhalb der Fermi-Energie werden besetzt. Abhängig von der Größe der effektiven Masse m^* verschwinden die zu beobachtenden Oszillationen bei höheren Temperaturen, wobei die Frequenzen höherer effektiver Massen bei tieferer Temperatur unterdrückt werden. Somit lässt sich über den Dämpfungsfaktor

$$R_T = \frac{p\kappa \frac{m^* T}{m B}}{\sinh\left(p\kappa \frac{m^* T}{m B}\right)} \quad (4.5)$$

die effektive Masse aus der Temperaturabhängigkeit der zugehörigen dHvA-Frequenz bestimmen. Zum Zwecke der Übersichtlichkeit wurde hier die Konstante $\kappa = 2\pi^2 \frac{k_B m}{e\hbar} \approx 14.7 \frac{T}{K}$ eingeführt. Die Zahl p gibt an, welche Harmonische der dHvA-Frequenz betrachtet wird. Im Folgenden bleibt die Betrachtung auf die erste Harmonische, also $p = 1$ beschränkt. In Abb. 4.17 ist die Dämpfung der Amplitude der dHvA-Frequenz bei 13.9 kT in Abhängigkeit von der Temperatur T dargestellt. Die Amplitude wird oberhalb von 200 mK bis auf das Niveau des Rauschens, welches temperaturunabhängig ist, unterdrückt. Für diese Analyse wurden Messdaten im Feldbereich von $B_{\text{min}} = 15.5$ T bis $B_{\text{max}} = 17.4$ T verwendet. Es wurde für jede Temperatur die dHvA-Frequenz bestimmt

und in einem festen Intervall über den Peak integriert. An die Werte wurde die Funktion R_T aus Gl. (4.5) angepasst. Als Wert für das angelegte Magnetfeld wurde ein Mittelwert $B_{mittel} = 16.395$ T gemäß $1/B_{mittel} = 0.5 \cdot (1/B_{min} + 1/B_{max})$ eingesetzt. Die Massenerhöhung m^*/m stellt den freien Parameter der Anpassung dar. Es ergibt sich ein Wert von $m^*/m = 20 \pm 2$. Dieses Ergebnis ist ein Indiz dafür, dass das Signal intrinsisch ist, da für metallische Verunreinigungen in der Probe deutlich kleinere effektive Massen zu erwarten wären. Diese Massenerhöhung ist größer als all jene, die für andere dHvA-Frequenzen in YbRh_2Si_2 beobachtet wurden [111, 112].

Auch die Unordnung im Kristall dämpft die dHvA-Oszillationen. Dies ist durch den Dämpfungsfaktor

$$R_D = \exp\left(-p\kappa \frac{m^*T_D}{mB}\right) \quad (4.6)$$

in der Lifshitz-Kosevich-Formel ausgedrückt, der als Dingle-Faktor bezeichnet wird. T_D bezeichnet dabei die Dingle-Temperatur. Zur Analyse muss die Amplitude der dHvA-Frequenz F für verschiedene Feldbereiche bestimmt werden und eine Anpassung des Dämpfungsterms als Funktion des Feldes vorgenommen werden. Die in YbRh_2Si_2 kontinuierlich gemessenen Feldbereiche waren relativ klein, so dass eine genaue Analyse über einen großen Feldbereich nicht möglich war. Anpassungen an Ergebnisse aus verschiedenen Messreihen liefern für T_D Werte zwischen 0.37 K und 0.62 K unter Verwendung der ermittelten effektiven Masse $m^* = 20m$. Damit ergeben sich mittlere freie Weglängen l_0 gemäß

$$l_0 = \sqrt{\frac{e\hbar^3 F}{2\pi}} \frac{1}{m^*k_B T_D} \quad (4.7)$$

in der Größenordnung von 10^{-7} m. Somit liegt die freie Weglänge um etwa drei Größenordnungen über der Länge der Gitterkonstanten von YbRh_2Si_2 .

Zur Zeit befindet sich die hier verwendete Probe im Cavendish Laboratory in Cambridge, wo in der Gruppe von M. Sutherland zum einen die gefundene Frequenz bei 13.9 kT verifiziert werden soll. Zum anderen sollen dort die winkelabhängigen Messungen durchgeführt und nach Möglichkeit auch Oszillationen unterhalb von $B = 10$ T beobachtet werden.

4.3 Analyse und Interpretation der T^* -Linie

Nicht nur in den Messungen des Hall-Effekts sondern auch im Magnetwiderstand sowie in thermodynamischen Messgrößen treten Anomalien auf, die auf die Existenz einer neuen Energieskala im Phasendiagramm von YbRh_2Si_2 hindeuten. In diesem Abschnitt werden die bisher vorgestellten Ergebnisse im Bezug auf diese T^* -Linie zusammengefasst und interpretiert. Dazu ist in Abb. 4.18 **A** exemplarisch für $T = 0.5$ K die Messkurve der Magnetostriktion $-\lambda(B)$ zusammen mit Daten der Magnetisierung $M(B)$ und des Hall-Widerstands $\rho_H(B)$ aufgetragen. Dabei wurde zur genaueren Bestimmung des

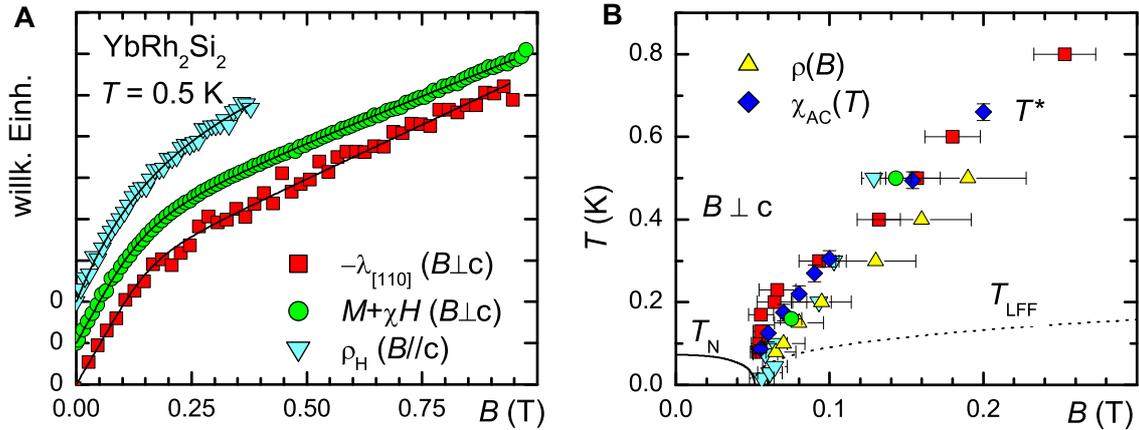


Abb. 4.18: **A** Vergleich des Crossover im Magnetostruktionskoeffizienten $\lambda(B)$ mit denen in $\tilde{M}(B)$ und $\rho_H(B)$ bei 0.5 K. Die Linien entsprechen jeweils einer Anpassung des Integrals der Crossover-Funktion gemäß Gl. (4.1). **B** B - T -Phasendiagramm mit den ermittelten Crossover-Positionen für $T^*(B)$ der in Teilbild **A** gezeigten Messgrößen. Zusätzlich sind die Positionen der Anomalien aus den Messungen von $\rho(B)$ und $\chi_{AC}(T)$ eingezeichnet.

Crossover-Feldes B_0 anstelle der Magnetisierung M die Größe $\tilde{M} = M + H \cdot \partial M / \partial H$ verwendet. Sie ergibt sich aus der Magnetfeldableitung des magnetischen Beitrags zur freien Enthalpie G unter Berücksichtigung der inneren Ableitung der Magnetisierung. Allerdings ist auch schon in M selbst eine Steigungsänderung zu beobachten. Die Daten des Hall-Widerstandes ρ_H , die für $B \parallel c$ ermittelt wurden, sind hier auf das kritische Feld $B_c = 0.05$ T für $B \perp c$ normiert, indem sie durch den Anisotropiefaktor 13.2 geteilt wurden [115]. In Abb. 4.18 **B** ist das B - T -Phasendiagramm von YbRh_2Si_2 gezeigt, in dem die mit Hilfe der Crossover-Funktion aus Gl. (4.1) ermittelten Positionen der Steigungsänderungen aufgetragen sind. Hier zeigt sich, dass diese Anomalien im Phasendiagramm gemeinsam eine Crossover-Linie $T^*(B)$ beschreiben, die am QKP bei $B = B_c$ zu null geht. Diese T^* -Linie ist klar abgegrenzt von den Übergängen sowohl in die antiferromagnetische Phase bei $B < B_c$ als auch in den LFF-Zustand bei $B > B_c$. Neben den mit Hilfe der Crossover-Funktion bestimmten Punkten entlang $T^*(B)$ sind in Abb. 4.18 **B** zusätzlich die Wendepunkte des Magnetwiderstands $\rho(B)$ sowie die Maxima der temperaturabhängigen Wechselfeldsuszeptibilität $\chi_{AC}(T)$ eingetragen. Auch sie stimmen im Rahmen der Fehlerbalken gut mit $T^*(B)$ überein.

In Abb. 4.19 **A** sind die Halbwertsbreiten der Crossover-Übergänge des Hall-Widerstands $\rho_H(B)$, der Magnetisierung $\tilde{M}(B)$ und der Magnetostriktion $\lambda(B)$ dargestellt. Sie wurden durch die Anpassung der Crossover-Funktion aus Gl. 4.1 an $d\rho_H/dB$, $d\tilde{M}/dB$ und $d\lambda/dB$ ermittelt. Dazu wurde die jeweils angepasste Funktion abgeleitet und die Halbwertsbreite des resultierenden Minimums bestimmt. Zudem sind die Halbwertsbreiten des Magnetwiderstands $\rho(B)$ gezeigt, die direkt aus $d\rho/dB$ bestimmt wurden (siehe Abb. 4.7). Für jede der Messgrößen extrapoliert die Halbwertsbreite im Rahmen

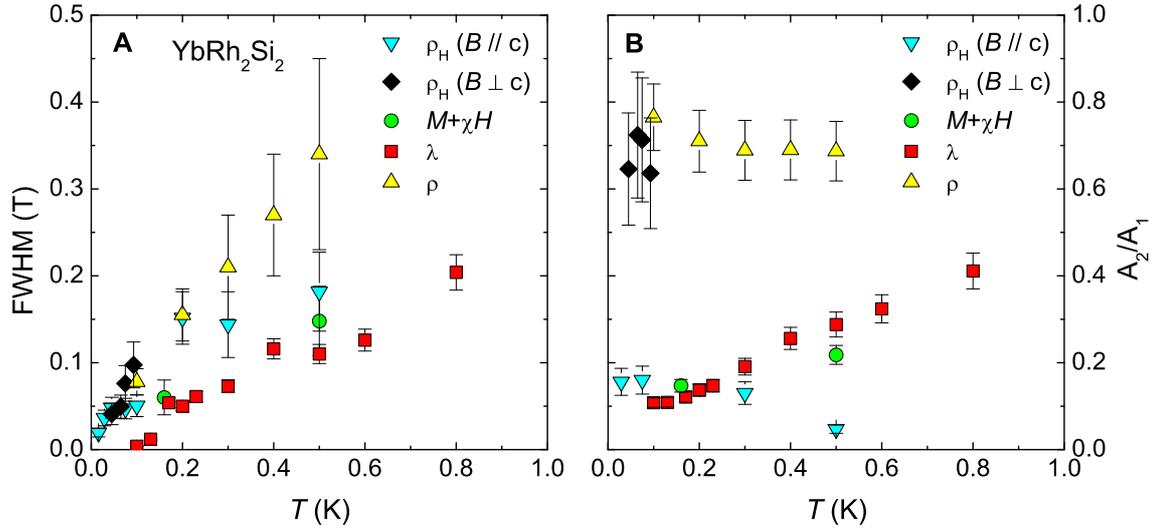


Abb. 4.19: **A** Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreiten (FWHM) der Crossover-Übergänge in Hall-Widerstand $\rho_H(B)$, Magnetisierung $\tilde{M}(B)$, Magnetostriktion $\lambda(B)$ und Magnetwiderstand $\rho(B)$. **B** Temperaturabhängigkeit des Verhältnisses des Hochfeld- zum Nullfeldwert A_2/A_1 der Crossover-Funktion aus Gl. (4.1). Für $\rho(B)$ wurden A_1 und A_2 als Anfangs- und Endwert der Messkurven gewählt. Beide Graphen entnommen aus Ref. [116].

der Fehlerbalken für $T \rightarrow 0$ zu null. Dies bedeutet, dass sowohl in den angepassten Größen als auch im Magnetwiderstand bei $T = 0$ ein Sprung auftreten sollte. Für dieselben Messgrößen ist das Verhältnis A_2/A_1 in Abb. 4.19 **B** als Funktion der Temperatur T aufgetragen. Dabei entspricht A_1 dem Wert der Stufenfunktion bei $B = 0$ und A_2 dem Wert im hohen Feld. Es zeigt sich, dass dieses Verhältnis in allen Messgrößen für $T \rightarrow 0$ zu Werten deutlich kleiner als eins extrapoliert. Somit ist die extrapolierte Sprunghöhe der Stufenfunktionen bei $T = 0$ in allen Messgrößen ungleich null. Die Existenz dieser endlichen Sprunghöhe impliziert, dass keine der vier betrachteten Größen ein Skalierungsverhalten gemäß T/T^* aufweist [116]. Im Gegensatz dazu wurde für die Crossover-Linie T_{LFF} zum LFF-Bereich ein solches Skalierungsverhalten in $d\rho/dT$ gefunden [89], was beweist, dass T^* nicht im Sinne einer weiteren Signatur des Übergangs zu LFF-Verhalten interpretiert werden kann, sondern stattdessen eine zusätzliche intrinsische Energieskala am QKP in YbRh_2Si_2 darstellt.

In den Messungen der Magnetisierung $M(B)$ und der Magnetostriktion $\lambda(B)$ wurden jeweils sowohl bei Überschreiten von $T^*(B)$ als auch im hohen Feld bei $B_p \approx 10$ T Anomalien beobachtet. Auffällig ist hier, dass beide Messgrößen bei $T^*(B)$ eine Steigungsänderung aufweisen, während bei B_p in $M(B)$ eine weitere Steigungsänderung erfolgt, $\lambda(B)$ aber eine sprunghafte Änderung erfährt. Dieses Verhalten könnte als Indiz interpretiert werden, dass die beiden Anomalien auf verschiedene physikalische Effekte zurückzuführen sind.

Die Ergebnisse haben gezeigt, dass eine weitere intrinsische Energieskala in $YbRh_2Si_2$ existieren muss und führen zu der Frage, welcher universelle Zusammenhang zwischen den thermodynamischen Messgrößen und den elektronischen Transporteigenschaften besteht. Aus den thermodynamischen Messungen ist eine Interpretation dieser Energieskala jedoch nicht möglich. Im Wesentlichen stützen sich mögliche Interpretationsansätze deshalb auf die Ergebnisse der Hall-Effekt-Messungen.

In Anbetracht der starken ferromagnetischen Fluktuationen in $YbRh_2Si_2$ ergibt sich eine mögliche Interpretation der Crossover-Linie bei endlicher Temperatur. Die Magnetisierung innerhalb der Basalebene nimmt bereits am kritischen Feld einen Wert von beinahe $0.1\mu_B/Yb$ an und ist stark temperaturabhängig. Demnach könnte die Magnetisierung im Prinzip eine Zeeman-Aufspaltung der Fermi-Fläche induzieren, aus der die beobachtete Entwicklung des Hall-Effekts als Funktion des Feldes hervorgeht [34]. Innerhalb der Basalebene weist die Magnetisierung eine Steigungsänderung auf. Diese ließe als Anomalie des Hall-Koeffizienten im Falle einer Zeeman-Aufspaltung höchstens ebenfalls eine Steigungsänderung erwarten. Beobachtet wurde jedoch eine verbreiterte Stufe im Hall-Koeffizienten. Entlang der c -Richtung des Kristalls verläuft die Magnetisierung mit sehr kleinen Werten linear [23] und ist somit nicht in der Lage, die entlang dieser Richtung beobachtete Steigungsänderung des Hall-Widerstandes zu verursachen. Daher erscheint es wahrscheinlicher, dass die beobachteten Signaturen in Magnetisierung und Magnetostriktion als thermodynamische Folge einer sprunghaften Änderung der Fermi-Fläche bei $T = 0$, erzeugt durch einen Zusammenbruch der Quasiteilchen, aufzufassen sind [115].

Aus theoretischer Sicht besteht die Möglichkeit, die T^* -Linie als eine Energieskala zu interpretieren, die mit einem Vielteilchenspektrum im Gleichgewicht verknüpft ist. Zusammen mit dem Ergebnis, dass T^* von T_{LFF} verschieden ist, obwohl beide am QKP zu null gehen, scheinen die Experimente der konventionellen Theorie der Ordnungsparameterfluktuationen in mindestens zwei Punkten zu widersprechen [115]. Zum einen existiert in dieser Theorie nur eine niederenergetische Energieskala, die auf die Divergenz der magnetischen Ordnungsparameterfluktuationen zurückgeführt wird, und für $B > B_c$ ist dies T_{LFF} [6, 7, 10, 45]. Zum anderen sollten nach dieser Theorie nur entlang $T_N(B)$ scharfe Anomalien in den thermodynamischen und Transportgrößen auftreten.

Stattdessen besteht die Möglichkeit, die Ergebnisse mit dem Modell magnetischen quantenkritischen Verhaltens zu interpretieren, welches mit dem Zusammenbruch der Bildung von Quasiteilchen durch den Kondo-Effekt einhergeht. Diese Form lokalen quantenkritischen Verhaltens [50, 52] führt zu einem Zusammenbruch des großen Fermi-Volumens, wenn der externe Parameter (hier das Magnetfeld) reduziert wird. Daraus ergibt sich eine zusätzliche Energieskala, die durch die Divergenz der elektronischen Fluktuationen charakterisiert ist und zu einem Sprung im Hall-Koeffizienten und den Feldableitungen der thermischen Messgrößen führen könnte [115].

Eine weitere Möglichkeit zur Interpretation der Ergebnisse stellt das Modell (3) aus Abschnitt 3.3.2 dar. Auch hier wird davon ausgegangen, dass das Fermi-Volumen bei $T = 0$ auf Grund des Zusammenbruchs der Kondo-Abschirmung springt [53]. In diesem Fall wird die Lokalisierung der f -Elektronen mit einem Metall-Isolator-Übergang verglichen. Für diesen Effekt wäre die Ausbildung einer magnetischen Phase nicht relevant [54]. Das Zusammentreffen der beobachteten Energieskala $T^*(B)$ mit dem magnetischen QKP wäre in diesem Falle zufällig.

Von großem Interesse ist nun der Einfluss von Druck und Dotierung auf das B - T -Phasendiagramm im Hinblick auf die T^* -Linie. Bisher ist unklar, ob sie direkt mit dem magnetischen QKP verknüpft ist. Diese Fragestellung wird im folgenden Abschnitt dieses Kapitels behandelt.

4.4 Ergebnisse - Dotiertes System

4.4.1 Dotierung auf dem Rhodium-Platz

Neben dem Anlegen eines hydrostatischen Druckes stellt das Dotieren einer Probe eine Möglichkeit dar, die Lage eines Systems relativ zum QKP zu verschieben. Die Substitution kleinerer Atome führt wie äußerer Druck zu einer Verringerung des Gittervolumens. Der Einbau größerer Atome weitet das Gitter auf, was einem Äquivalent zu negativem Druck entspricht, siehe Abschnitt 4.1.2. Es wird nun der Einfluss von Dotierung geringer Mengen an Ir bzw. Co auf dem Rh-Platz untersucht. YbRh_2Si_2 befindet sich im p - T -Phasendiagramm auf der magnetischen Seite. Yb-Ionen in intermetallischen Verbindungen bevorzugen unter Druck den kleineren trivalenten, magnetischen Zustand mit $J = 7/2$. Wird das Gitter aufgeweitet, tendieren sie leicht zum divalenten, unmagnetischen Zustand mit $J = 0$. In Abb. 4.20 ist die Druckabhängigkeit eines Yb-Systems schematisch dargestellt. Eine leichte Volumenexpansion des Gitters sollte das System YbRh_2Si_2 somit an einen druckabhängigen QKP heranführen.

Im Periodensystem der Elemente steht Ir unter Rh und weitet das Gitter auf Grund seines größeren Atomradius auf. Die Verbindung YbIr_2Si_2 wurde bereits untersucht und zeigt bei tiefen Temperaturen LFF-Verhalten [117]. Von C. Krellner wurden qualitativ hochwertige YbRh_2Si_2 -Einkristalle mit leichter Ir-Dotierung im In-Fluss gezogen, um das System auf diese Weise im p - T -Phasendiagramm zum QKP zu verschieben. Da der Atomradius von Co kleiner ist als der von Rh, ordnet YbCo_2Si_2 unterhalb von $T_N = 1.7\text{ K}$ antiferromagnetisch [118]. Eine Dotierung von YbRh_2Si_2 mit Co verringert das Gittervolumen und die antiferromagnetische Phase vergrößert sich. Des Weiteren ergibt sich daraus ein Vergleich mit Daten von YbRh_2Si_2 unter hydrostatischem Druck. Auch diese Proben wurden bis zu einem Co-Gehalt von $x = 0.12$ von C. Krellner unter Verwendung derselben Methode hergestellt. Weiterhin kann an den dotierten Proben der Einfluss einer Volumenkompression bzw. -expansion auf $T^*(B)$ untersucht und mit

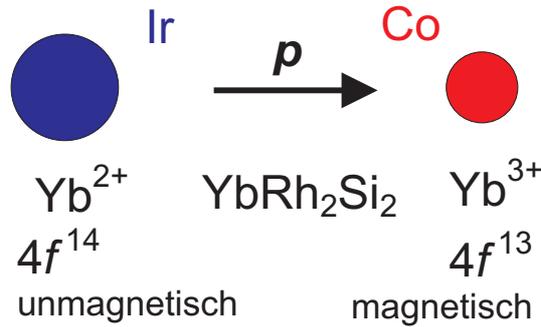


Abb. 4.20: Schematische Darstellung der Druckabhängigkeit von Yb-Ionen in intermetallischen Verbindungen. Der Pfeil kennzeichnet die Richtung, in die der Druck p zunimmt. Ir und Co kennzeichnen jeweils die Richtung, in die eine entsprechende Dotierung das System treibt.

dem entsprechenden Effekt auf $T_N(B)$ verglichen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Messungen der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität an je drei Ir- und Co-dotierten Proben unterschiedlicher Konzentrationen durchgeführt. An je einer Probe wurden thermische Ausdehnung und Magnetostriktion gemessen.

4.4.2 Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität

Alle in diesem Abschnitt gezeigten Suszeptibilitäten ergeben sich nach Abzug des Leersignals des Probenhalters von den Rohdaten und anschließender Normierung auf Messdaten von $\chi_{DC}(T) = M(T)/B$ oberhalb von 2 K, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben.

Iridium-Substitution

Zunächst werden die Daten der Wechselfeldsuszeptibilität $\chi(T)$ im Nullfeld gezeigt. Da weder eine Frequenzabhängigkeit noch ein temperaturabhängiges Signal auf dem Imaginärteil χ'' beobachtet wurden, entspricht der Realteil χ' der differentiellen Suszeptibilität $\chi = dM/dH$. Dies gilt für alle im Folgenden gezeigten Suszeptibilitätsmessungen. Anschließend werden Ergebnisse der drei untersuchten Konzentrationen unter Einfluss eines externen Magnetfeldes vorgestellt.

In Abb. 4.21 **A** ist die Suszeptibilität über einer logarithmischen Temperaturskala für die drei untersuchten Proben aufgetragen. Die Probe mit einem Ir-Gehalt von $x = 0.025$ zeigt deutlich einen antiferromagnetischen Phasenübergang bei $T_N = (0.04 \pm 0.003)$ K, also bei deutlich niedrigerer Temperatur als in YbRh_2Si_2 . Für die beiden höheren Ir-Konzentrationen, also $x = 0.06$ und $x = 0.17$, konnte kein Phasenübergang oberhalb von $T = 20$ mK detektiert werden. Die Suszeptibilität steigt hier während des Abkühlens zu tiefsten Temperaturen monoton an. Für $x = 0.17$ ist der erreich-

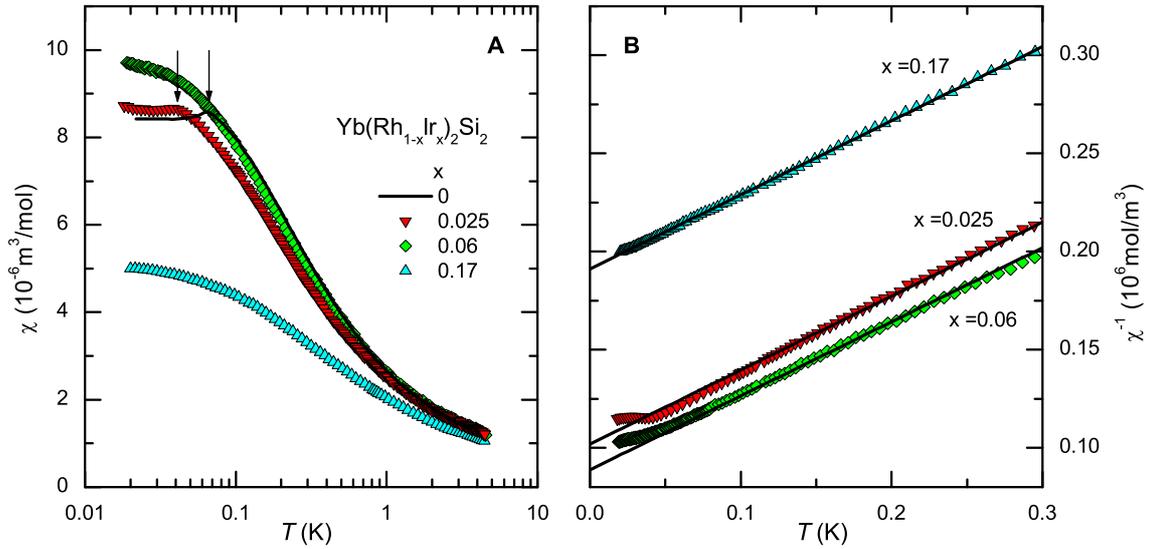


Abb. 4.21: **A** Temperaturabhängigkeit der magnetischen Suszeptibilität, logarithmisch aufgetragen für $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ir}_x)_2\text{Si}_2$ mit $x = 0.025$, 0.06 und 0.17 . Zum Vergleich ist die Suszeptibilität von stöchiometrischem YbRh_2Si_2 , entnommen aus Ref. [89], ebenfalls aufgetragen. Die Pfeile markieren die jeweilige Néel-Temperatur. **B** Inverse Suszeptibilität als Funktion der Temperatur für die drei Dotierungen. Die Geraden kennzeichnen die jeweilige Anpassung des Curie-Weiss-Gesetzes an die Daten.

te Absolutwert allerdings nur etwa halb so groß wie für die Probe mit $x=0.06$. In Abb. 4.21 **B** ist die inverse Suszeptibilität $1/\chi(T)$ von 0.3 K bis zu tiefsten Temperaturen dargestellt. Es zeigt sich jeweils eine Abhängigkeit nach dem Curie-Weiss-Gesetz $\chi(T) = C/(T + \Theta)$ mit ähnlicher Steigung, aus der sich ein effektives fluktuierendes Moment $\mu_{eff} = 1.3\mu_B/\text{Yb}$ ergibt. Dieser Wert entspricht in etwa dem für undotiertes YbRh_2Si_2 bestimmten Moment [89]. Die Weiss-Temperatur Θ beträgt -0.27 K für $x = 0.025$, -0.24 K für $x = 0.06$ und -0.5 K für $x = 0.17$. Für $x = 0.06$ weichen die Messdaten bei tiefsten Temperaturen leicht vom Curie-Weiss-Verhalten ab, was auf einen möglichen Phasenübergang unterhalb von 20 mK hindeutet. Diese Annahme wurde durch Widerstandsmessungen unter hydrostatischem Druck gestützt. Dort zeigt sich, dass sich das p - T -Phasendiagramm von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.94}\text{Ir}_{0.06})_2\text{Si}_2$ durch eine Verschiebung um -0.06 GPa auf das von undotiertem YbRh_2Si_2 abbilden lässt [119]. Dieses Ergebnis lässt ebenfalls einen Phasenübergang bei etwa 20 mK erwarten. Der hohe Absolutwert von Θ in der Probe mit $x = 0.17$ ist vermutlich auf eine größere Entfernung zum QKP zurückzuführen.

In Abb. 4.22 sind Messkurven der Wechselfeldsuszeptibilität für die mit einem Ir-Anteil von $x = 0.025$ dotierte Probe unter dem Einfluss eines zusätzlichen äußeren statischen Magnetfeldes gezeigt. Auf der linken Seite der Abbildung ist $\chi'(T)$ für verschiedene angelegte Felder dargestellt. Für Magnetfelder $B \leq 0.025\text{ T}$ ist ein Maximum bei

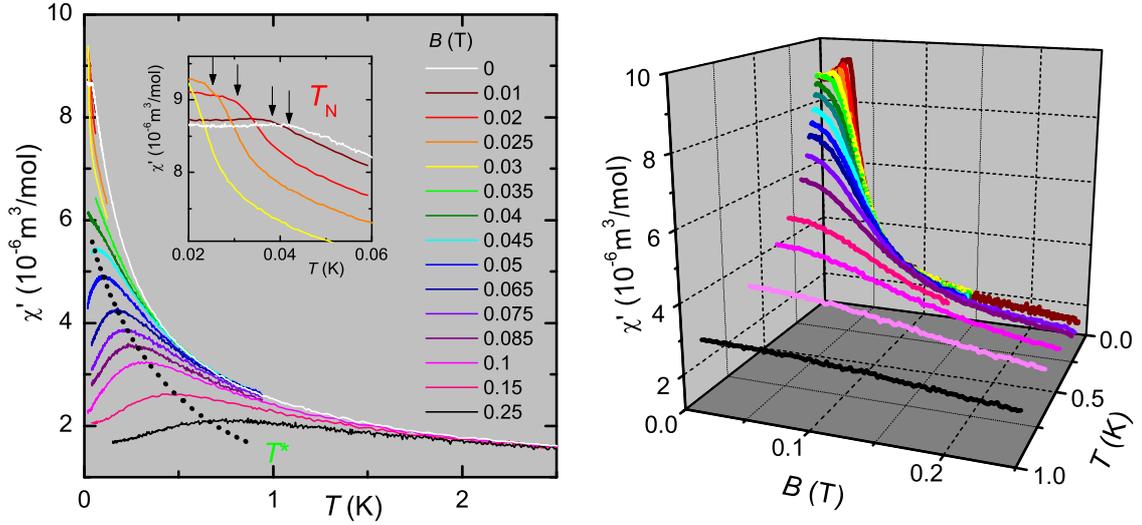


Abb. 4.22: Links: Temperaturabhängigkeit der magnetischen Suszeptibilität $\chi'(T)$ für $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ir}_x)_2\text{Si}_2$ mit $x=0.025$ gemessen in verschiedenen konstanten Magnetfeldern B . Die gepunktete Linie verläuft entlang der Maxima, die der Energieskala T^* zugeordnet werden. Die Pfeile im Inset kennzeichnen T_N . Rechts: Magnetfeldabhängigkeit $\chi'(B)$ derselben Probe bei verschiedenen konstanten Temperaturen T , aufgetragen als dritte Achse.

tiefen Temperaturen zu beobachten. Das Inset zeigt einen detaillierten Ausschnitt bei tiefen Temperaturen. Hier ist diese Anomalie des antiferromagnetischen Phasenübergangs und dessen Unterdrückung im Feld zu erkennen. Im Bereich $0.03 \text{ T} \leq B \leq 0.04 \text{ T}$ steigt $\chi'(T)$ monoton bis zu tiefsten Temperaturen an. Ab einem Feld von $B = 0.045 \text{ T}$ tritt ein Maximum in $\chi'(T)$ auf, das mit zunehmender Feldstärke zu höheren Temperaturen verschiebt und stark verbreitert wird. Dieses Verhalten entspricht den Beobachtungen im undotierten YbRh_2Si_2 . Dort wurden diese Maxima mit der Energieskala T^* assoziiert. Auf Grund der großen Ähnlichkeit wird auch hier die Bezeichnung T^* gewählt. Rechts in Abb.4.22 sind isotherme Suszeptibilitätsdaten bei verschiedenen Temperaturen als Funktion des externen Magnetfeldes B in dreidimensionaler Auftragung gezeigt. Hier zeigt sich ein Maximum am kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase. Des Weiteren ergibt sich eine verbreiterte Stufe von hohen Werten der Suszeptibilität im kleinen Feld zu niedrigeren Werten bei höheren Feldern. Diese Stufe wird breiter je höher die Temperatur ist. Dies entspräche einer Steigungsänderung in der Magnetisierung, wie sie im reinen YbRh_2Si_2 beobachtet wurde.

Aus den Messdaten der Wechselfeldsuszeptibilität ergibt sich das in Abb. 4.23 gezeigte B - T -Phasendiagramm. Die antiferromagnetische Phase ist im Vergleich zu undotiertem YbRh_2Si_2 etwas unterdrückt. Es ergibt sich eine Néel-Temperatur von $T_N = (0.040 \pm 0.003) \text{ K}$ und ein kritisches Feld $B_c = (0.035 \pm 0.003) \text{ T}$. Auffällig ist, dass die aus den breiten Maxima in $\chi'(T)$ bestimmte T^* -Linie für $T \rightarrow 0$ nicht direkt zu B_c

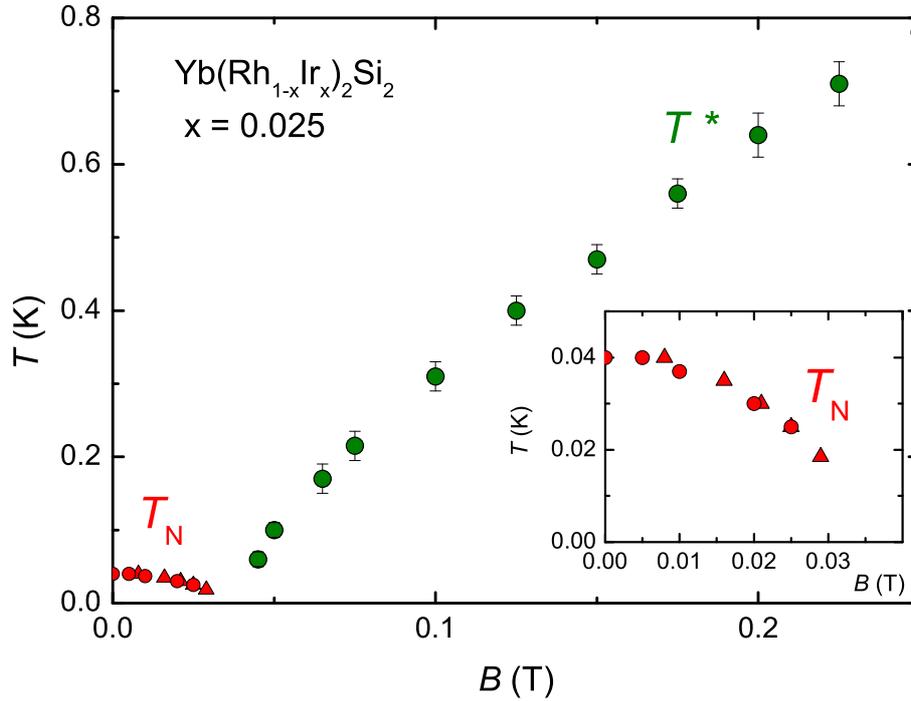


Abb. 4.23: B - T -Phasendiagramm von $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ir}_x)_2\text{Si}_2$, erstellt aus den Messergebnissen der Wechselfeldsuszeptibilität. T_N kennzeichnet die antiferromagnetische Phasengrenzlinie, T^* die Crossover-Linie der breiten Maxima. Im Inset ist der Bereich der antiferromagnetischen Phase vergrößert dargestellt. Kreise kennzeichnen Anomalien in $\chi'(T)$, Dreiecke solche in $\chi'(B)$.

extrapoliert sondern zu einem etwas höheren Wert.

In Abb. 4.24 sind die Ergebnisse der Suszeptibilitätsmessungen $\chi'(T)$ an den Ir-dotierten Proben mit $x = 0.06$ und $x = 0.17$ und die dazugehörigen Phasendiagramme gezeigt. Für $x = 0.06$ wurde in zahlreichen Feldern über einen größeren Temperaturbereich gemessen, wie in Abb. 4.24 **A** dargestellt ist. Für $x = 0.17$ wurden im Wesentlichen die Maxima vermessen. In Abb. 4.24 **B** sind drei Kurven gezeigt, die über einen größeren Temperaturbereich gemessen wurden. Für beide Konzentrationen konnte oberhalb von $T = 0.02$ K kein Phasenübergang detektiert werden. In den Phasendiagrammen in Abb. 4.24 **C** und **D** ist somit jeweils nur die T^* -Linie eingezeichnet, die sich trotz der Abwesenheit magnetischer Ordnung aus den Maxima in $\chi'(T)$ ergibt. Ihre Position ändert sich kaum. Für $x = 0.17$ verläuft sie etwas flacher. Es ist ungeklärt, ob dieser Effekt auf eine eventuell aufgetretene, leichte Verkipfung der Probe um wenige Grad im Probenhalter zurückzuführen ist, da die Probe sehr klein und dünn war.

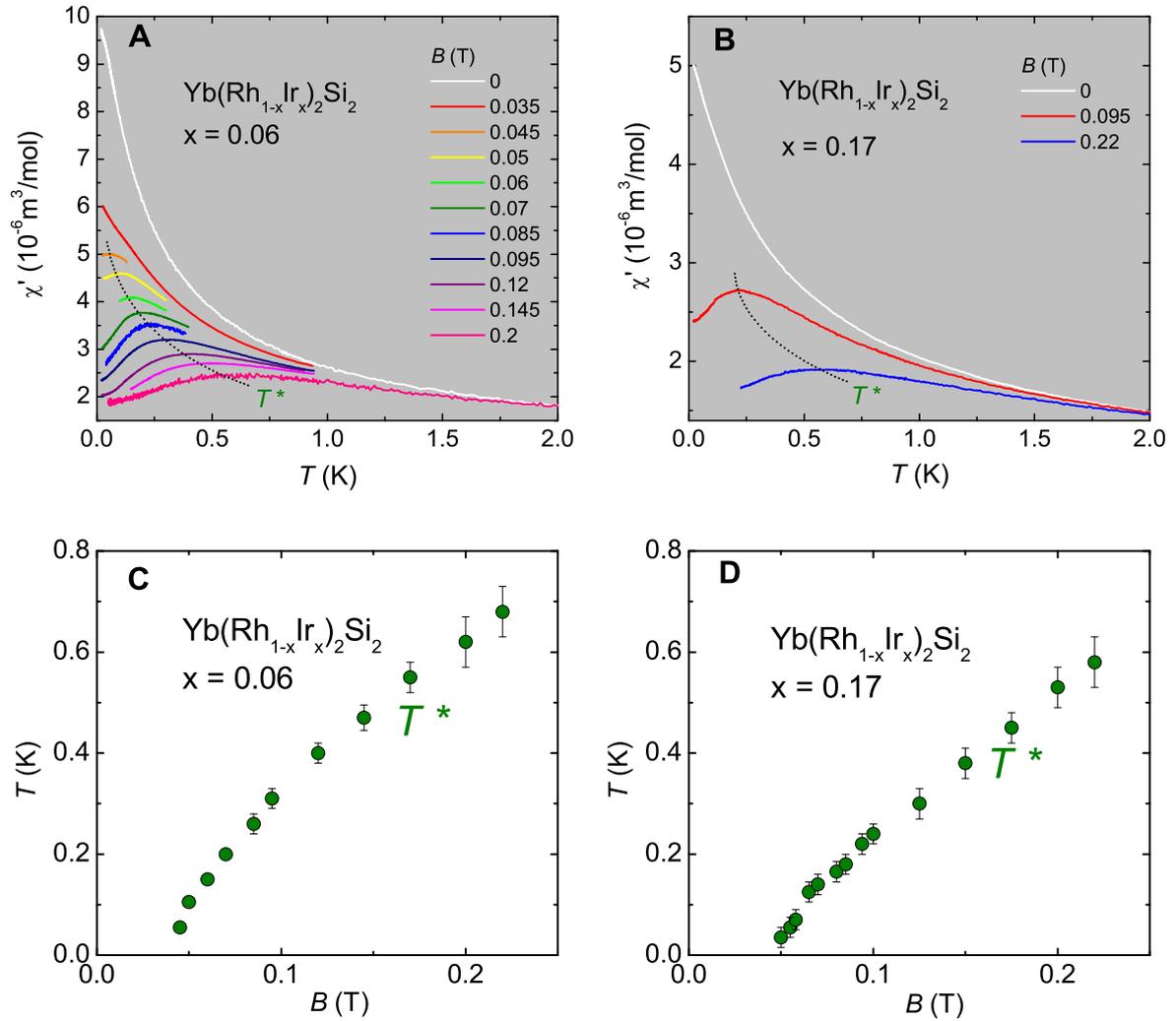


Abb. 4.24: **A** Realteil der Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.94}\text{Ir}_{0.06})_2\text{Si}_2$ in verschiedenen Magnetfeldern B . **B** Realteil der Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.83}\text{Ir}_{0.17})_2\text{Si}_2$ im Nullfeld und zwei ausgesuchten Magnetfeldern B . **C** B - T -Phasendiagramm für $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.94}\text{Ir}_{0.06})_2\text{Si}_2$. **D** B - T -Phasendiagramm für $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.83}\text{Ir}_{0.17})_2\text{Si}_2$. T^* kennzeichnet jeweils die Positionen der breiten Maxima in $\chi'(T)$.

Kobalt-Substitution

Hier werden die Messergebnisse der Wechselfeldsuszeptibilität von $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{Si}_2$ vorgestellt. Es wurden Proben mit einem Co-Anteil von $x = 0.03$, $x = 0.07$ und $x = 0.12$ anhand von Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität untersucht. Im Nullfeld zeigt die Probe mit einem Co-Gehalt von $x = 0.03$ ähnliches Verhalten wie undotiertes

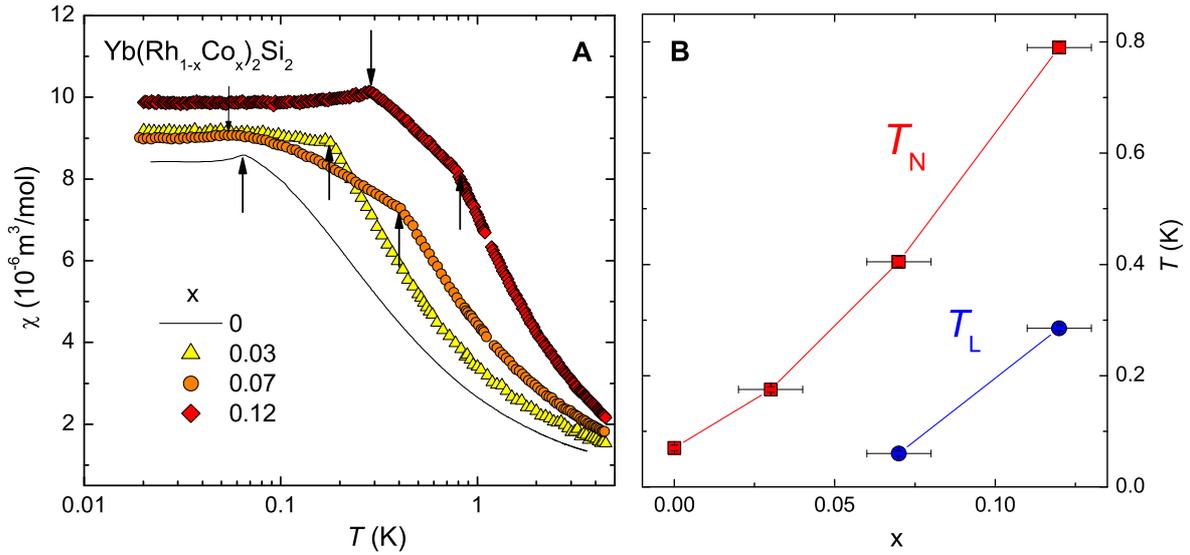


Abb. 4.25: **A** Suszeptibilität der Co-dotierten Proben im Nullfeld logarithmisch über der Temperatur T aufgetragen. Die aufwärts zeigenden Pfeile markieren den Übergang T_N in die antiferromagnetische Phase. Die abwärts gerichteten Pfeile kennzeichnen eine zweite Anomalie bei tieferer Temperatur T_L , die ab $x = 0.07$ auftritt. **B** Übergangstemperaturen T_N und T_L über dem Co-Gehalt x aufgetragen.

YbRh_2Si_2 . Allerdings ist das am antiferromagnetischen Phasenübergang auftretende Maximum zu höherer Temperatur verschoben. Dieser Trend setzt sich mit zunehmender Co-Konzentration fort. Bei $x = 0.07$ und $x = 0.12$ tritt zusätzlich bei einer tieferen Temperatur T_L ein weiteres Maximum auf. Dadurch wandelt sich die Form des Übergangs bei T_N von einem Maximum zu einem scharfen Abknicken der Kurve, gefolgt von einem weiteren Anstieg der Suszeptibilität zu tieferen Temperaturen, wie in Abb. 4.25 **A** dargestellt ist. Abb. 4.25 **B** zeigt, aufgetragen in einem Phasendiagramm, dass beide Übergangstemperaturen T_N und T_L mit zunehmendem Co-Gehalt ansteigen. Dieses Verhalten entspricht somit qualitativ den Ergebnissen an undotiertem YbRh_2Si_2 unter hydrostatischem Druck [97].

Alle drei Proben wurden auf ihr Verhalten in einem äußeren Magnetfeld untersucht. In Abb. 4.26 ist $\chi'(T)$ im Nullfeld sowie in konstanten Feldern bis zu $B = 0.2$ T gezeigt. Daneben ist das B - T -Phasendiagramm dargestellt, das sich aus den gezeigten temperatur- und aus magnetfeldabhängigen Messungen $\chi'(B)$ ergibt. Für diese Probe

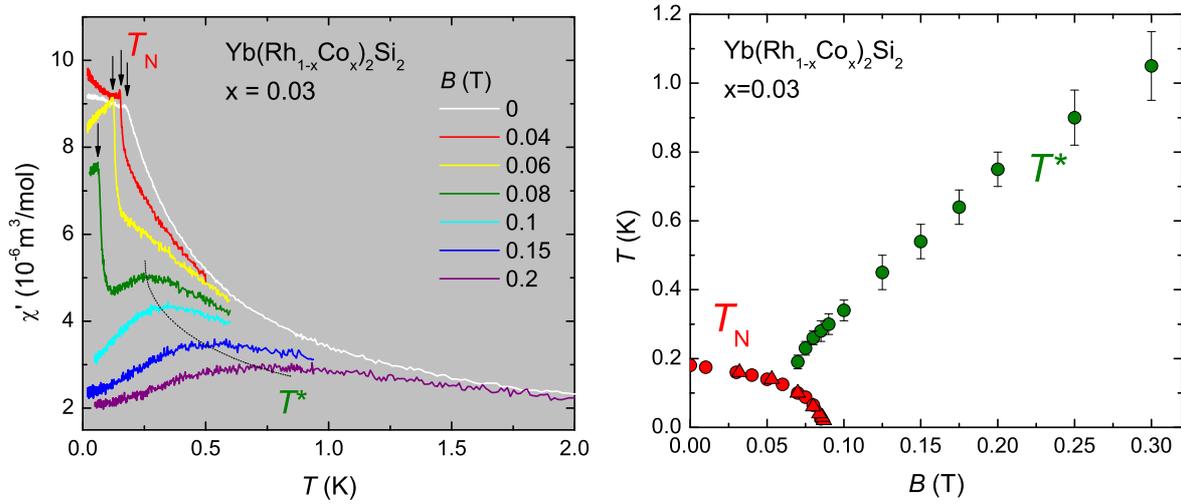


Abb. 4.26: Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ (links) und Phasendiagramm (rechts) von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.97}\text{Co}_{0.03})_2\text{Si}_2$. Links: Die Pfeile markieren T_N , die gepunktete Linie T^* . Rechts: Kreise kennzeichnen Anomalien in $\chi'(T)$, Dreiecke solche in $\chi'(B)$.

beträgt die antiferromagnetische Übergangstemperatur $T_N = (0.175 \pm 0.005)$ K mit einem kritischen Feld $B_c = (0.088 \pm 0.005)$ T. Auffällig ist, dass $\chi'(T)$ für $B \leq 0.04$ T unterhalb von T_N weiter ansteigt, während in größeren Feldern ein starker Abfall folgt. Die höher dotierten Proben zeigen im Nullfeld eine zweite Anomalie T_L unterhalb von T_N , die ebenfalls einen weiteren Anstieg von $\chi'(T)$ unterhalb von T_N erzeugt. Daher ist zu vermuten, dass für $x = 0.03$ ein Übergang T_L unterhalb von 20 mK auftritt. Im Phasendiagramm zeigt sich außerdem deutlich, dass in dieser Probe T^* nicht am kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase zu null geht. Stattdessen wurde in $\chi'(T)$ im Magnetfeldbereich von $0.07 \leq B \leq 0.085$ das breite Maximum oberhalb des scharfen Maximums am antiferromagnetischen Phasenübergang beobachtet.

Für die Probe mit $x=0.07$ ist das B - T -Phasendiagramm auf Grund des hier auftretenden zusätzlichen Übergangs T_L komplexer. In $\chi'(T)$ treten bei angelegtem Magnetfeld drei verschiedene Anomalien auf. In Abb. 4.27 ist links $\chi'(T)$ in Magnetfeldern bis zu $B = 0.25$ T gezeigt. Die Anomalie der antiferromagnetischen Übergangstemperatur T_N wandelt sich von einem Knick bei kleinen angelegten Feldern allmählich zu einem Maximum in höheren Feldern. Analog zu allen bisher vorgestellten Proben, tritt auch hier das breite Maximum bei T^* auf. Allerdings ist es hier erstmals möglich, ein Maximum unterhalb von T_N zu beobachten. Die Néel-Temperatur beträgt $T_N = (0.410 \pm 0.005)$ K. Die T^* -Linie kreuzt somit die antiferromagnetische Phasengrenzlinie. Im Inset ist der Tieftemperaturbereich vergrößert dargestellt. Der zusätzliche Übergang T_L ist hier in Form eines Maximums zu erkennen, das mit zunehmendem Magnetfeld zu tieferen Temperaturen verschoben wird. Die Übergangstemperatur im Nullfeld beträgt $T_L = (0.060 \pm 0.005)$ K. Auf der rechten Seite von Abb. 4.27 sind $\chi'(T)$ -

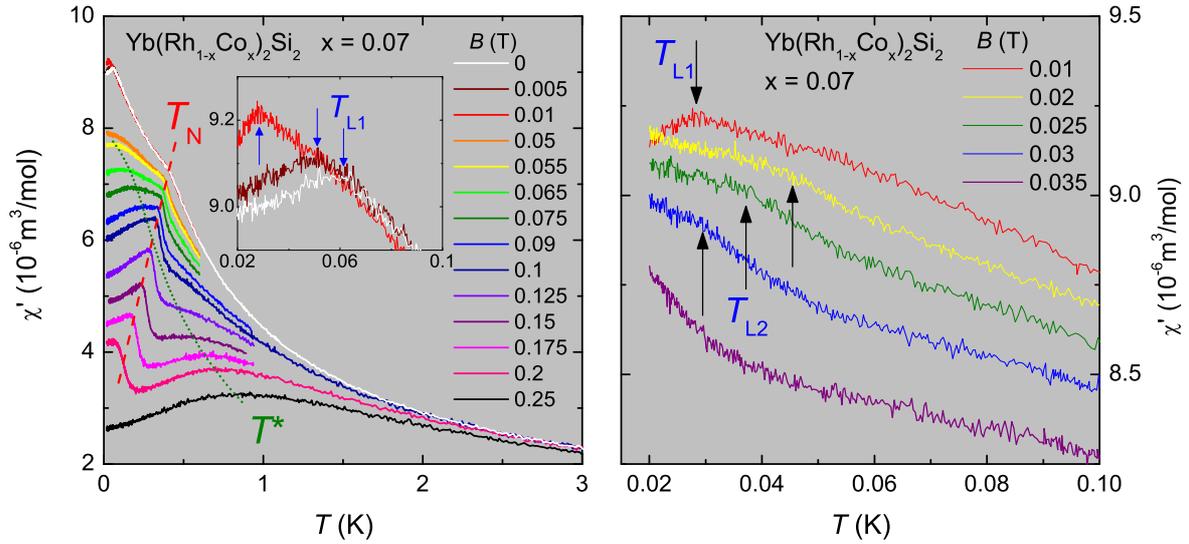


Abb. 4.27: Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$. Links: Die gestrichelte Linie markiert T_N , die gepunktete Linie T^* . Im Inset ist der Tieftemperaturbereich vergrößert dargestellt und T_{L1} durch Pfeile markiert. Rechts: Messungen bei tiefen Temperaturen bei $0.01 \leq B \leq 0.035$ T. Der nach unten gerichtete Pfeil kennzeichnet T_{L1} . Die hier zusätzlich in Form eines Knicks auftretende Anomalie ist mit T_{L2} bezeichnet und durch nach oben zeigende Pfeile markiert.

Daten im Feldbereich von 10 bis 35 mT gezeigt. Hier ist schwach eine weitere Anomalie in Form einer Steigungsänderung zu erkennen, die ebenfalls im Feld zu tieferer Temperatur verschiebt und schließlich unterdrückt wird. Dies deutet auf ein Aufspalten von T_L im Magnetfeld in T_{L1} und T_{L2} hin.

Dieser Effekt ist in der magnetfeldabhängigen Suszeptibilität $\chi'(B)$ bei der tiefsten gemessenen Temperatur von $T = 19$ mK deutlich stärker ausgeprägt, siehe Abb. 4.28. Hier tritt ein Maximum bei $B_{c,L1} = (15 \pm 2)$ mT auf, gefolgt von einem scharfen Knick bei $B_{c,L2} = (38 \pm 3)$ mT. Bei 40 mK sind diese beiden Anomalien kaum noch voneinander getrennt. Bei höherer Temperatur sind sie verschwunden. Bei deutlich höherem Feld tritt an der antiferromagnetischen Phasengrenzlinie eine Stufe auf. Diese wird erwartungsgemäß bei höherer Temperatur zu kleineren Feldern verschoben.

Aus diesen Ergebnissen lässt sich das in Abb. 4.29 gezeigte B - T -Phasendiagramm aufstellen. Das kritische Feld der antiferromagnetischen Phase beträgt $B_{c,N} = (0.225 \pm 0.005)$ T. Der untere Übergang T_L weist zwei kritische Felder auf bei $B_{c,L1} = (0.015 \pm 0.003)$ T und $B_{c,L2} = (0.045 \pm 0.005)$ T. Die Position der T^* -Linie ist auch in diesem Phasendiagramm nahezu unverändert zu den vorherigen. Hier ist deutlich zu erkennen, dass sich $T_N(B)$ und $T^*(B)$ kreuzen.

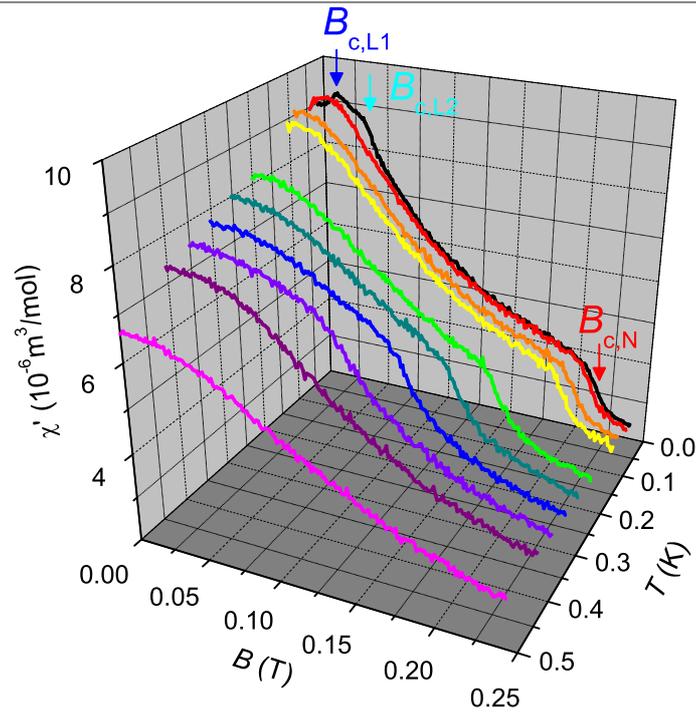


Abb. 4.28: Isotherme Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(B)$ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$ bei verschiedenen Temperaturen T . An der Kurve bei $T = 19$ mK sind die kritischen Felder der Tieftemperaturphase mit $B_{c,L1}$ und $B_{c,L2}$ sowie der antiferromagnetischen Phase $B_{c,N}$ durch Pfeile markiert.

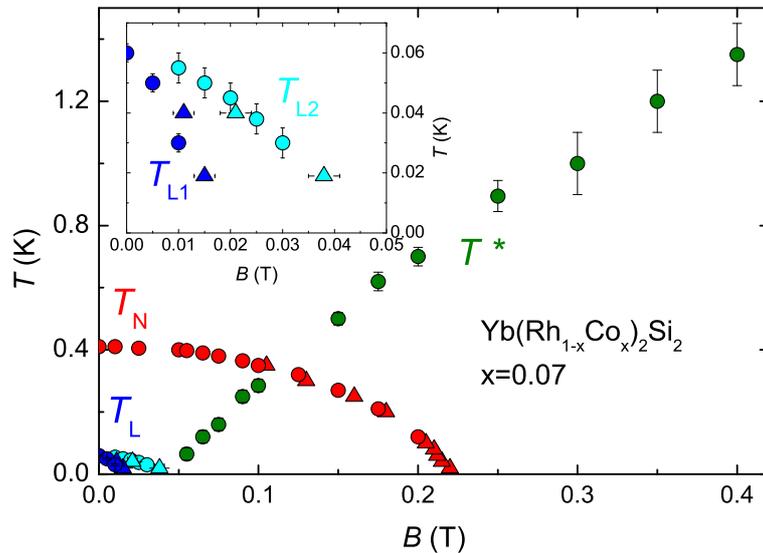


Abb. 4.29: Phasendiagramm von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$. Im Inset ist die Tieftemperaturphase vergrößert dargestellt. Kreise kennzeichnen Anomalien in $\chi'(T)$, Dreiecke solche in $\chi'(B)$.

Auch in der Probe mit einem Co-Gehalt von $x = 0.12$ konnte das breite Maximum in $\chi'(T)$ bei T^* sowohl oberhalb als auch unterhalb von T_N beobachtet werden, wie es in Abb. 4.30 **A** dargestellt ist. Die Anomalie bei T_N entwickelt sich mit steigendem Magnetfeld von einem Knick zu einem Maximum, sobald T^* oberhalb von T_N liegt. Bei tiefsten Temperaturen sind erneut die zusätzlichen Anomalien bei T_L zu beobachten. Dieser Bereich ist in Abb. 4.30 **B** vergrößert dargestellt. Im Gegensatz zu der Probe mit $x = 0.07$ ist, auf Grund der höheren kritischen Felder, die Aufspaltung der Anomalie bei T_L im Feld sehr deutlich zu erkennen. Die isotherme Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(B)$ ist in Abb. 4.30 **C** dargestellt und zeigt bei der tiefsten gemessenen Temperatur von $T = 19$ mK mit steigendem Feld zunächst ein sehr scharfes Maximum. Es ist aber auch an dieser Stelle, genau wie bei allen bisherigen Messungen, kein Signal auf dem Imaginärteil $\chi''(B)$ zu beobachten, so dass ein Phasenübergang erster Ordnung ausgeschlossen werden kann. Diese Anomalie ist dem ersten kritischen Feld $B_{c,L1}$ der Tieftemperaturphase zuzuordnen. Ihr folgen zwei Stufen, von denen die erste dem zweiten kritischen Feld $B_{c,L2}$ der Tieftemperaturphase entspricht, während die zweite am kritischen Feld $B_{c,N}$ der antiferromagnetischen Phase auftritt. Diese wird mit zunehmender Temperatur zu kleineren Feldern verschoben und schließlich unterdrückt. Die Anomalie bei $B_{c,L2}$ in $\chi'(B)$ wandelt sich mit steigender Temperatur von einer Stufe zu einem Knick, bis sie für $T > 0.25$ K unterdrückt ist. Die Messkurven mit Knick weisen eine qualitative Ähnlichkeit zu der Messung von $\chi'(B)$ an $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$ bei $T = 19$ mK auf. Dass in der Probe mit $x = 0.07$ bei tiefster Temperatur nur ein Knick bei $B_{c,L2}$ auftritt, ergibt sich demnach aus dem verhältnismäßig kleinen kritischen Feld dieser Phase.

Aus den Anomalien in $\chi'(T)$ und $\chi'(B)$ ergibt sich das in Abb. 4.30 **D** dargestellte B - T -Phasendiagramm. Für die Bestimmung des Übergangs an den Stufen in $\chi'(B)$ wurde jeweils das Minimum der Ableitung nach dem Feld ermittelt. Die Néel-Temperatur in dieser Probe liegt bei $T_N = (0.78 \pm 0.02)$ K. Der untere Übergang tritt bei $T_L = (0.28 \pm 0.01)$ K auf. Das kritische Feld der antiferromagnetischen Phase entspricht $B_{c,N} = (0.45 \pm 0.01)$ T, die kritischen Felder der Tieftemperaturphase sind $B_{c,L1} = (0.052 \pm 0.005)$ T und $B_{c,L2} = (0.12 \pm 0.01)$ T. Deren Aufspaltung ist hier wesentlich deutlicher als bei geringerer Dotierung. Die T^* -Linie verläuft in ähnlicher Weise wie in allen anderen Proben, jedoch weichen die Punkte innerhalb der antiferromagnetischen Phase leicht zu höheren Feldern ab. Ein mögliche Ursache dafür könnte die Überlagerung der Anomalien durch die vergleichsweise ausgeprägtere Tieftemperaturphase sein.

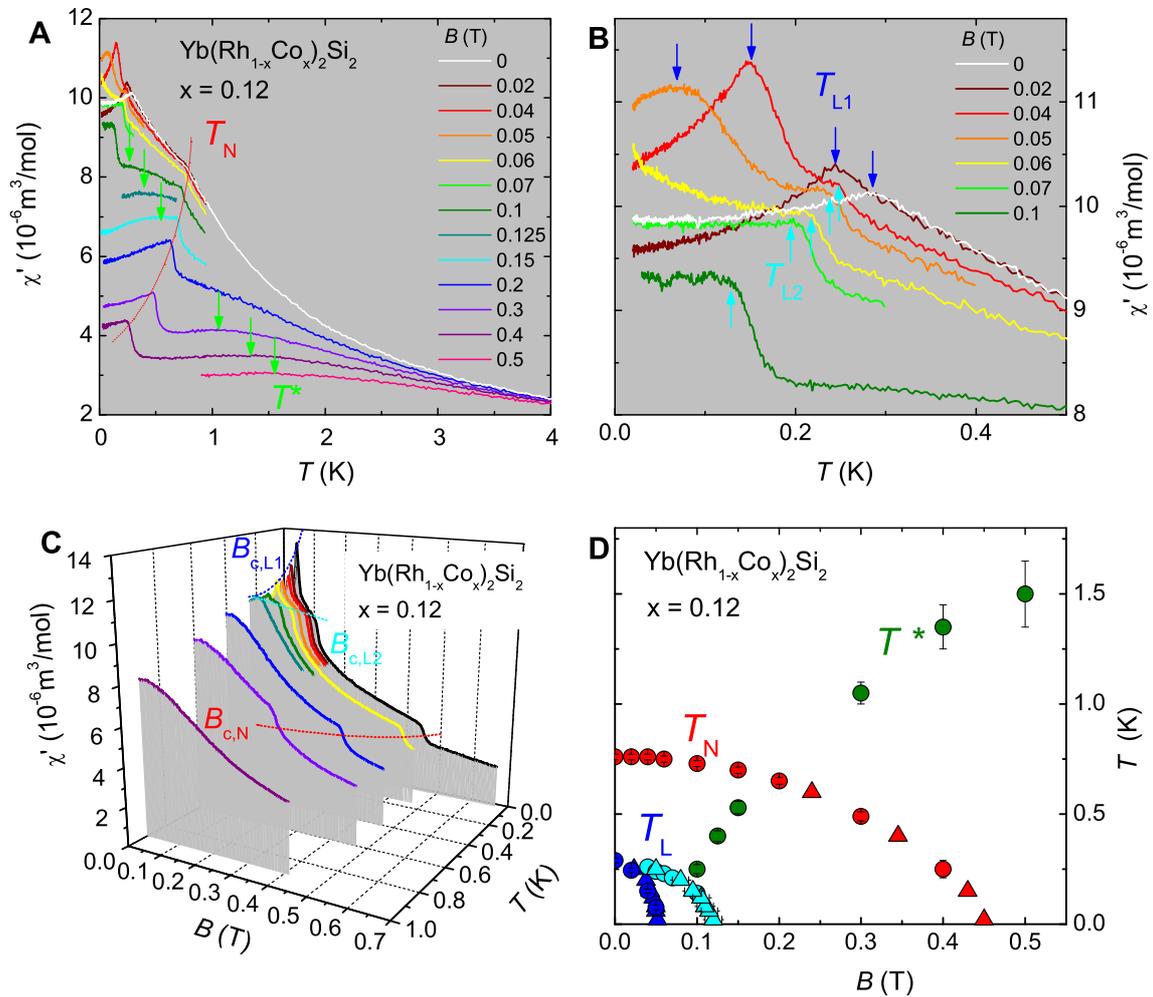


Abb. 4.30: Messergebnisse der Wechselfeldsuszeptibilität von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.88}\text{Co}_{0.12})_2\text{Si}_2$. **A** $\chi'(T)$ in verschiedenen konstanten äußeren Magnetfeldern B . Die Pfeile markieren die breiten Maxima, die T^* zugeordnet werden. Die Linie dient zur Veranschaulichung der Übergänge bei T_N . **B** Vergrößerte Darstellung des Tieftemperaturbereichs aus **A**. Hier sind die Übergänge T_{L1} und T_{L2} durch Pfeile markiert. Ab einem Feld von $B = 0.04$ T wird eine Aufspaltung dieser Anomalie beobachtet. **C** Isotherme Suszeptibilität $\chi'(B)$. Für $T \leq 0.2$ K tritt zunächst ein Maximum auf, gefolgt von zwei Stufen. Das Maximum und die erste Stufe entsprechen jeweils den kritischen Feldern $B_{c,L1}$ und $B_{c,L2}$, die dem unteren Übergang T_L zugeordnet werden können. Die Stufe bei höheren Feldern entspricht dem kritischen Feld $B_{c,N}$ der antiferromagnetischen Phase. Die Anomalien sind zur Veranschaulichung jeweils mit Linien verbunden. **D** B - T -Phasendiagramm erstellt aus den Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität. Kreise kennzeichnen Anomalien in $\chi'(T)$, Dreiecke solche in $\chi'(B)$.

4.4.3 Magnetostraktion und thermische Ausdehnung

Da für undotiertes YbRh_2Si_2 bei Überschreiten von $T^*(B)$ im Magnetostruktionskoeffizienten λ eine Steigungsänderung beobachtet wurde, ist diese Messgröße auch für die dotierten Proben von Interesse. Des Weiteren wird der Hochmagnetfeldbereich betrachtet. Es ist zu erwarten, dass die in Abschnitt 4.2.2 diskutierte Anomalie bei $B_p = 10$ T durch ein verändertes Gittervolumen ihre Position verändert, wie es in Magnetisierungsmessungen unter Druck am undotierten System beobachtet wurde [92].

Iridium-Substitution

Die Magnetostraktion wurde an der mit einem Ir-Gehalt von $x = 0.06$ dotierten, einkristallinen Probe gemessen. Die Längenänderung wurde dabei entlang der [100]-Richtung, also innerhalb der Basalebene des Kristalls bestimmt. Das Magnetfeld wurde in derselben Richtung angelegt. Links in Abb. 4.31 ist der Magnetostruktionskoeffizient bei einer Temperatur von $T = 0.02$ K gezeigt. Es tritt ein Minimum bei $B = (0.05 \pm 0.005)$ T auf. Diese Beobachtung stimmt in der Größe des Feldes mit einer erwarteten Anomalie an der T^* -Linie überein. Statt einer Steigungsänderung wie in YbRh_2Si_2 tritt jedoch ein Minimum auf. Rechts in Abb. 4.31 ist eine Messkurve des undotierten YbRh_2Si_2 bei 70 mK gezeigt, für die kein antiferromagnetischer Übergang mehr beobachtet wird, sondern nur noch die Steigungsänderung bei B_0 . Im Vergleich dazu sind die Magneto-

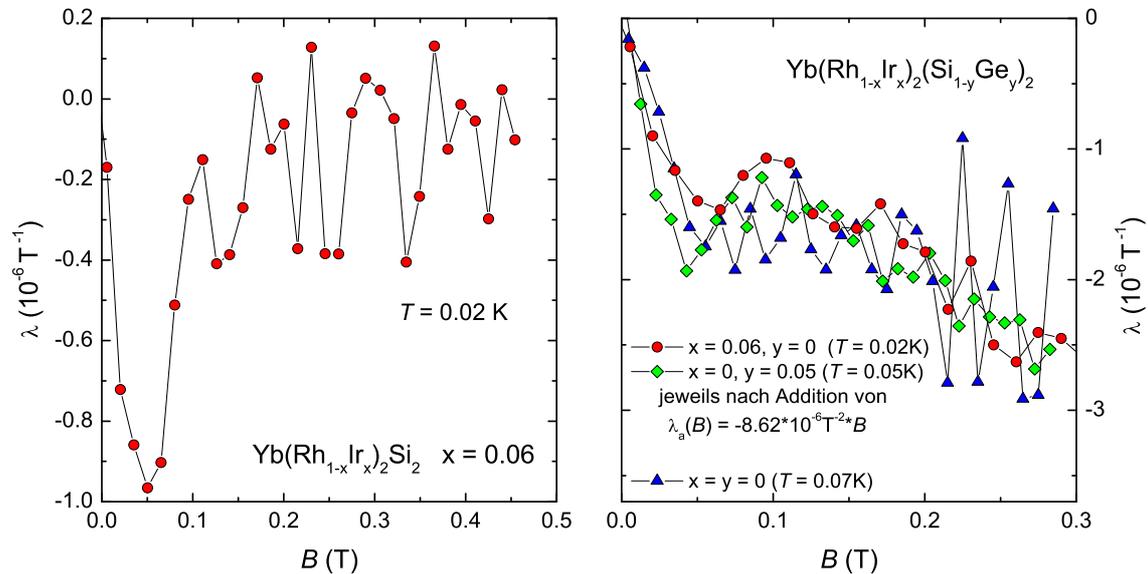


Abb. 4.31: Links: Magnetostruktionskoeffizient λ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.94}\text{Ir}_{0.06})_2\text{Si}_2$ aufgetragen über dem Magnetfeld B bei $T = 20$ mK. Rechts: Vergleich mit den Magnetostruktionskoeffizienten von $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ge}_{0.05})_2$ und YbRh_2Si_2 , wobei für die dotierten Proben ein linearer Beitrag addiert wurde.

striktionskoeffizienten der Ir-dotierten Probe bei 20 mK sowie einer mit nominell 5% Ge dotierten Probe bei 50 mK gezeigt, wobei zu den Daten jeweils ein linearer Beitrag zur Magnetostriktion $\lambda_a(B) = -8.62 \cdot 10^{-6} \text{T}^{-2} \cdot B$ addiert wurde. Auf diese Weise ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den Daten des undotierten Systems. Es stellt sich nun die Frage, wodurch solch ein Beitrag zur Magnetostriktion in dotierten Proben unterdrückt wird. Weiterhin ist zu klären, ob die bei 20 mK in der Ir-dotierten Probe auftretende Anomalie bei höheren Temperaturen beobachtet werden kann und ob sie dem Verlauf von $T^*(B)$ folgt.

Der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient $\alpha(T)$ wurde entlang derselben Richtung wie $\lambda(B)$ bestimmt. In Abb. 4.32 ist links der thermische Ausdehnungskoeffizient als $\alpha(T)/T$ im Nullfeld und in verschiedenen Magnetfeldern bis zu $B = 0.25$ T dargestellt. Im Nullfeld divergiert $\alpha(T)/T$ bei tiefen Temperaturen stärker als logarithmisch. Je höher das angelegte Magnetfeld ist, desto weniger divergent ist das Verhalten, bis hin zu einem nahezu konstanten Verlauf bei tiefer Temperatur in $B = 0.25$ T. Ein konstanter Wert von $\alpha(T)/T$ entspricht LFF-Verhalten. Oberhalb von etwa 0.4 K liegen alle Kurven aufeinander und zeigen einen logarithmischen Verlauf. Die thermische Ausdehnung wurde nur entlang einer Kristallrichtung gemessen. Somit ist die Bestimmung des Volumenausdehnungskoeffizienten und eine Analyse des kritischen Verhaltens bisher nicht möglich. Rechts in Abb. 4.32 ist jedoch ein Vergleich von $\alpha(T)/T$ im Nullfeld von dieser Probe mit einer äquivalenten Messung an $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ge}_{0.05})_2$ gezeigt. Letztere wurde von R. K uchler am von M. Lang speziell f ur die Messung der thermischen

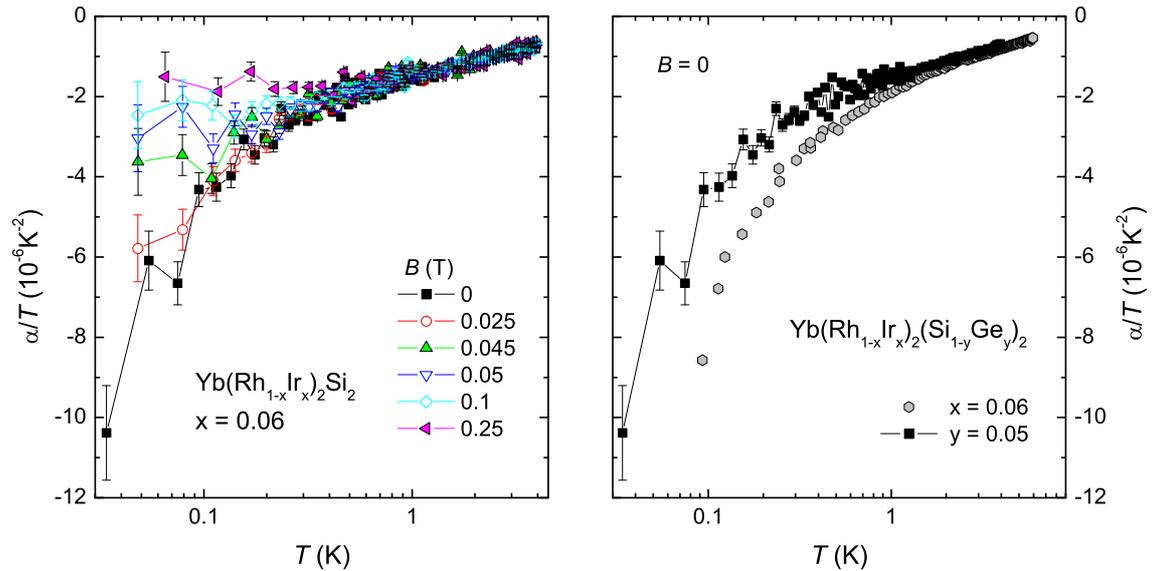


Abb. 4.32: Links: Thermischer Ausdehnungskoeffizient als α/T logarithmisch  ber der Temperatur T aufgetragen. Rechts: $\alpha(T)/T$ von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.94}\text{Ir}_{0.06})_2\text{Si}_2$ und $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ge}_{0.05})_2$ gemessen entlang der Basalebene im Nullfeld.

Ausdehnung aufgebauten Kryostaten durchgeführt [120]. Es ist zu beobachten, dass $\alpha(T)/T$ in der Ir- und der Ge-dotierten Probe in ähnlicher Weise divergiert. Bei der Ge-dotierten Probe ist die Divergenz jedoch etwas stärker ausgeprägt. Die Ursache könnte zum einen die größere Nähe zu einem druckinduzierten QKP sein oder andererseits eine unterschiedliche Entwicklung von $\alpha(T)/T$ entlang der verschiedenen kristallografischen Richtungen, da hier nur eine Richtung betrachtet wurde. Allerdings ist das Verhältnis der Gitterparameter c/a mit 2.456 für die Ir-dotierte Probe (bestimmt von C. Krellner) und 2.459 für die Ge-dotierte [121] nahezu gleich.

Kobalt-Substitution

An einem Einkristall mit einem Co-Gehalt von $x = 0.07$ wurden Magnetostriktion und thermische Ausdehnung gemessen. Die Längenänderung wurde dabei entlang der [100]-Richtung, also innerhalb der Basalebene des Kristalls, bestimmt. In derselben Richtung wurde das Magnetfeld angelegt.

Abb. 4.33 zeigt links die relative Längenänderung $\Delta L/L$ als Funktion kleiner Magnetfelder B bei verschiedenen Temperaturen T . Am kritischen Feld B_c der antiferromagnetischen Phase tritt bei Temperaturen unterhalb von $T_N = 0.41$ K ein Maximum auf. Die Messkurve bei $T = 0.5$ K zeigt hingegen einen Wendepunkt bei höherem Feld. Rechts in Abb. 4.33 ist der Magnetostruktionskoeffizient $\lambda(B)$ für dieselben Messdaten aufgetragen. Für $T < T_N$ weist $\lambda(B)$ jeweils am kritischen Feld $B_{c,N}$ der antiferromagnetischen Phase einen sprunghaften Vorzeichenwechsel auf. Für $B < B_{c,N}$ ist keine

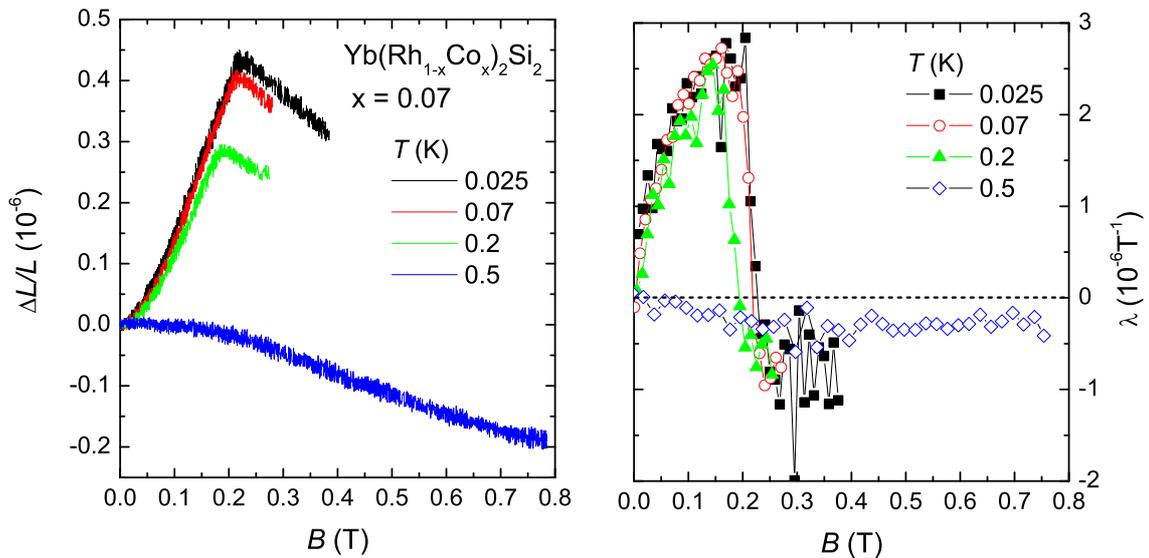


Abb. 4.33: Magnetostriktion von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$. Links: Relative Längenänderung $\Delta L/L$ über dem Magnetfeld B für vier Temperaturen. Rechts: Magnetostruktionskoeffizient $\lambda(B)$.

weitere Anomalie zu erkennen, weder am kritischen Feld der Tieftemperaturphase, noch beim Überschreiten von der Linie $T^*(B)$. Dies ist vermutlich auf die starke Ausprägung der Anomalie am kritischen Feld $B_{c,N}$ zurückzuführen. Für $T = 0.5$ K ergibt sich ein Minimum in $\lambda(B)$, dessen Position auf Grund der schwachen Ausprägung dieser Anomalie nur grob abgeschätzt werden kann mit $B_0 = (0.32 \pm 0.05)$ T. Dieses Feld ist deutlich größer als das durch die Wechselfeldsuszeptibilität $\chi'(T)$ bestimmte, zu $T^*(B)$ korrespondierende Feld von $B = 0.15$ T bei $T = (0.5 \pm 0.2)$ K.

Das Auftreten eines Minimums in $\lambda(B)$ legt nahe, eine Analyse vorzunehmen, wie sie für die Ir-dotierte Probe durchgeführt wurde. Es zeigt sich jedoch, dass es für die Co-dotierte Probe nicht möglich ist, durch Addition eines linearen Beitrags zur Magnetostraktion, diese Messkurve auf die des undotierten Systems bei $T = 0.5$ K abzubilden. Vermutlich ist die Annahme, dass es sich bei dem in den dotierten Proben unterdrückten Beitrag um eine lineare Funktion handelt, nur als Näherung für sehr kleine Magnetfelder gültig. Da für die Co-dotierte Probe auf Grund der höheren Temperatur ein größerer Feldbereich betrachtet werden muss, zeigen sich dementsprechend bereits Abweichungen vom angenommenen linearen Verlauf des unterdrückten Beitrags.

Die lineare thermische Ausdehnung ist in Abb. 4.34 gezeigt. Der antiferromagnetische Phasenübergang ist sowohl in $\alpha(T)$ (links) als auch in $\alpha(T)/T$ (rechts) in Form eines Sprungs von negativen zu positiven Werten bei abnehmender Temperatur klar zu erkennen. Solch ein Vorzeichenwechsel bei T_N ist charakteristisch für Systeme in der Nähe eines QKPs und ist auf die Akkumulation von Entropie zurückzuführen [122].

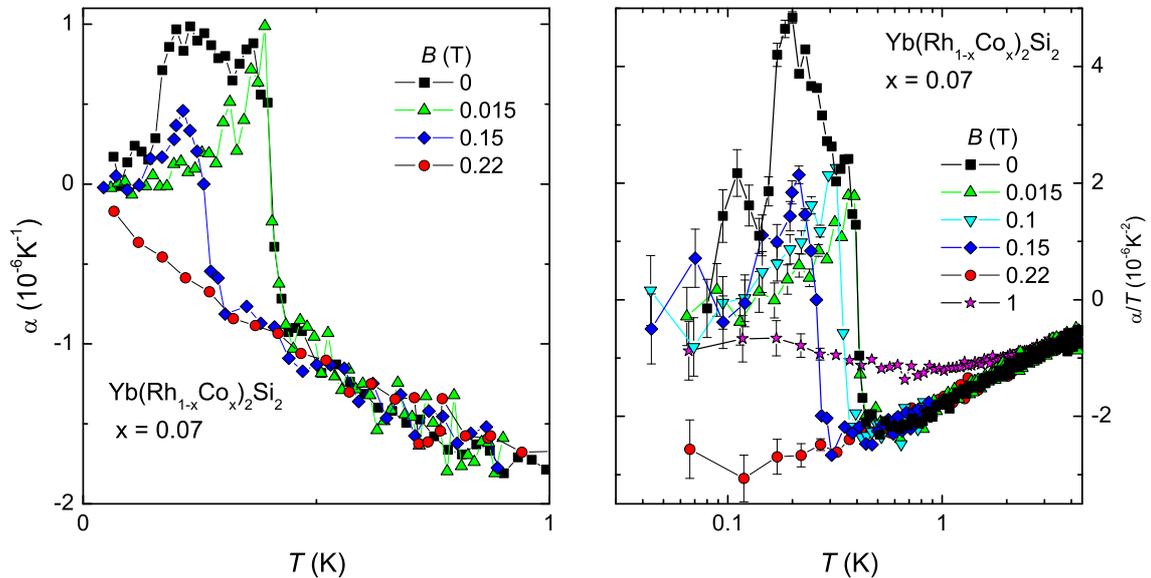


Abb. 4.34: Thermische Ausdehnung von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$. Links: Ausdehnungskoeffizient α über der Temperatur T in verschiedenen Feldern. Rechts: α/T aufgetragen über einer logarithmischen Temperaturskala.

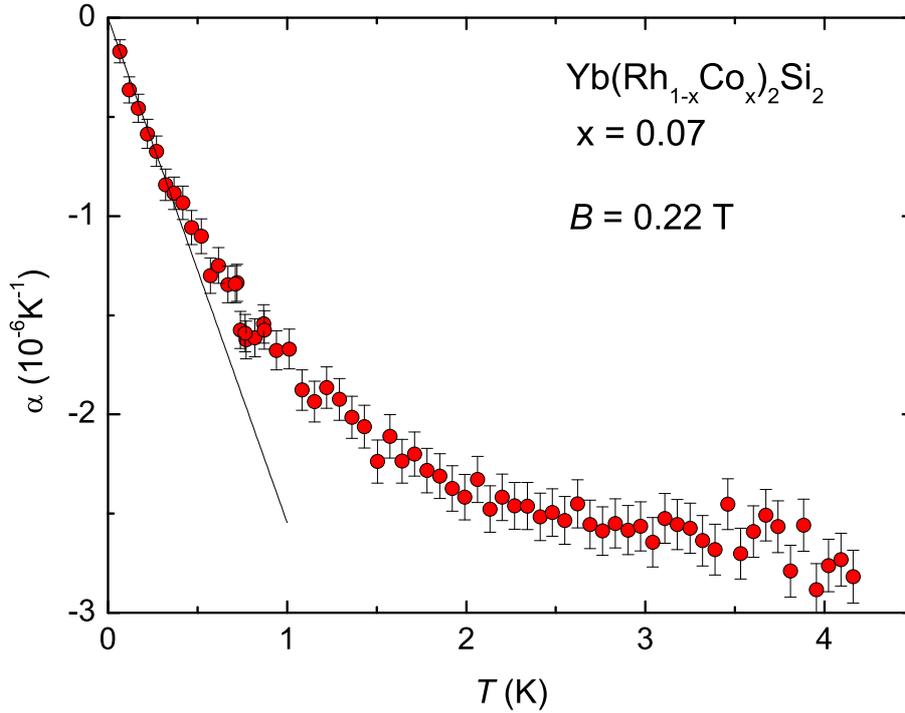


Abb. 4.35: Thermischer Ausdehnungskoeffizient α über der Temperatur T für $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$ gemessen im kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase $B_{c,N} = 0.22 \text{ T}$. Die durchgezogene Linie kennzeichnet eine lineare Anpassung mit einer Steigung von $-2.55 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$ an die Daten unterhalb von 0.5 K .

Mit zunehmender Feldstärke wird T_N zu tieferer Temperatur verschoben. Ungewöhnlich ist die Beobachtung eines weiteren Anstiegs von $\alpha(T)$ unterhalb von T_N in der Nullfeldmessung, gefolgt von einem sprunghaften Abfall auf kleinere Werte bei etwa 0.2 K . Diese Anomalie ist bereits im Feld $B_{c,L1} = 0.015 \text{ T}$, das durch Messung von $\chi'(B)$ bestimmt wurde, unterdrückt. Somit steht dieser Effekt möglicherweise im Zusammenhang mit dem Auftreten der Tieftemperaturphase. Jedoch entspricht die Temperatur dieses sprunghaften Abfalls nicht T_L . In $\alpha(T)/T$ ist oberhalb von T_N eine logarithmische Temperaturabhängigkeit zu beobachten. Am kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase $B_{c,N} = 0.22 \text{ T}$ zeigt $\alpha(T)/T$ jedoch kein divergentes Verhalten, sondern scheint bei tiefsten Temperaturen einen konstanten Wert anzunehmen. Abb.4.35 zeigt diese Messkurve als $\alpha(T)$ über T . Hier kann unterhalb von $T = 0.5 \text{ K}$ ein linearer Verlauf mit einer Steigung von $-2.55 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$ angepasst werden. Dies spricht für den Eintritt in den LFF-Bereich. Das bedeutet, dass entweder die Messung nicht genau am kritischen Feld erfolgte oder dass an dieser Stelle kein QKP auftritt. Für $T > 0.5 \text{ K}$ lassen sich im Rahmen der Fehlerbalken sowohl ein logarithmischer Verlauf als auch eine Funktion gemäß $\alpha(T) = aT + b\sqrt{T}$ anpassen, wobei zu beachten ist, dass der Anpassungsbereich kleiner als eine Dekade in der Temperatur ist. Im Magnetfeld von

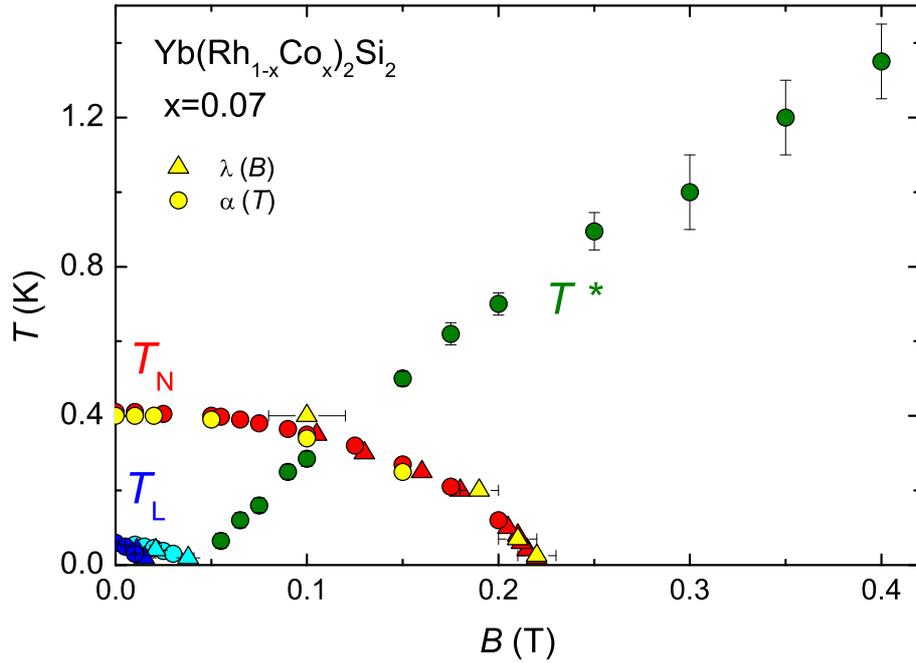


Abb. 4.36: B - T -Phasendiagramm von $\text{Yb}(\text{Rh}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{Si}_2$. Neben den in der Wechselfeldsuszeptibilität beobachteten Übergängen sind die Anomalien in $\lambda(B)$ und $\alpha(T)$ an der antiferromagnetischen Phasengrenzlinie T_N eingetragen.

1 T weicht $\alpha(T)/T$ bereits bei 2 K von einem logarithmischen Verlauf ab und ist ab etwa 1 K bis zu tiefen Temperaturen nahezu konstant.

Das durch die Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität aufgestellte B - T -Phasendiagramm aus Abb. 4.29 kann um die Anomalien des Magnetostruktionskoeffizienten $\lambda(B)$ und des thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha(T)$ an der antiferromagnetischen Phasengrenzlinie ergänzt werden, wie es in Abb. 4.36 gezeigt ist. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung zu den Ergebnissen der Wechselfeldsuszeptibilität.

Magnetostruktion im hohen Magnetfeld

An den beiden dotierten Proben wurde, entsprechend zu Abschnitt 4.2.2 für undotiertes YbRh_2Si_2 , die Magnetostruktion im hohen Magnetfeld bestimmt. In Abb. 4.37 sind die relative Längenänderung $\Delta L/L$ sowie der Magnetostruktionskoeffizient λ entlang der Basalebene bis zu $B = 18$ T für fünf verschiedene Proben bei $T = 0.02$ K gezeigt. Es werden zunächst zwei undotierte YbRh_2Si_2 -Proben verglichen, die verschiedene Restwiderstandsverhältnisse (RRR) aufweisen. Die Messung an der Probe mit einem RRR von etwa 130 entspricht der in Abschnitt 4.2.2 gezeigten. Die Messung an der anderen Probe mit $\text{RRR} \approx 60$ wurde von F. Weickert durchgeführt und ist in Ref. [123] publiziert. Die relative Längenänderung $\Delta L/L$ zeigt, dass sich die reinere Probe im Magnetfeld etwas stärker zusammenzieht. Bei 10 T tritt in beiden Proben die in Abschnitt

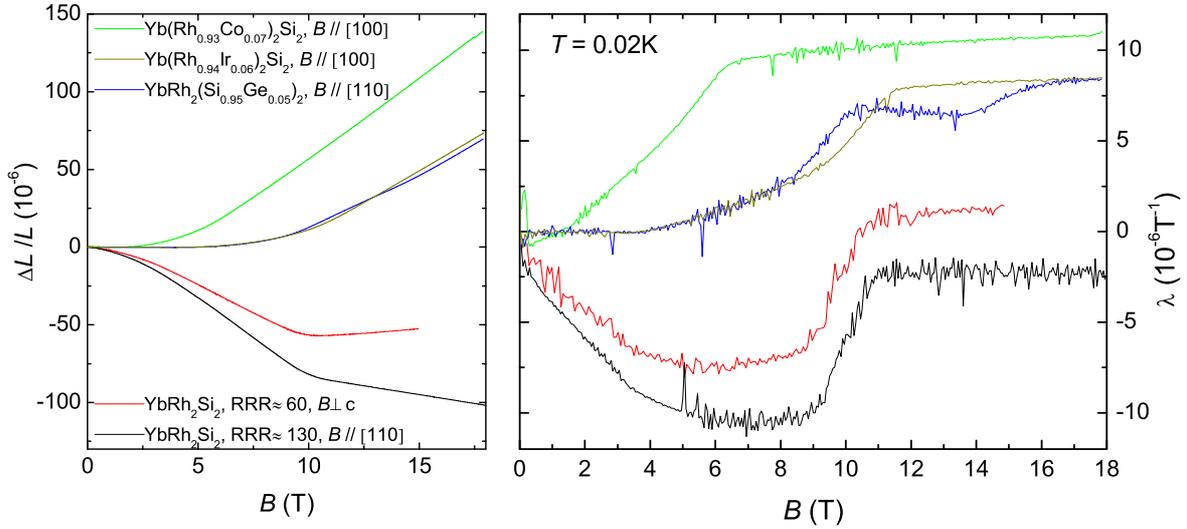


Abb. 4.37: Relative Längenänderung $\Delta L/L$ (links) und Magnetostruktionskoeffizient λ (rechts) als Funktion von B von fünf verschiedenen YbRh_2Si_2 -Proben: zwei undotierte, eine Ge-, eine Ir-, und eine Co-dotierte Probe.

4.2.2 beschriebene Anomalie auf. Jedoch beginnt die qualitativ schlechtere Probe sich ab diesem Feld wieder auszudehnen. Des Weiteren wurden drei dotierte Proben gemessen: eine mit 5% Ge auf dem Si-Platz dotierte (gemessen von F. Weickert) sowie die in diesem Abschnitt bereits betrachteten Proben mit Ir- bzw. Co-Dotierung. Die relative Längenänderung verläuft für die Ge- und die Ir-dotierte Probe sehr ähnlich. Allerdings treten große Unterschiede im Vergleich zum undotierten YbRh_2Si_2 auf. Die relative Längenänderung $\Delta L/L$ bleibt zunächst nahezu konstant. Ab etwa 3.5 T zeigt sich im Magnetostruktionskoeffizienten $\lambda(B)$ ein leichter Anstieg. Diese Anomalie ist auch in den undotierten Proben beim gleichen Feld in Form einer leichten Steigungsänderung zu erkennen. Während die undotierten Proben ab etwa 10 T einen konstanten Wert in λ annehmen, stellt sich λ in der Ir-Probe erst bei einem etwas höheren Feld auf einen konstanten, positiven Wert ein. Da die Anomalie bei 10 T im undotierten System unter hydrostatischem Druck zu kleineren Feldern verschiebt [92], ist dieser Effekt nicht unerwartet, denn die Ir-Dotierung entspricht einem leichten negativen Druck. Die Ge-Probe weist im hohen Feld mehrere Anomalien in λ auf. Möglicherweise enthielten einzelne Teile der verwendeten Probe unterschiedlich viel Ge. Von der Tendenz her ist das Verhalten aber mit dem der Ir-Probe vergleichbar. Die mit Co dotierte Probe weist eine noch stärkere Längenausdehnung als die anderen beiden dotierten Proben auf. $\lambda(B)$ zeigt für die Co-Probe zunächst den stark ausgeprägten antiferromagnetischen Phasenübergang, gefolgt von einem Anstieg zu einem großen, positiven Wert, der ab etwa $B = 6$ T zu höheren Feldern hin kaum noch zunimmt. Ausgehend davon, dass die Co-Dotierung von 7% einem hydrostatischen Druck von 1 GPa entspricht, ist dieses

Feld konsistent zu den Beobachtungen an YbRh_2Si_2 unter Druck.

Auffällig ist die in allen dotierten Proben beobachtete positive Längenänderung als Funktion des Magnetfeldes entlang der Basalebene des Kristalls im Gegensatz zur negativen Längenänderung in undotiertem YbRh_2Si_2 . Dieses Verhalten der dotierten Proben im hohen Magnetfeld erklärt, warum bereits in kleinen Feldern die Anomalie an der T^* -Linie eine andere Form aufweist als im undotierten System. Offen ist, wodurch genau dieses Verhalten verursacht wird. Offensichtlich hat die Probenqualität, also die Anzahl von Störstellen im Kristall, einen großen Einfluss auf die Magnetostriktion. Möglicherweise ziehen sich die dotierten Proben entlang der magnetisch härteren c -Richtung deutlich stärker zusammen, so dass der Volumeneffekt, wie für Yb-Systeme zu erwarten, negativ ist.

4.5 Diskussion

Unter Berücksichtigung der Ergebnisse am undotierten System sollen nun die Ergebnisse dieses Kapitels zusammenfassend betrachtet werden und das beobachtete Verhalten diskutiert werden.

Die Messungen an Ir- und Co-dotiertem YbRh_2Si_2 haben gezeigt, dass der durch die Dotierung erzeugte Volumeneffekt die erwartete Wirkung auf die Übergangstemperatur der antiferromagnetischen Phase hat. In Abb. 4.38 ist ein Phasendiagramm gezeigt, in dem die Temperatur T über dem Einheitszellenvolumen V aufgetragen ist. In diesem Phasendiagramm sind die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse (Dreiecke) zusammen mit solchen aus den Ref. [22,97] (übrige Symbole) dargestellt. Für die Ir-, Co- und La-dotierten Proben wurde V mittels Röntgendiffraktometrie bestimmt. Die Punkte der La-dotierten Proben entsprechen einer Dotierung mit 10, 15, 20 bzw. 30% La. Zu den Druckwerten der Übergangstemperaturen von undotiertem und Ge-dotiertem YbRh_2Si_2 unter Druck im p - T -Phasendiagramm gemäß Abb. 4.5 wurden über den Kompressionsmodul die entsprechenden Einheitszellenvolumen berechnet. Die Fehlerbalken bezüglich des Gittervolumens ergeben sich hier aus dem Fehler des Kompressionsmoduls $K = (198 \pm 15)$ GPa [124].

Es zeigt sich, dass die Übergangstemperaturen T_N und T_L der Co-dotierten Proben gut mit den bisherigen Resultaten an YbRh_2Si_2 und $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ge}_{0.05})_2$ unter hydrostatischem Druck übereinstimmen. Für 12% Co ist jedoch für T_N eine leichte Abweichung zu höherer Temperatur gegenüber den Druckdaten zu beobachten. Insgesamt lässt sich die Aussage treffen, dass für geringe Co-Konzentrationen der Einfluss auf die Übergangstemperaturen einem reinen Volumeneffekt gleich kommt. Das V - T -Phasendiagramm zeigt außerdem, dass die Phasengrenzlinie der antiferromagnetischen Phase sowie die Linie des Übergangs in den LFF-Bereich mit positiver Krümmung auf einen druckinduzierten QKP zulaufen. Der Verlauf von T_N lässt sich am besten mit einer Funktion $T_N \sim (V_c - V)^{4/3}$ anpassen. Nach der Hertz-Millis-Theorie wird für den

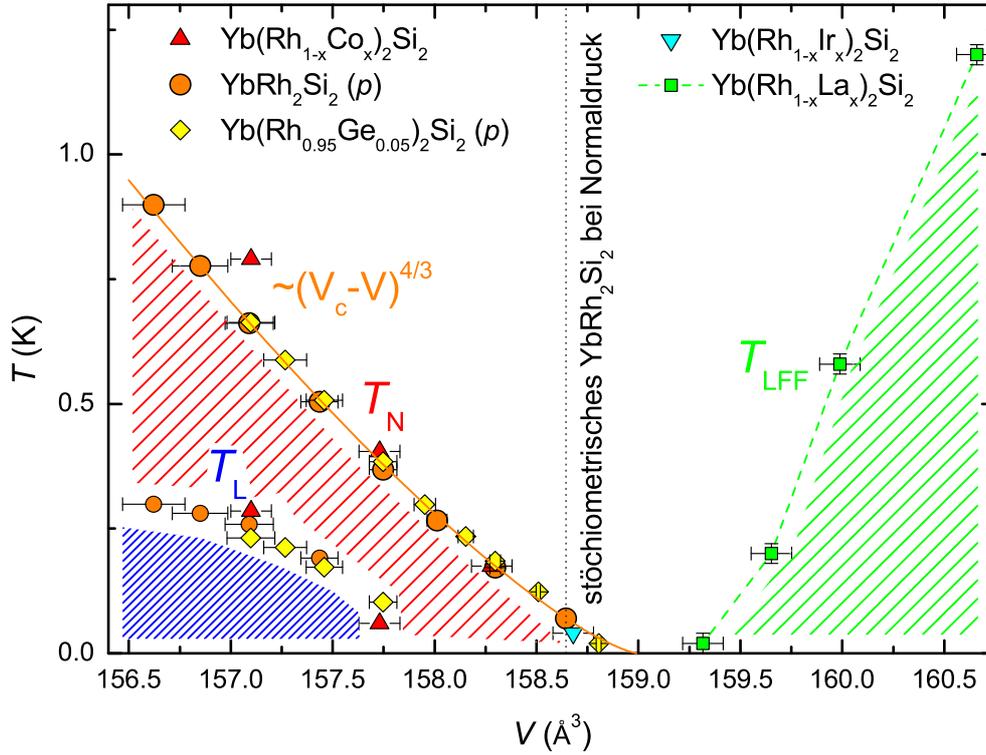


Abb. 4.38: Phasendiagramm, in dem die Temperatur T über dem Gittervolumen V der Einheitszelle aufgetragen ist. Die gepunktete Linie bei $V = 158.645 \text{ \AA}^3$ markiert die Lage des undotierten YbRh_2Si_2 . Es sind zum einen die von Druck in Gittervolumen umgerechneten Punkte aus dem p - T -Phasendiagramm entsprechend Abb. 4.5 eingetragen. Zum anderen sind die Übergangstemperaturen verschiedener dotierter Proben bei ihrem jeweiligen Gittervolumen eingetragen. La-Dotierung gemessen von F. Weickert [22]. Volumenangaben zu Co- und Ir-Dotierungen wurden von C. Krellner bestimmt. Die durchgezogene Linie bei T_N ist eine Anpassung der Funktion $(V_c - V)^{4/3}$, wobei V_c das kritische Volumen zur Unterdrückung von T_N kennzeichnet.

Verlauf von Phasengrenzlinien als Funktion eines externen Parameters x in der Nähe eines QKPs die Abhängigkeit

$$T_c \sim (x_c - x)^{\frac{1}{1 + \frac{d-z}{2}}} \quad (4.8)$$

erwartet [125], wobei T_c die kritische Temperatur, x_c der kritische externe Parameter und d die Dimensionalität des Systems ist. Es gilt $z = 2$ für Antiferromagneten und $z = 3$ für Ferromagneten. Im Fall von YbRh_2Si_2 wäre demnach unter der Annahme, dass $d = 3$ und $z = 2$ gilt, ein Exponent von $2/3$ zu erwarten. Der Exponent $4/3$ entspricht dem nicht. Ausgehend davon, dass d und z ganzzahlig sein müssen, wäre auch ein durch (negativen) Druck erzeugter QKP in YbRh_2Si_2 nicht im Rahmen der Hertz-Millis-Theorie beschreibbar.

Die Phasengrenzlinie T_L weist eine negative Krümmung auf und scheint für $V \leq 158 \text{ \AA}^3$ zu null zu extrapolieren. Allerdings zeigt die Suszeptibilität der Probe mit 3% Co-Dotierung und einem Einheitszellenvolumen von $V = 158.28 \text{ \AA}^3$ unterhalb von T_N einen weiteren Anstieg, analog zu den höher dotierten Proben, in denen T_L beobachtet werden konnte. Deshalb könnte in dieser Probe unterhalb von 20 mK ein Übergang T_L stattfinden. Weiterhin wurden kürzlich an undotiertem YbRh_2Si_2 Messungen der Magnetisierung $M(T)$ bis hinab zu $T = 1 \text{ mK}$ durchgeführt, in denen ein Maximum bei 2 mK beobachtet wurde [126]. Aus diesen Gründen ist der genaue Verlauf der Phasengrenzlinie von T_L bei sehr tiefen Temperaturen nicht endgültig geklärt.

Während die magnetischen Phasen deutlich von der jeweiligen Dotierung beeinflusst werden, haben die Ergebnisse der Wechselfeldsuszeptibilität an den mit Ir bzw. Co dotierten Proben außerdem gezeigt, dass die Position der T^* -Linie, unabhängig von der Dotierung, nahezu unverändert bleibt. In Abb. 4.39 sind die aus der Wechselfeldsuszeptibilität ermittelten T^* -Linien aller untersuchter Proben gemeinsam im B - T -Phasendiagramm eingetragen. Es ist ein leichter Trend von einem flacheren Verlauf mit kleinerem kritischem Feld $B_0(T = 0)$ in den Ir-dotierten Proben hin zu einem etwas steileren Verlauf mit höherem kritischem Feld in den Co-dotierten Proben zu be-

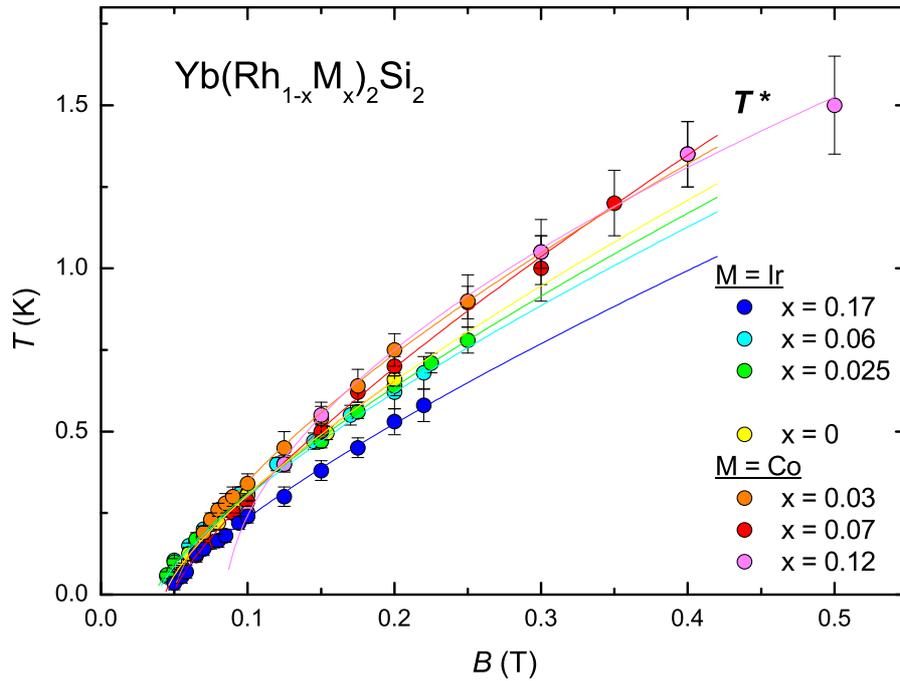


Abb. 4.39: Positionen $T_{max}(B)$ der breiten Maxima in $\chi'(T)$ im B - T -Phasendiagramm für undotiertes YbRh_2Si_2 und die je drei untersuchten Ir- bzw. Co-Dotierungen. Die sich daraus ergebenden Linien werden mit $T^*(B)$ assoziiert. Die durchgezogenen Linien entsprechen Anpassungen gemäß $T_{max} \sim (B_0 - B)^\epsilon$, deren Parameter in Tabelle 4.2 aufgelistet sind.

Yb(Rh _{1-x} M _x) ₂ Si ₂			
M	x	B ₀ (T)	ε
Ir	0.17	0.045 ± 0.002	0.77 ± 0.03
Ir	0.06	0.039 ± 0.002	0.74 ± 0.02
Ir	0.025	0.037 ± 0.001	0.76 ± 0.02
	0	0.044 ± 0.002	0.74 ± 0.03
Co	0.03	0.049 ± 0.002	0.69 ± 0.02
Co	0.07	0.048 ± 0.002	0.78 ± 0.02
Co	0.12	0.085 ± 0.006	0.55 ± 0.04

Tabelle 4.2: Parameter der Anpassungen von $T_{max} \sim (B - B_0)^\varepsilon$ an die breiten Maxima von $\chi'(T)$ im Phasendiagramm.

obachten. An die Daten wurde jeweils eine Funktion $T_{max} \sim (B_0 - B)^\varepsilon$ angepasst. Die entsprechenden Parameter sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Für 12% Co-Dotierung weichen die Parameter deutlich von denen der anderen Proben ab. Mögliche Ursachen sind entweder eine Verschiebung der Maxima in $\chi'(T)$ innerhalb der antiferromagnetischen Phase auf Grund einer Überlagerung mit den Übergängen in die Tieftemperaturphase oder der Einfluss von Unordnung, der mit zunehmender Dotierung an Bedeutung gewinnt. Eine weitere bemerkenswerte Auffälligkeit ergibt sich aus der Anpassung für undotiertes YbRh₂Si₂. Das dadurch ermittelte Feld $B_0 = 0.044 \pm 0.002$ ist kleiner als das kritische Feld der antiferromagnetischen Phase. Diese Beobachtung deutet darauf hin, dass sich die beiden Linien $T^*(B)$ und $T_N(B)$ kreuzen könnten. Detaillierte Messungen des Magnetwiderstandes bei tiefen Temperaturen zeigen außerdem, dass der dort auftretende Wendepunkt für $T < T_N$ durch die Anomalie des Phasenübergangs zu höherem Feld verschoben wird [127].

Breite Maxima in der Wechselfeldsuszeptibilität können verschiedene Ursachen haben. So wird solches Verhalten auch bei metamagnetischem quantenkritischem Verhalten erwartet [128]. Allerdings wird dort direkt am kritischen Feld ein scharfer Peak erwartet, wie es beispielsweise in dem quasi-zweidimensionalen System Sr₃Ru₂O₇ beobachtet wurde [129]. Die breiten Maxima in der Suszeptibilität in allen hier untersuchten dotierten YbRh₂Si₂-Proben werden zwar mit abnehmender Temperatur schärfer, zeigen jedoch in keiner Weise einen scharf ausgeprägten Peak. Des Weiteren unterscheiden sie sich in ihrer Signatur nicht von denen im undotierten System. Auch schon in Messungen von $\chi'(T)$ an Ge-dotiertem YbRh₂Si₂ wurden vergleichbare Beobachtungen gemacht [95]. Somit ist davon auszugehen, dass in allen hier untersuchten Proben derselbe Mechanismus für das Auftreten dieser Maxima verantwortlich ist. Die durch die Dotierung auftretende Volumenänderung des Gitters hat dabei nahezu keinen Einfluss auf die Positionen der Maxima.

Im Anschluss an die Messungen der Suszeptibilität wurden an Proben mit 6% Ir-

bzw. 7% Co-Dotierung Messungen der Magnetisierung $M(B)$ [130] und des Magnetwiderstandes $\rho(B)$ [127] durchgeführt. Wie auf Grund der bereits erläuterten Verknüpfung von $\chi'(T)$ mit $M(B)$ erwartet, zeigt die Magnetisierung, wie schon in undotiertem YbRh_2Si_2 , auch in den dotierten Proben eine Steigungsänderung, welche mit zunehmender Temperatur zu höheren Feldern verschiebt und an Schärfe verliert. Im Phasendiagramm stimmen die Positionen gut mit den aus $\chi'(T)$ bestimmten Werten überein. Auch $\rho(B)$ zeigt die erwarteten Wendepunkte, wie sie im undotierten System auftreten, in ebenfalls guter Übereinstimmung zu den thermodynamischen Größen. Weiteren Aufschluss sollten insbesondere Messungen des Hall-Effekts geben, da dieser unter Umständen ein direktes Maß für das Fermi-Volumen darstellt. Allerdings reagiert der Hall-Widerstand ρ_H empfindlich auf Verunreinigungen, wie beispielsweise die Probenabhängigkeit von $\rho_H(T)$ in undotiertem YbRh_2Si_2 zeigt [131].

Von großem Interesse sind außerdem magnetfeldabhängige Messungen an undotiertem YbRh_2Si_2 unter Druck, um zu überprüfen, ob dem durch Co-Dotierung erzielten Effekt tatsächlich nur die Änderung des Gittervolumens zu Grunde liegt, oder ob außerdem die durch Dotierung verursachte Unordnung einen wichtigen Einfluss auf das Phasendiagramm hat. In der Magnetisierung $M(B)$ von YbRh_2Si_2 in kleinen Feldern unter Druck, die im Inset des rechten Teilbildes von Abb. 4.3 dargestellt ist, zeigt die bei $p = 1.28$ GPa gemessene Kurve unterhalb des kritischen Feldes der antiferromagnetischen Phase $B_{c,N}$ eine zusätzliche Steigungsänderung. Diese Anomalie wurde als der Übergang in die Tieftemperaturphase T_L interpretiert [92]. Unter Berücksichtigung der hier vorgestellten Ergebnisse am Co-dotierten System ist jedoch auch vorstellbar, dass sie auf den Crossover an der T^* -Linie zurückzuführen ist. Eine Analyse der Anomalie bei verschiedenen Temperaturen sollte dies klären. Würde sie mit zunehmender Temperatur zu höherem Feld verschieben, wäre klar, dass sie dem Crossover bei T^* entspricht. Dass bei einem Druck von 0.64 GPa keine Steigungsänderung unterhalb von $B_{c,N}$ beobachtet wurde, ließe sich in diesem Fall damit begründen, dass die beiden Anomalien zu nahe beieinander lägen, um sie getrennt voneinander auflösen zu können.

Das Verhalten der Magnetostriktion in den dotierten Proben gibt auf Grund der unerwarteten Ausdehnung im Magnetfeld nicht direkt Aufschluss über das Verhalten der T^* -Linie. Hier wären Messungen der Längenänderung entlang der c -Richtung bei in der Basalebene angelegtem Feld nötig, um Anisotropieeffekte durch Bestimmung des Volumenmagnetostruktionskoeffizienten auszugleichen.

An Hand der übrigen Messergebnisse ist aber davon auszugehen, dass die T^* -Linie auch in den Phasendiagrammen der dotierten Proben existiert und zumindest im Bereich kleiner Drücke bzw. Dotierungen unabhängig vom Gittervolumen ist. Auf Grund der Ähnlichkeit der beobachteten Anomalien zu denen in undotiertem YbRh_2Si_2 ist anzunehmen, dass das Auftreten der T^* -Linie dieselbe Ursache hat. Wie in Abschnitt 4.3 diskutiert, kann diese Linie als Übergang von einem Zustand weitestgehend lokalisierter f -Elektronen im kleinen Feld zu einem Zustand itineranter f -Elektronen im

höheren Feld interpretiert werden. Im Letzteren tragen die f -Elektronen auf Grund der Kondo-Abschirmung zur Fermi-Fläche bei. Für $T = 0$ wird daher ein Sprung des Fermi-Volumens erwartet. Wird dieses Modell auf die dotierten Proben übertragen, zeigt sich, dass dieser Effekt unabhängig von der Existenz und Größe einer magnetischen Phase aufzutreten scheint. In den Ir-dotierten Proben tritt die T^* -Linie auch ohne die Nähe zu einer magnetischen Phase auf. In den Co-dotierten Proben findet der Crossover bei $T^*(B)$ auch innerhalb der antiferromagnetischen Phase statt. Es ist zu klären, ob und an welcher Stelle ein magnetfeldinduzierter QKP in diesen Proben auftritt. Der Punkt, an dem die T^* -Linie zu null geht, könnte als lokaler QKP betrachtet werden, unter der Annahme, dass hier die schweren Quasiteilchen aufgebrochen werden. Da das Einsetzen magnetischer Ordnung jedoch nicht die Ursache ist, käme zur Interpretation möglicherweise das unter Punkt (3) in Abschnitt 3.3.2 vorgestellte Modell in Frage. Dort wird ein mit einem Metall-Isolator-Übergang vergleichbarer Übergang der f -Elektronen angenommen [54]. Weiterhin könnte ein antiferromagnetischer QKP in den Co-dotierten Proben dort auftreten, wo die magnetische Phase unterdrückt wird. Da dies jeweils auf der Seite der T^* -Linie geschieht, auf der das Fermi-Volumen als groß angenommen wird, könnte solch ein QKP im Bild des Hertz-Millis-Szenarios beschreibbar sein. Zusätzlich stellt sich dadurch die Frage, ob sich bei T^* die Natur der magnetisch geordneten Phase ändert.

In der mit 7% Co dotierten Probe zeigt die lineare thermische Ausdehnung am kritischen Feld B_c keine Divergenz. Es müsste jedoch zuerst die Volumenausdehnung bestimmt werden, um eine Divergenz des Volumenausdehnungskoeffizienten und damit einen QKP ausschließen zu können. Des Weiteren sind an dieser Stelle Messungen der spezifischen Wärme und des elektrischen Widerstandes von Interesse, da im Rahmen der Hertz-Millis-Theorie Vorhersagen für den Verlauf dieser Größen in der Nähe eines QKPs gemacht werden.

Eine weitere Vorhersage im Rahmen der Hertz-Millis-Theorie, die im Zusammenhang mit dem V - T -Phasendiagramm bereits vorgestellt wurde, ist der funktionelle Verlauf der Phasengrenzlinie magnetischer Phasen gemäß Gl. (4.8). Im B - T -Phasendiagramm entspricht das Magnetfeld B dem externen Parameter x . Demnach sollte für einen Spindichtewellen-Antiferromagneten mit dreidimensionalen quantenkritischen Fluktuationen

$$T_N \sim (B_c - B)^{2/3} \quad (4.9)$$

in der Nähe des QKP gelten [132]. In Abb. 4.40 **A** sind die Phasengrenzlinien $T_N(B)$ für undotiertes YbRh_2Si_2 sowie für verschiedene Co-dotierte Proben im B - T -Phasendiagramm gezeigt. Außerdem ist die T^* -Linie eingezeichnet. Verwendet wurde dazu exemplarisch die Anpassung, die sich für die Daten der 7% Co-Probe ergeben hat. Falls an der T^* -Linie ein Übergang zu itinerantem Antiferromagnetismus stattfindet, sollten die Phasengrenzlinien in den Co-dotierten Proben auf der rechten Seite der T^* -Linie dem vorhergesagten Verlauf nach Gl. (4.9) folgen. Die Anpassungen wurden

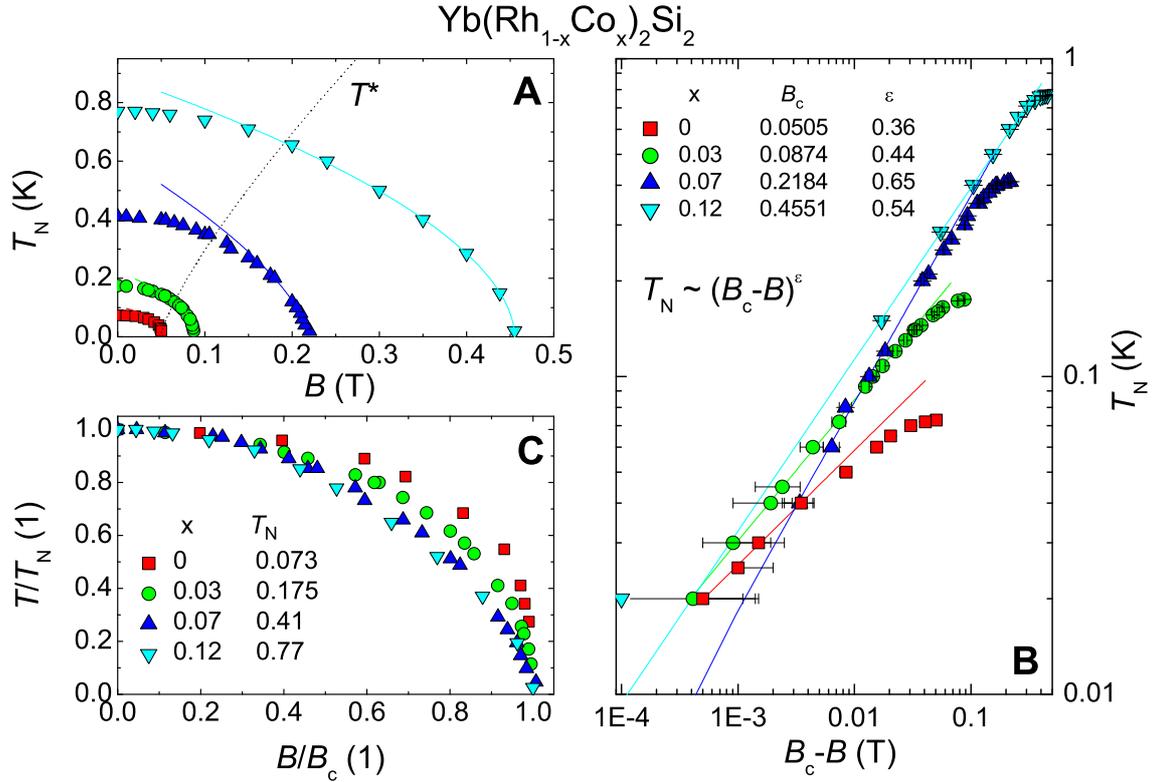


Abb. 4.40: Phasengrenzenlinien der antiferromagnetischen Ordnung von undotiertem und Co-dotiertem YbRh₂Si₂. **A** Phasengrenzenlinien im B - T -Phasendiagramm. Die gepunktete Linie kennzeichnet T^* . Die durchgezogenen Linien ergeben sich aus Anpassungen der Form $T_N \sim (B_c - B)^\epsilon$ für Datenpunkte, die auf der rechten Seite von $T^*(B)$ liegen. **B** Normierte Phasengrenzenlinien aufgetragen als T/T_N über B/B_c . **C** Phasengrenzenlinien in doppelt-logarithmischer Auftragung als T_N vs. $(B_c - B)$. Die durchgezogenen Linien entsprechen denen in Teilbild **A**.

jeweils für die Datenpunkte rechts von T^* vorgenommen und sind ebenfalls im Phasendiagramm gezeigt. Die Anpassungsparameter sind in der Legende in Abb. 4.40 **B** zusammengestellt. Hier sind außerdem dieselben Daten und Anpassungen in doppelt-logarithmischer Auftragung T_N über $(B_c - B)$ dargestellt. Für die undotierte Probe wurden für die Anpassung diejenigen Datenpunkte verwendet, die einem Potenzgesetz folgen. Es ergibt sich ein deutlich kleinerer Exponent $\epsilon = 0.35$, der nicht dem Hertz-Millis-Szenario entspricht. Dies entspricht der Erwartung, da sich die antiferromagnetische Phase komplett auf der Seite der T^* -Linie befindet, auf der die f -Elektronen lokalisiert sind. Für die mit 3% Co-dotierte Probe tendiert der Exponent $\epsilon = 0.44$ zwar in die Richtung der Vorhersage, ist aber immer noch kleiner. Für $x=0.07$ zeigt sich hingegen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem vorhergesagten Exponenten von $2/3$. Außerdem weicht die Phasengrenze links von T^* von diesem Verlauf ab.

Für $x = 0.12$ ist die Übereinstimmung mit $\varepsilon = 0.54$ geringer, jedoch wurde hier die Phasengrenzlinie weniger genau vermessen, so dass nur wenige Datenpunkte zur Anpassung verwendet wurden. Es zeigt sich allerdings ähnlich wie für $x = 0.07$ links von T^* eine Abweichung vom Verlauf nach dem Potenzgesetz. In Abb. 4.40 C sind die Phasengrenzlinien normiert auf T_N und B_c dargestellt. Hier zeigt sich, dass die Krümmung mit zunehmendem Co-Gehalt abnimmt. Insgesamt ergibt diese Analyse noch kein stichhaltiges Argument für Spindichtewellen-Verhalten auf der rechten Seite der T^* -Linie, kann die hier aufgestellte These aber auch nicht widerlegen.

Bemerkenswert ist an dieser Stelle außerdem, dass die Phasengrenzlinie T_N in Abhängigkeit von Druck bzw. Magnetfeld völlig unterschiedlich verläuft. Während $T_N(p)$ einem konkaven Verlauf folgt, also mit einem Exponenten größer als eins, ist $T_N(B)$ negativ gekrümmt, wird also durch einen Exponenten kleiner als eins beschrieben. Somit scheinen je nach externem Parameter verschiedene Einflüsse zur Unterdrückung der antiferromagnetischen Phase relevant zu sein.

4.6 Zusammenfassung

Das System YbRh_2Si_2 gilt als Prototyp zur Untersuchung eines antiferromagnetischen QKPs, der nicht durch das konventionelle Hertz-Millis-Szenario beschrieben werden kann. Ein wichtiger Aspekt ist in diesem Kontext das Auftreten einer Crossover-Linie T^* im B - T -Phasendiagramm dieses Systems, die am QKP zu null geht. Anomalien in Hall-Effekt-Messungen können zu einem Sprung im Hall-Koeffizienten bei $T = 0$ extrapoliert werden. Dieser Effekt lässt sich theoretisch als Sprung des Fermi-Volumens am QKP beschreiben, der auf Grund eines Lokalisierungsprozesses der $4f$ -Elektronen auftritt.

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass die Crossover-Linie T^* auch in anderen Messgrößen nachgewiesen werden kann. Messungen der Magnetostriktion, des Magnetwiderstandes und der Wechselfeldsuszeptibilität ergaben jeweils Anomalien, die im Phasendiagramm eingetragen gut mit den Resultaten aus Hall-Effekt- und Magnetisierungsmessungen übereinstimmen. Die Halbwertsbreiten aller magnetfeldabhängigen Größen extrapolieren für $T \rightarrow 0$ zu null. Diese Ergebnisse untermauern die Vermutung, dass die T^* -Linie als zusätzliche Energieskala interpretiert werden kann.

Unabhängig vom Nachweis einer zusätzlichen Energieskala haben Messungen des elektrischen Widerstandes als Funktion der Temperatur gezeigt, dass dessen Verlauf bei tiefen Temperaturen deutlich vom Restwiderstand der Probe abhängt. Eine mögliche Erklärung könnte ein Wechselspiel der Streuung an Störstellen und Spinanregungen sein. Des Weiteren weist die Magnetfeldabhängigkeit des aus $\rho(T)$ bestimmten Restwiderstandes bei $T = 0$ eine verbreiterte Stufe am QKP auf.

Die Magnetostriktion weist neben der Anomalie bei T^* einen weiteren Übergang bei etwa 10 T auf. Der Magnetostruktionskoeffizient verhält sich oberhalb dieses Fel-

des nahezu konstant. Im Zusammenhang mit Magnetisierungsmessungen wurde dieser Effekt auf die Polarisation der f -Elektronen zurückgeführt. Die Energie der Zeeman-Aufspaltung des Duplett-Grundzustandes des Kristallfeldes erreicht vermutlich in hohen Feldern Werte, die mit der Kondo-Energie vergleichbar sind.

Auch die Wechselfeldsuszeptibilität bestätigt die Existenz der Crossover-Linie im Phasendiagramm. Weiterhin wurde gezeigt, dass die Abhängigkeit des kritischen Feldes der antiferromagnetischen Phase vom Winkel zwischen angelegtem Magnetfeld und der c -Richtung des Kristalls in $YbRh_2Si_2$ durch die Anisotropie des Landé-Faktors bestimmt ist.

Erstmals konnte in $YbRh_2Si_2$ für $B \parallel [110]$ eine dHvA-Frequenz oberhalb von 10 kT beobachtet werden. Die Temperaturabhängigkeit der dHvA-Amplitude ergibt eine Erhöhung der Elektronenmasse um das etwa zwanzigfache. Die gemessene Frequenz von $F = 13.9$ kT stimmt relativ gut mit einer theoretisch vorhergesagten Frequenz, die sich aus renormierter Bandstrukturechnung ergibt, überein. Die dHvA-Oszillationen wurden oberhalb von 13 T beobachtet. Für diesen Feldbereich liegt somit nahe, dass die f -Elektronen zur Fermi-Fläche beitragen.

Mit der Untersuchung dotierter Proben wurde der interessanten Fragestellung nachgegangen, welchen Einfluss Änderungen des Einheitszellenvolumens auf die Lage der T^* -Linie im Phasendiagramm haben. Zu diesem Zweck wurde zunächst die Wechselfeldsuszeptibilität an einkristallinen Proben gemessen, die wahlweise mit kleinen Anteilen von Ir- oder Co-Atomen auf den Rh-Plätzen dotiert worden waren. Es wurden die zu erwartenden Volumeneffekte beobachtet, dass Ir das Gitter aufweitet und Co eine Reduktion des Gittervolumens erzeugt. Auf Grund der Druckabhängigkeit des magnetischen Moments von Yb-Ionen tendiert $YbRh_2Si_2$ unter Druck zu einem magnetisch stabileren Zustand. Für die untersuchten Proben konnte dieser Effekt nachgewiesen werden. Unabhängig davon wurde beobachtet, dass in den dotierten Proben in Form eines breiten Maximums in $\chi'(T)$ eine zum undotierten System vergleichbare Anomalie auftritt. Sie ist erst im angelegten Magnetfeld von mehr als 40 mT zu beobachten und wird mit zunehmender Feldstärke zu höherer Temperatur verschoben. In allen Proben bleibt die sich daraus ergebende Linie im B - T -Phasendiagramm weitestgehend unabhängig vom Gittervolumen bzw. von der Lage der antiferromagnetischen Phase im Phasendiagramm. Auch wenn die Wechselfeldsuszeptibilität kein Merkmal für einen Sprung des Fermi-Volumens bei $T = 0$ darstellt, so liegt doch die Vermutung nahe, dass diese Linie mit der in undotiertem $YbRh_2Si_2$ gefundenen Energieskala $T^*(B)$ assoziiert werden kann. Da sich in den Co-dotierten Proben $T^*(B)$ und $T_N(B)$ schneiden, stellt sich deshalb die Frage, ob die antiferromagnetische Phase auf der rechten Seite von $T^*(B)$ itineranter Natur ist. Es bleibt weiterhin zu klären, ob in den Co-dotierten Proben ein QKP am kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase auftritt und ob dieser dann den Vorhersagen der Hertz-Millis-Theorie entspräche, da er sich auf der von der Kondo-Wechselwirkung dominierten Seite von T^* befände. Zudem ist unklar,

ob an dem Punkt, an dem T^* zu null geht, in allen Proben ein QKP auftritt, an dem die Quasiteilchen der $4f$ -Elektronen aufgebrochen werden. Solch ein QKP wäre nicht von magnetischen Fluktuationen dominiert, sondern könnte beispielsweise auf kritische Fluktuationen eines nicht-magnetischen Ordnungsparameters zurück geführt werden, welcher mit der Hybridisierung zwischen lokalen Spins und Leitungselektronen verknüpft ist [55, 56].

Messungen der Magnetostriktion an dotierten Proben haben gezeigt, dass diese Größe in YbRh_2Si_2 deutlich vom Restwiderstand der Proben abhängt. In den dotierten Proben wurde entgegen der Erwartung ein positiver Magnetostruktionskoeffizient ermittelt. Die Längenänderung wurde in Feldrichtung innerhalb der Basalebene der Kristalle gemessen. Um eine genaue Analyse, insbesondere im Hinblick auf die T^* -Linie, durchführen zu können, müsste die Volumenmagnetostriktion bestimmt werden. Dazu wäre jeweils eine Messung der Längenänderung entlang der c -Richtung des Kristalls bei senkrecht dazu angelegtem Magnetfeld nötig. Eine am MPI CPfS neu konstruierte Messzelle sollte solche Querfeldmessungen in Zukunft ermöglichen. Mit dieser Messzelle sollten außerdem insbesondere Messungen des thermischen Volumenausdehnungskoeffizienten an einem magnetfeldinduzierten QKP, wie er möglicherweise in den Co-dotierten Proben auftritt, untersuchen können, ob dieser im itineranten Hertz-Millis-Modell beschreibbar ist. In diesem Zusammenhang sind auch Messungen der spezifischen Wärme und des elektrischen Widerstandes von großem Interesse.

Kapitel 5

CePd_{1-x}Rh_x

Derzeit sind bereits zahlreiche Beispiele für Schwere-Fermionen-Verbindungen bekannt, in denen ein QKP nachgewiesen werden konnte. Diese Systeme sind jedoch ausnahmslos antiferromagnetische Verbindungen. Die Suche nach Systemen, in denen ferromagnetische Ordnung zu einem QKP unterdrückt werden kann, stellt somit ein herausforderndes Forschungsfeld dar. Zunächst beschränkten sich die hierzu erzielten Ergebnisse aber auf *d*-Elektronen-Systeme. So kann zum Beispiel in MnSi [133] und ZrZn₂ [134] unter hydrostatischem Druck die ferromagnetische Ordnung unterdrückt werden. Den theoretischen Erwartungen entsprechend [135] endet die Phasengrenzlinie allerdings jeweils an einem kritischen Punkt bei endlicher Temperatur und es schließt sich ein Phasenübergang erster Ordnung an. Dies wurde auch im 5*f*-System UGe₂ beobachtet [136].

Generell gelten Dotierungsreihen auf der Suche nach einem QKP als weniger interessant, weil die auftretende Unordnung die gesuchten Effekte verbreitern oder unterdrücken und somit den Vergleich mit theoretischen Vorhersagen erschweren kann. Theoretische Berechnungen haben jedoch ergeben, dass Unordnung beispielsweise einen Quantenphasenübergang ausschmieren kann, so dass der geordnete Zustand exponentiell unterdrückt wird [72]. Experimentell konnte bisher z. B. in Zr_{1-x}Nb_xZn₂ [137] und URh_{1-x}Ru_xGe [138] ein kontinuierlicher Abfall der ferromagnetischen Übergangstemperatur auf Grund von Dotierung beobachtet werden. Somit stellen dotierte Systeme eine erfolgsversprechende Möglichkeit dar, ferromagnetische QKPe zu finden.

Unter den Schwere-Fermionen-Systemen finden sich nur wenige Beispiele ferromagnetischer Ce-Verbindungen, in denen NFF-Verhalten beobachtet wurde. Systeme wie CeRu₂Ge₂ [139] und CePd₂Ga₃ [140] gehören dazu. Ausgehend von einem stark lokalisierten Zustand der *f*-Elektronen entsteht jedoch in diesen Verbindungen unter hydrostatischem Druck auf Grund der Zunahme der Kondo-Wechselwirkung eine antiferromagnetische Phase bevor ein QKP erreicht wird. Eine Ausnahme könnte CePt bilden [141]. Jedoch verschwindet hier die ferromagnetische Ordnung bei etwa 12 GPa erst in einem Druckbereich, in dem nur noch Widerstandsmessungen einfach zugänglich

sind. Deren Signal ist sehr schwach und fällt beim kritischen Druck stark ab. Somit kann hier auch ein Phasenübergang erster Ordnung in Betracht gezogen werden, wie er in den erwähnten itineranten Systemen beobachtet wird. In $CeCu_{1-x}Ni_x$ wird die ferromagnetische Ordnung durch Dotierung unterdrückt [142]. Allerdings kommt es vor Erreichen eines QKPs zu einem strukturellen Phasenübergang.

Auch das Kondo-Gitter-System $CePd$ ist ferromagnetisch. Durch Dotierung von Rhodium auf dem Palladium-Platz wird die Curie-Temperatur T_C unterdrückt. Somit ergibt sich die Fragestellung, ob der ferromagnetische Phasenübergang 2. Ordnung bis zu $T = 0$ unterdrückt werden kann. $CePd_{1-x}Rh_x$ ist bisher die einzige bekannte Ce-basierte ferromagnetische Verbindung, in der die Unterdrückung der Übergangstemperatur über mehrere Dekaden zu sehr tiefen Temperaturen hin beobachtet werden konnte. Somit kommt diesem System ein prototypischer Charakter zu.

Nach einer zusammenfassenden Einführung von bereits bekannten Erkenntnissen folgen die Ergebnisse aus den Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität an Poly- und Einkristallen im Millikelvin-Bereich. Die Natur des Übergangs im Bereich hoher Rh-Konzentrationen wird geklärt.

5.1 Die Legierungsreihe $CePd_{1-x}Rh_x$ - Einführung

Die Verbindung $CePd$ ist ein ferromagnetisch ordnendes Kondo-Gitter-System [143]. Die Curie-Temperatur liegt bei $T_C = (6.6 \pm 0.1)$ K. $CeRh$ weist hingegen einen nicht-magnetischen Grundzustand auf und wird als zwischenvalentes System bezeichnet [143]. Durch Einbringen von Rhodium auf dem Palladium-Platz wird T_C unterdrückt, wie es in Abb. 5.1 dargestellt ist. Bis zu einem Rh-Gehalt von $x = 0.6$ verläuft die ferromagnetische Phasengrenzlinie, die durch Messungen der spezifischen Wärme und der Magnetisierung ermittelt wurde [144], mit einer negativen Krümmung. Anschließend ergibt sich eine positive Krümmung. In diesem Bereich wurden außerdem bereits Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität in einem ^3He -Kryostaten und der thermischen Ausdehnung im Mischungskryostaten durchgeführt [120, 144].

Die gesamte Dotierungsreihe kristallisiert in der orthorhombischen CrB -Struktur, die im Inset von Abb. 5.2 dargestellt ist. Durch statistische Substitution von Pd-Atomen mit einem Atomradius von $r_A \approx 1.37$ Å durch kleinere Rh-Atome mit $r_A \approx 1.34$ Å verringert sich das Gittervolumen, siehe Abb. 5.2. Daraus folgt eine stärkere Hybridisierung der $4f$ - mit den Leitungselektronen. Für einen Rh-Anteil bis zu $x_V = 0.75$ ist eine lineare Abnahme entsprechend der Vegardschen Regel zu beobachten. Das heißt, dass lediglich die RKKY-Wechselwirkung gegenüber der Kondo-Abschirmung schwächer wird. Bei x_V tritt ein Knick auf, ab dem die Volumenabnahme steiler verläuft. Dieser zusätzliche Volumeneffekt wird einsetzenden Ladungsfluktuationen zugeordnet [144].

Das Einsetzen von Ladungsfluktuationen konnte mittels L_{III} -Bandkanten-Absorptionsspektroskopie untermauert werden, siehe Abb. 5.3. Hier wurde eine verstärkte Zu-

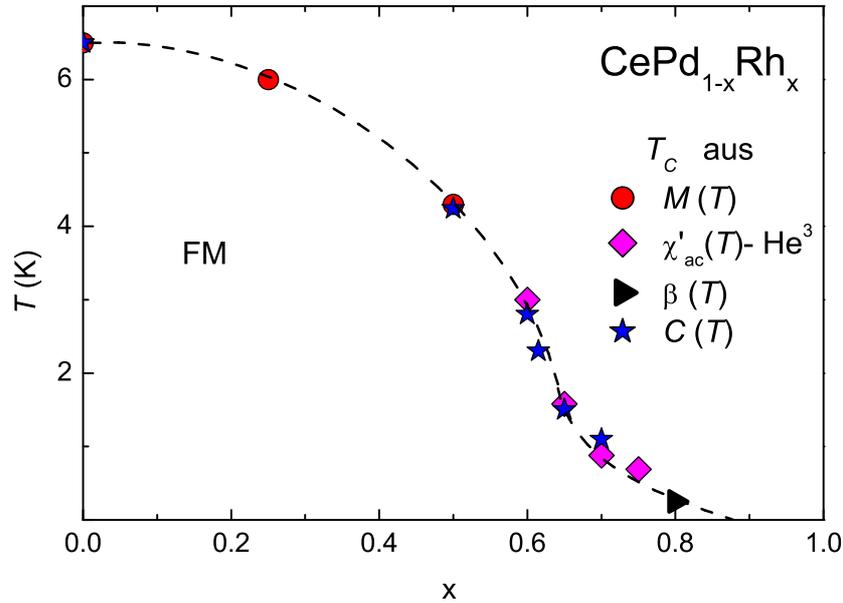


Abb. 5.1: Phasendiagramm von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$, aufgetragen ist die Temperatur über dem Rh-Anteil x . Die Phasengrenzlinie wurde durch Messungen von Magnetisierung $M(T)$, Wechselfeldsuszeptibilität $\chi_{AC}(T)$, thermischer Ausdehnung $\beta(T)$ und spezifischer Wärme $C(T)$ ermittelt. Im Bereich $0 \leq x \leq 0.6$ entspricht der Übergang der ferromagnetischen Curie-Temperatur T_C . Oberhalb dieser Konzentration, ab der sich auch die Krümmung der Phasengrenzlinie ändert, ist kein langreichweitiger ferromagnetischer Phasenübergang mehr zu beobachten. Daten aus Ref. [144].

nahme der Valenz der Ce-Ionen beobachtet [146]. Außerdem zeigt sich, dass die Absolutwerte der paramagnetischen Weiss-Temperatur Θ_p ab $x \approx 0.75$ stark ansteigen, wie ebenfalls in Abb. 5.3 aufgetragen ist. Θ_p wurde jeweils durch eine Anpassung des Curie-Weiss-Gesetzes an Suszeptibilitätsdaten bei hohen Temperaturen nach

$$\chi \sim \frac{C}{T - \Theta_p} \quad (5.1)$$

ermittelt [145]. Die Kondo-Temperatur T_K kann mit etwa dem halben Wert der paramagnetischen Weiss-Temperatur Θ_p [147] abgeschätzt werden. Das Verhalten der Kondo-Temperatur entspricht also der Erwartung für ein Kondo-Gitter-System, das von einem magnetischen Zustand lokalisierter f -Elektronen in einen unmagnetischen Zustand itineranter f -Elektronen wechselt.

Die Änderungen von Volumen, Ce-Valenz und Kondo-Temperatur bei $x \approx 0.75$ deuten darauf hin, dass das System von einem magnetischen Grundzustand allmählich zu einem zwischenvalenten wechselt. Die Änderung im Verlauf der Phasengrenzlinie ergibt sich in guter Übereinstimmung dazu.

Die ersten Tieftemperaturexperimente an $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ im Millikelvin-Bereich, die

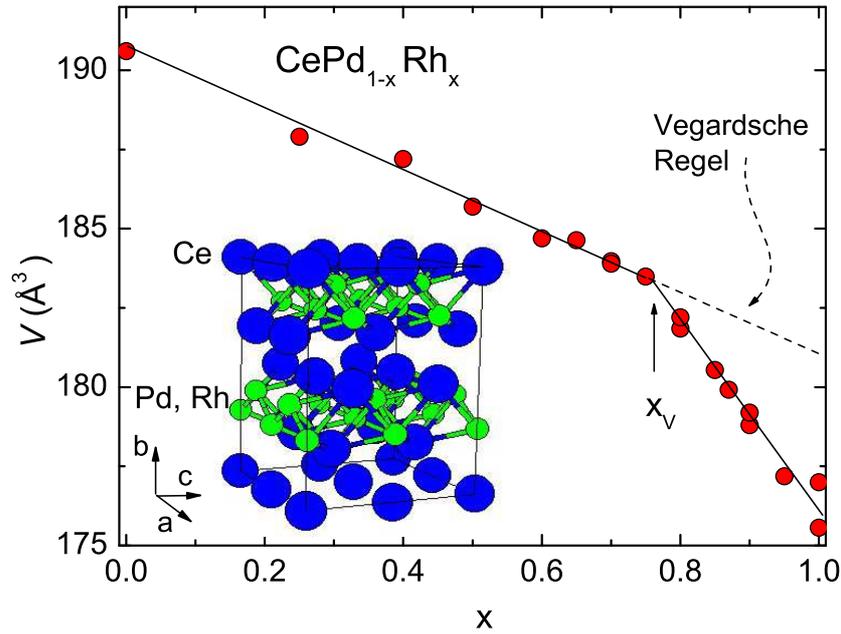


Abb. 5.2: Volumen V der Einheitszelle von $CePd_{1-x}Rh_x$ in Abhängigkeit vom Rh-Anteil x . Bis zu $x_V = 0.75$ folgt der Verlauf der Vegardschen Regel. Für höhere Konzentrationen wurde eine stärkere Volumenabnahme beobachtet (aus [144]). Dies ist ein Indiz für das Einsetzen von Ladungsfluktuationen. Zusätzlich ist die orthorhombische CrB-Kristallstruktur dargestellt, in der $CePd_{1-x}Rh_x$ kristallisiert. Daten aus Ref. [144].

in Mischungskryostaten am MPI CPfS durchgeführt wurden, waren Messungen der spezifische Wärme $C(T)$ und der thermischen Volumenausdehnung $\beta(T)$ an polykristallinen Proben [120, 148].

An Proben mit Rh-Anteilen, bei denen in der spezifischen Wärme $C(T)$ kein Maximum mehr auftritt, ist NFF-Verhalten bis zur tiefsten Temperatur von 80 mK in $C(T)$ zu beobachten, siehe Abb. 5.4. Während bei $x = 0.8$ noch ein breites Maximum auftritt, zeigt sich bei $x = 0.85$ ein logarithmischer Anstieg in $\Delta C(T)/T$ zur tiefsten Temperatur hin. Die nach Abzug der spezifischen Wärme der unmagnetischen Referenzverbindung LaRh erhaltene Größe ΔC beschreibt dabei den Anteil der $4f$ -Elektronen zur spezifischen Wärme. In den Proben mit höherem Rh-Gehalt wurde eine Abhängigkeit nach einem Potenzgesetz mit einem Exponenten von -0.4 für $x = 0.87$ und -0.33 für $x = 0.9$ gefunden. Für $x = 0.8$ beträgt der Entropiezuwachs ΔS lediglich 20% von $R \ln 2$ bis hinauf zu 2 K. Mit zunehmender Rh-Konzentration nimmt dieser Wert weiter deutlich ab, wie in Abb. 5.4 gezeigt. Sowohl die Entropie als auch die Analyse der Steigung der Suszeptibilität bei 2 K zeigen, dass selbst bei hohen Rh-Konzentrationen noch abgeschirmte magnetische Momente auftreten, obwohl die mittlere Kondo-Temperatur bereits sehr hoch ist. Demzufolge existiert in diesem System eine breite Verteilung lokaler Kondo-Temperaturen mit einem Ausläufer hin zu tiefsten Temperaturen [148].

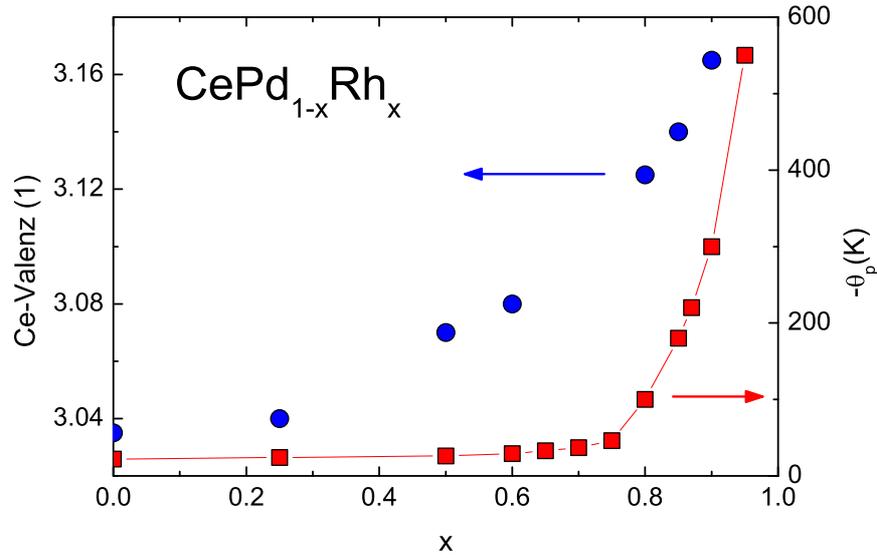


Abb. 5.3: Auf der linken Achse ist die Valenz der Ce-Atome, wie sie aus der L_{III} -Bandkanten-Absorptionsspektroskopie ermittelt wurde, über dem Rh-Anteil x aufgetragen (Kreise). Für große x wurde eine stärkere Zunahme beobachtet. Auf der rechten Achse ist ebenfalls über x die Weiss-Temperatur als $-\Theta_p$ aufgetragen (Quadrate), die proportional zu T_K ist und deren Absolutwert ab etwa $x = 0.75$ sehr stark ansteigt. Daten aus Ref. [144,145].

Die thermische Volumenausdehnung $\beta(T) = V^{-1}(dV/dT)$ (V : Probenvolumen) stellt eine sehr empfindliche Methode zur Untersuchung quantenkritischen Verhaltens dar, da sie sich bei Annäherung an einen QKP singulärer verhält als die spezifische Wärme [149]. Daraus folgt, dass das dimensionslose Grüneisen-Verhältnis $\Gamma(T) \sim \beta(T)/C(T)$ an jedem druckempfindlichen QKP für $T \rightarrow 0$ divergieren muss. Entsprechende experimentelle Beobachtungen wurden in einigen antiferromagnetischen Verbindungen nahe von QKPen gemacht [11]. Des Weiteren ergeben sich aus dem kritischen Exponenten von $\Gamma(T)$ wichtige Erkenntnisse über die Natur des zu Grunde liegenden QKP [149].

An $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ wurde die thermische Volumenausdehnung $\beta(T)$ an Polykristallen mit $0.8 \leq x \leq 0.95$ gemessen [120]. Das Minimum des Volumenausdehnungskoeffizienten $\beta(T)/T$ bei $T \approx 0.25$ K für $x = 0.8$ entspricht dem magnetischen Phasenübergang, siehe Abb. 5.5 a, in Übereinstimmung mit Messungen der spezifischen Wärme. In den Proben mit höherem Rh-Gehalt von $x = 0.87$ und $x = 0.9$ zeigt $\beta(T)/T$ keine Anzeichen eines Phasenübergangs. Stattdessen ist in diesem Bereich NFF-Verhalten über beinahe zwei Dekaden in der Temperatur bis hinab zu 100 mK zu beobachten, wobei $\beta(T)$ über den gesamten untersuchten Temperaturbereich negativ ist. Die Absolutwerte für $x = 0.9$ sind dabei höher als die für $x = 0.87$. Im Gegensatz dazu ist $\beta(T)/T$ bei $x = 0.95$ über den gesamten Bereich positiv, allerdings mit im Vergleich zu $x = 0.87$ und $x = 0.9$ kleineren Absolutwerten. Diese Ergebnisse entsprechen nicht den Beobach-

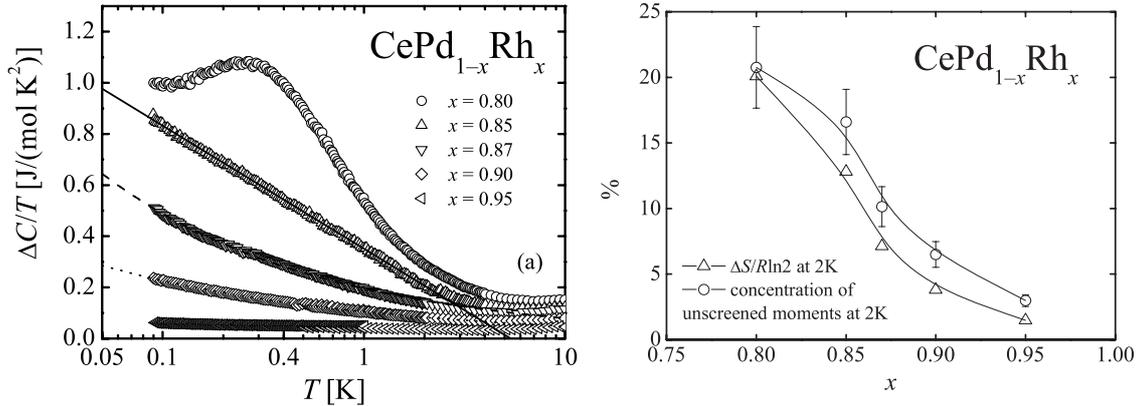


Abb. 5.4: Links: Beitrag der $4f$ -Elektronen zur spezifischen Wärme von $CePd_{1-x}Rh_x$ für $0.8 \leq x \leq 0.95$ aufgetragen als $\Delta C(T)/T$ über einer logarithmischen Temperaturskala T . Die durchgezogene Linie kennzeichnet eine logarithmische Anpassung. Die gestrichelten Linien folgen einem Potenzgesetz. Rechts: Aufgetragen ist der Entropiezuwachs $\Delta S/R\ln 2$ bei 2 K und die aus dem Anstieg der Suszeptibilität bei 2 K bestimmte Konzentration der unabgeschirmten magnetischen Momente. Entnommen aus [148].

tungen der spezifischen Wärme, deren Werte in $C(T)/T$ einen kontinuierlichen Abfall von $x = 0.8$ zu $x = 0.95$ zeigen (vergleiche Abb. 5.4), wie bei Annäherung an einen zwischenvalenten Zustand erwartet. Da es in $\beta(T)/T$ nicht beobachtet wird, scheinen hier zusätzliche, ungeklärte Effekte die Temperaturabhängigkeit von β zu beeinflussen.

Die Analyse des dimensionslosen Grüneisen-Verhältnisses ergibt deutliche Abweichungen von den theoretischen Vorhersagen für einen ferromagnetischen QKP [149]. Sobald die magnetische Ordnung unterdrückt ist, wird $\Gamma(T)$ beinahe temperaturunabhängig, siehe Abb. 5.5 b, denn $C(T)/T$ und $\beta(T)/T$ divergieren in diesem Bereich mit sehr ähnlichen Potenzen. Weil aber $\Gamma(T)$ an jedem druckinduzierten QKP divergieren muss [149], kann Quantenkritikalität im Sinne des vorhergesagten Skalierungsverhaltens als Ursache für das NFF-Verhalten in $CePd_{1-x}Rh_x$ ausgeschlossen werden. Somit ist diese Verbindung ein klares Beispiel dafür, dass einer logarithmische Divergenz des Sommerfeld-Koeffizienten nicht zwingend ein QKP zu Grunde liegen muss.

Das negative Vorzeichen des Grüneisen-Verhältnisses $\Gamma(T)$ in den Proben mit $x = 0.87$ und $x = 0.9$ deutet auf eine ungewöhnliche Volumenabhängigkeit im Bereich des Verschwindens der Ordnung hin. Für paramagnetische Ce-Systeme wird eigentlich ein positives Grüneisen-Verhältnis erwartet, weil die in diesem Fall normalerweise dominierende Kondo-Energieskala unter hydrostatischem Druck ansteigt [122]. Dominiert hingegen die RKKY-Energieskala, so führt dies zu einer negativen Druckabhängigkeit. Deshalb lässt sich für $CePd_{1-x}Rh_x$ annehmen, dass anomale magnetische Beiträge zur thermischen Ausdehnung im paramagnetischen Bereich auftreten, wo kein Phasenübergang in eine magnetisch geordnete Phase auftritt.

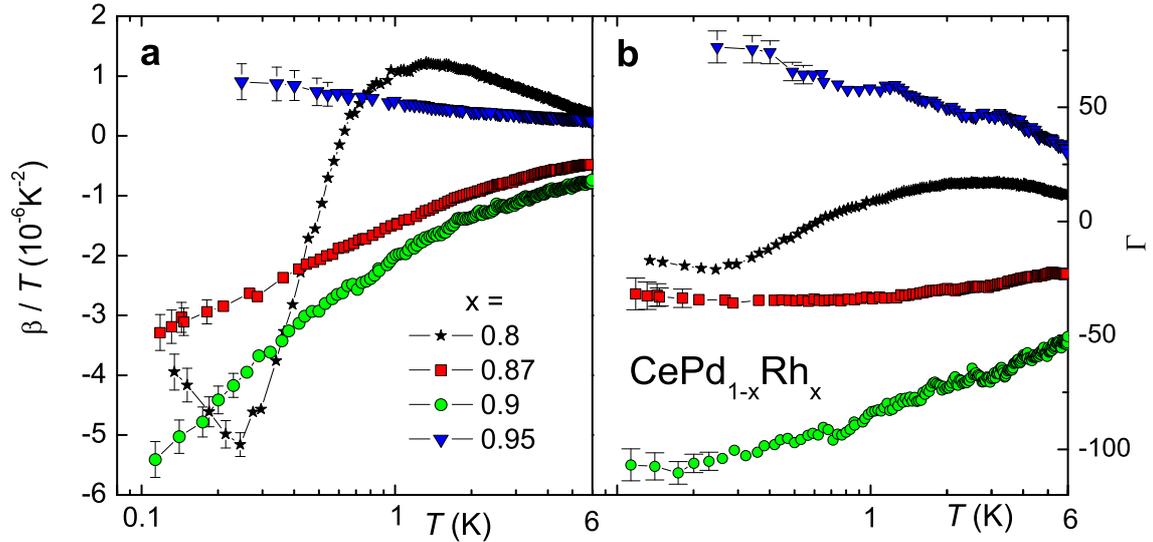


Abb. 5.5: Links (a): Thermischer Volumenausdehnungskoeffizient $\beta(T)$ von polykristallinem $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ aufgetragen als β/T vs $\log T$. Rechts (b): Dimensionsloses Grüneisen-Verhältnis $\Gamma = V_m/\kappa_T \cdot \beta/C$ vs $\log T$ mit $V_m = 6.6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3\text{mol}^{-1}$ und $\kappa_T = 1 \cdot 10^{-11} \text{ Pa}^{-1}$ [120, 150].

5.2 Messergebnisse

Um das Verhalten von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ besser zu verstehen, bieten sich Messungen der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität χ_{AC} an. Diese Methode zeichnet sich durch ihre hohe Empfindlichkeit in Bezug auf magnetische Wechselwirkungen aus. Sie ist somit das geeignete Mittel, die Abweichungen von der langreichweitigen ferromagnetischen Ordnung im Tieftemperaturbereich von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ genauer zu untersuchen. Es soll insbesondere eine mögliche Frequenzabhängigkeit analysiert werden, da ein solcher Effekt in Systemen mit kurzreichweitiger Ordnung zu erwarten ist. Von allen im Folgenden gezeigten Messdaten der Wechselfeldsuszeptibilität wurde jeweils der Hintergrund des Probenhalters abgezogen. Anschließend wurden die Daten oberhalb von 2 K auf Messdaten von $\chi_{DC}(T) = M(T)/B$ normiert. Des Weiteren werden Messergebnisse des Tieftemperaturwiderstands vorgestellt.

5.2.1 Beschreibung der verwendeten Proben

Die Wechselfeldsuszeptibilität wurde sowohl an Poly- als auch an Einkristallen gemessen. Die Messung der Polykristalle erfolgte an Proben aus derselben Charge wie die für die thermischen Ausdehnungsmessungen verwendeten und an genau denselben Proben, an denen auch die spezifische Wärme gemessen wurde. Diese Proben wurden von N. Caroca-Cannales im Lichtbogenofen unter Argon-Atmosphäre hergestellt. Bei anschließender Pulverdiffraktometrie wurden keine Fremdphasen gefunden [144]. Aller-

x (nominell)	0.6	0.75	0.8	0.85	0.87	0.9	0.95
x (EDX)	0.58	0.72	0.8	0.82	0.85	0.86	0.9

Tabelle 5.1: Auflistung der eingewogenen und der jeweils zugehörigen durch EDX bestimmten, tatsächlichen Rh-Konzentrationen x der einkristallinen $CePd_{1-x}Rh_x$ -Proben, an denen χ_{AC} gemessen wurde.

dings beträgt die Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung $\pm 2\%$. Gemessen wurden Proben mit Rh-Anteilen von $x = 0.75, 0.8, 0.85, 0.87$ und 0.9 .

Die verwendeten Einkristalle wurden von M. Deppe aus Polykristallen mit Hilfe der Bridgman-Technik in Tantal-Tiegeln gezogen. Die Ziehraten betragen dabei 3-5 mm/h [151]. Die Qualität wurde ebenfalls mittels Röntgendiffraktometrie überprüft. An den für die χ_{AC} -Messungen verwendeten Proben wurde außerdem energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) durchgeführt, mit deren Hilfe sich die tatsächlichen Konzentrationen der Elemente auf $\pm 1\%$ genau bestimmen lassen. Hier hat sich gezeigt, dass in den meisten Einkristallen tendenziell etwas weniger Rh enthalten ist, als eingewogen wurde. Die nominellen sowie die ermittelten Rh-Konzentrationen aller mit der AC-Suszeptibilität untersuchten Einkristalle sind in Tabelle 5.1 aufgeführt. Im

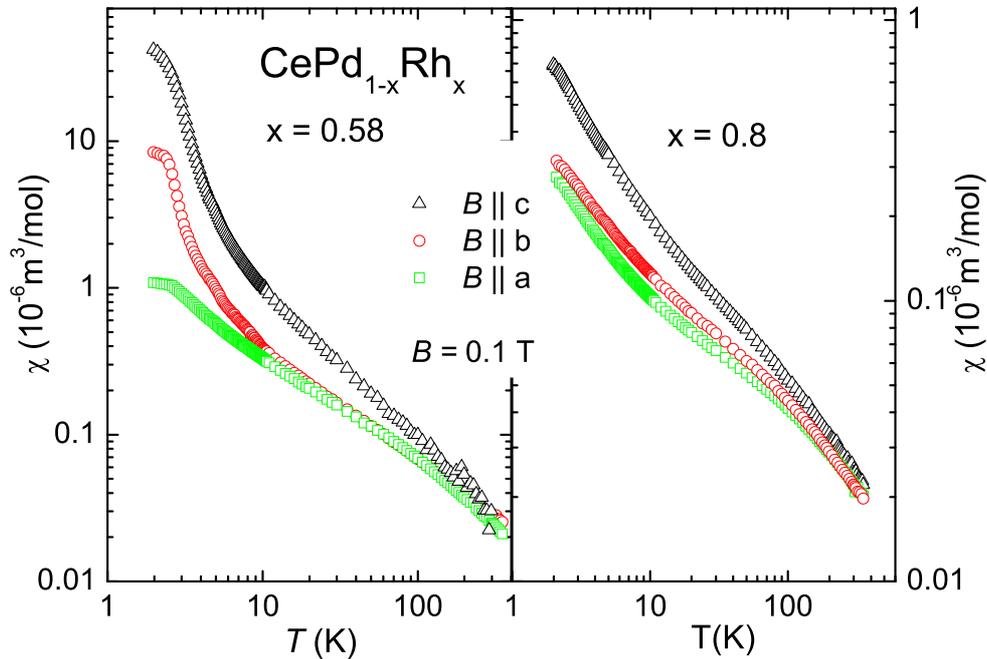


Abb. 5.6: Suszeptibilität $\chi_{DC}(T) = M(T)/B$ der Proben mit $x = 0.58$ und $x = 0.8$, gemessen in einem SQUID-Magnetometer mit $B = 0.1 \text{ T}$ und $T \geq 2 \text{ K}$, jeweils entlang der drei Kristallrichtungen a, b und c. Es ist deutlich eine magnetische Anisotropie zu erkennen. Die c-Richtung zeigt jeweils das stärkste Signal. Zur Verfügung gestellt von M. Deppe.

Folgenden beziehen sich alle Konzentrationsangaben auf die durch die EDX ermittelten tatsächlichen Werte. Die Messungen des Tieftemperaturwiderstandes wurden an Einkristallen mit $x = 0.58$ und $x = 0.8$ durchgeführt.

Die Proben wurden durch Messungen des Widerstands, der Magnetisierung, der Suszeptibilität und der spezifischen Wärme charakterisiert [151, 152]. Es hat sich gezeigt, dass die Proben eine magnetische Anisotropie aufweisen, wie es bei einem orthorhombischen System durchaus zu erwarten ist. In Abb. 5.6 ist dies exemplarisch anhand der Suszeptibilität $\chi_{DC}(T) = M(T)/B$ bei $B = 0.1$ T für zwei ausgewählte Proben dargestellt. Sowohl für $x = 0.58$ als auch für $x = 0.8$ wird entlang der c -Richtung der Kristalle das stärkste Signal gemessen. Für die Messungen von χ_{AC} wurde somit das magnetische Wechselfeld entlang der c -Richtung der Kristalle angelegt.

5.2.2 Wechselfeldsuszeptibilität an Polykristallen

Abb. 5.7 zeigt den Realteil $\chi'(T)$ der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität χ_{AC} von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ als Funktion der Temperatur für die vier Rh-Konzentrationen x , in denen ein Maximum beobachtet werden konnte. Das Maximum kennzeichnet einen Über-

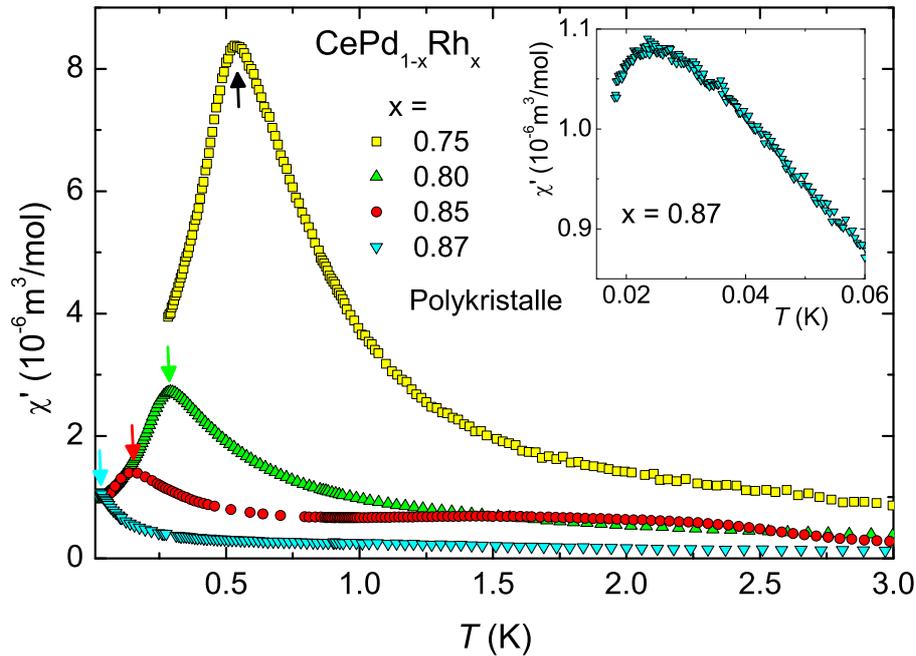


Abb. 5.7: Realteil χ' der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität χ_{AC} von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ -Polykristallen mit $0.75 \leq x \leq 0.87$ aufgetragen über der Temperatur T . Gemessen wurde mit einer Wechselfeldfrequenz von $\nu = 113$ Hz und einer Wechselfeldamplitude von $b_{AC} = 11 \mu\text{T}$. Es tritt ein ausgeprägtes Maximum auf, durch Pfeile markiert. Mit zunehmendem Rh-Anteil x wird das Maximum zu tieferer Temperatur T verschoben, während seine Signalstärke abnimmt. Im Inset ist das Maximum von $x = 0.87$ vergrößert abgebildet.

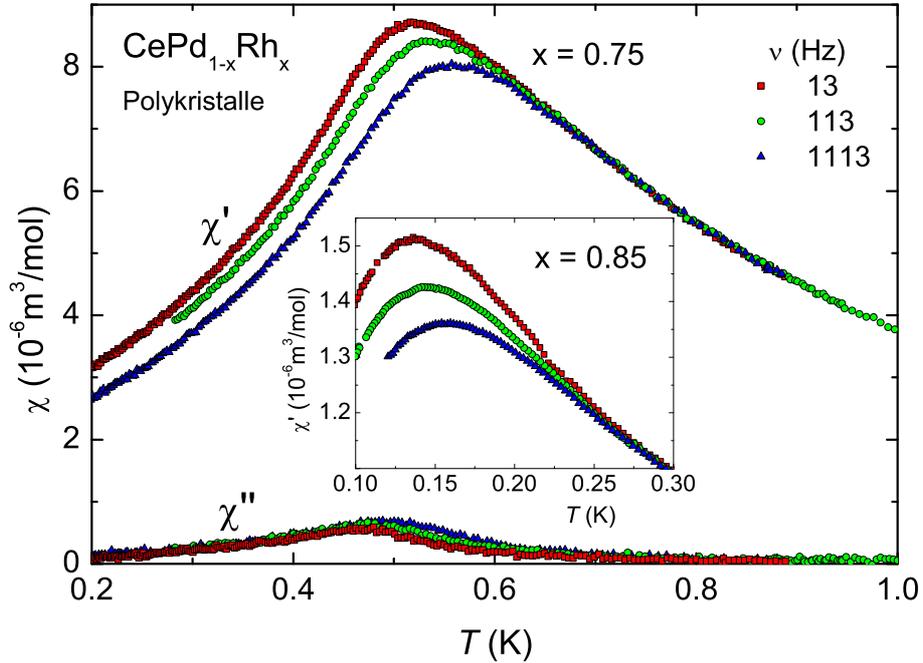


Abb. 5.8: Frequenzabhängigkeit von Real- und Imaginärteil der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität χ_{AC} über T für $x = 0.75$. Im Inset ist die Frequenzabhängigkeit des Realteils $\chi'(T)$ für $x = 0.85$ gezeigt. Es sind jeweils Messungen mit Wechselfeldfrequenzen $\nu = 13, 113$ und 1113 Hz und $b_{AC} = 11 \mu\text{T}$ gezeigt.

gang von einem paramagnetischen Bereich bei hoher Temperatur in einen magnetisch geordneten Bereich bei tieferer Temperatur. Allerdings sind die Werte der Suszeptibilität im Vergleich zu einem Ferromagneten sehr klein, wie in Abschnitt 5.2.3 näher erläutert wird. Für $x = 0.75$ liegt das Maximum bei $T = 530$ mK. Mit zunehmender Rh-Konzentration x verschiebt es zu tieferen Temperaturen bei gleichzeitiger Abnahme der Signalstärke. Für $x = 0.87$ tritt das Maximum bei $T = 24$ mK nur knapp oberhalb der unteren Grenze des Messbereichs von etwa 18 mK auf. Dies ist vergrößert im Inset von Abb. 5.7 dargestellt. Für $x = 0.9$ konnte kein Signal mehr detektiert werden.

Weiterhin ist in der Probe mit $x = 0.85$ bei höherer Temperatur im Bereich von etwa 1 K bis 2.5 K ein zusätzlicher Beitrag in Form eines breiten „Buckels“ zu erkennen. Die Vermutung, dass dieser Effekt durch eine Fremdphase verursacht ist, wird in Abschnitt 5.2.3 diskutiert.

In Abb. 5.8 ist für $x = 0.75$ die Frequenzabhängigkeit des Signals von χ_{AC} dargestellt. Der Realteil der Suszeptibilität $\chi'(T)$ zeigt ein Maximum an der Übergangstemperatur, die im Folgenden als T_C^* bezeichnet wird, da es sich offensichtlich nicht mehr um einen Phasenübergang 2. Ordnung handelt. Der Imaginärteil weist bei T_C^* einen Wen-

	$x = 0.75$	$x = 0.80$	$x = 0.85$	$x = 0.87$
ν (Hz)	T_C^* (mK)	T_C^* (mK)	T_C^* (mK)	T_C^* (mK)
13	520	280	140	23
113	530	290	145	24
313	-	300	-	-
713	-	307	155	-
1113	560	310	157	26

Tabelle 5.2: Temperaturen T_C^* der Maxima von $\chi'(T)$ gemessen an $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ -Polykristallen in Abhängigkeit von der Rh-Konzentration x und der Wechselfeldfrequenz ν .

depunkt auf. Das Auftreten einer imaginären Komponente der Suszeptibilität zeigt, dass Relaxationsprozesse die Messung beeinflussen, indem sie durch Entkopplung der Spins vom Gitter einen Verlustanteil erzeugen [59]. Außer beim Auftreten von Hysterese in Ferromagneten sind solche Effekte untypisch für magnetische Phasenübergänge. Die Frequenzabhängigkeit ist ein weiteres Indiz für das Auftreten kurzreichweitiger Ordnung. Mit zunehmender Frequenz schiebt das Maximum zu höherer Temperatur, während die Amplitude abnimmt. Dieses Verhalten ist in allen gemessenen Polykristallen bis $x = 0.87$ zu beobachten und für $x = 0.85$ im Inset von Abb. 5.8 gezeigt. Mit zunehmendem Rh-Gehalt nimmt die Stärke der Verschiebung zu. Dies wird in Abschnitt 5.3 genauer analysiert. Die Temperaturen T_C^* der Maxima in $\chi'(T)$ sind in Tabelle 5.2 für die verschiedenen Konzentrationen und Frequenzen zusammengefasst. Der Fehler bei der Bestimmung von T_C^* beträgt etwa 5 mK, wobei jedoch für alle Konzentrationen mit steigender Frequenz klar der Trend zu höheren Werten von T_C^* zu erkennen ist.

5.2.3 Wechselfeldsuszeptibilität an Einkristallen

In Abb. 5.9 ist der Realteil $\chi'(T)$ der Wechselfeldsuszeptibilität sowie die Suszeptibilität $\chi_{DC}(T) = M(T)/B$ mit $B = 0.1$ T für die einkristalline Probe mit dem geringsten untersuchten Rh-Anteil von $x = 0.58$ gezeigt. Das Signal ist eindeutig ferromagnetischer Natur. Dies zeigt sich an den großen Werten von $\chi'(T)$ in der Umgebung des Maximums, welches der Curie-Temperatur T_C entspricht. Es ergibt sich ein Wert von $T_C = 2.37$ K. Im Bereich um T_C zeigt χ_{DC} den Beginn einer Sättigung des Signals. Die Daten des Realteils von $\chi_{AC}(T)$ konnten oberhalb des Phasenübergangs gemäß der Theorie der Phasenübergänge mit $\chi^{-1} \sim (T - T_C)^\gamma$ angepasst werden, dargestellt als durchgezogene Linie im Inset von Abb. 5.9. Der ermittelte kritische Exponent $\gamma = (1.29 \pm 0.02)$ liegt knapp unterhalb des Wertes der theoretischen Näherungsberechnungen des 3D-XY-Modells mit $\gamma \approx 1.31$ [153] und entspricht somit den Erwartungen

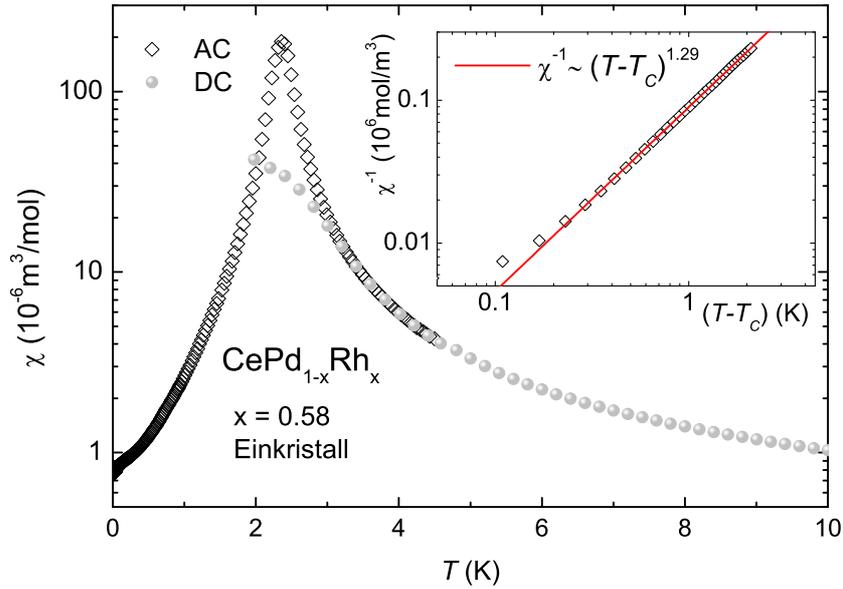


Abb. 5.9: Realteil der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität (AC) und die Suszeptibilität $M(T)/B$ (DC) in logarithmischer Auftragung über der Temperatur T für $CePd_{0.42}Rh_{0.58}$. Das Maximum in der AC-Messung kennzeichnet den ferromagnetischen Phasenübergang. Im Inset ist in doppelt-logarithmischer Auftragung die inverse Suszeptibilität oberhalb des Phasenübergangs über $(T - T_C)$ dargestellt. Die durchgezogene Linie entspricht einer Anpassung entsprechend $\chi^{-1} \sim (T - T_C)^\gamma$ mit dem kritischen Exponenten $\gamma \approx 1.29$.

für einen ferromagnetischen Phasenübergang. Unterhalb von T_C ist eine Anpassung nicht sinnvoll, da hier z. B. Domäneneffekte den Verlauf der Suszeptibilität zusätzlich beeinflussen. Eine nennenswerte Frequenzabhängigkeit wurde in dieser Probe nicht beobachtet.

Die fünf Einkristalle mit $0.72 \leq x \leq 0.86$ liegen alle in dem Bereich des Phasendiagramms, in dem die Phasengrenzlinie eine positive Krümmung aufweist und keine scharfen Phasenübergänge mehr auftreten. Wie schon in den Polykristallen weist $\chi'(T)$ auch hier, wie in Abb. 5.10 gezeigt, für jede Konzentration ein Maximum auf. Die Werte der Suszeptibilität am Maximum sind für Poly- und Einkristalle in der gleichen Größenordnung. Das Maximum stellt bis zur höchsten betrachteten Konzentration eine scharfe Anomalie dar. Im direkten Vergleich zur Messung an der ferromagnetischen Probe mit $x = 0.58$ wird der Unterschied zwischen den Werten der Suszeptibilität am Maximum aber sehr deutlich. Zwischen der ferromagnetischen Probe und der Probe mit nächsthöherem Rh-Gehalt, $x = 0.72$, unterscheiden sich die $\chi'(T)$ -Werte der Maxima um einen Faktor größer als 20. In der AC-Suszeptibilität ist dies ein Anzeichen dafür, dass die Ordnung in $CePd_{1-x}Rh_x$ hier ihren langreichweitigen ferromagnetischen Charakter verliert. Der Faktor zwischen den $\chi'(T)$ -Werten der Maxima von $x = 0.72$ und $x = 0.86$ beträgt etwa 8.

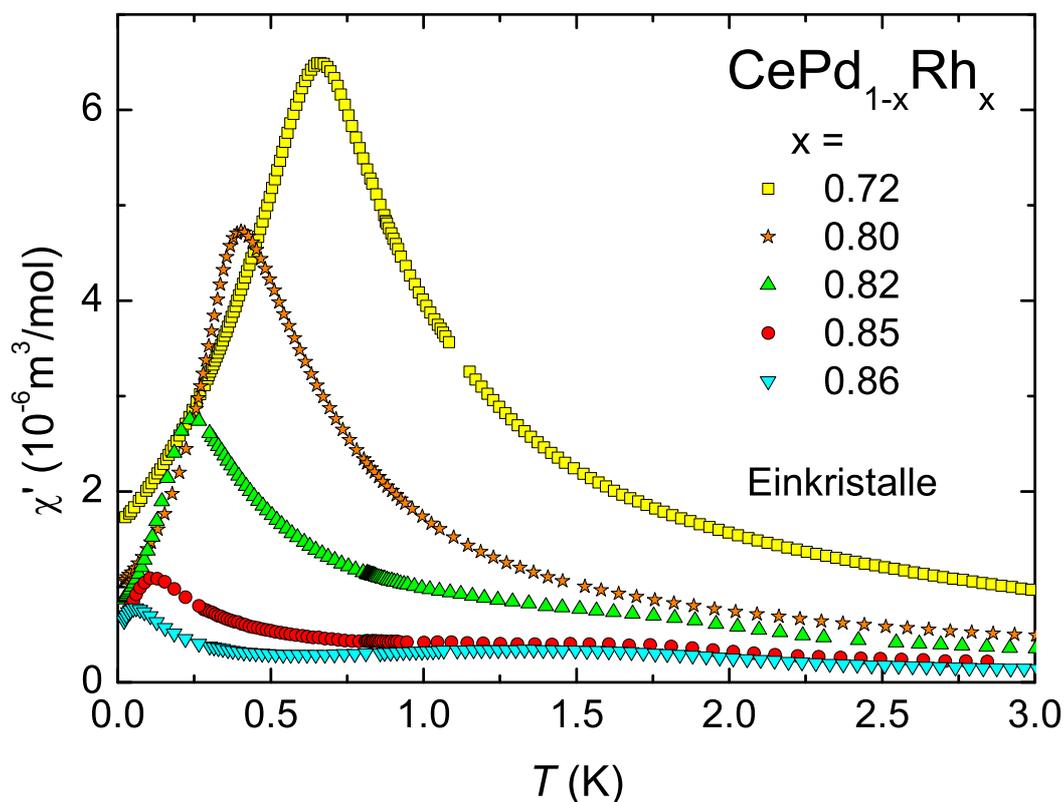


Abb. 5.10: Realteil χ' der magnetischen AC-Suszeptibilität χ_{AC} von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ -Einkristallen mit $0.72 \leq x \leq 0.86$ aufgetragen über der Temperatur T . Gemessen wurde mit einer Wechselfeldfrequenz von $\nu = 113 \text{ Hz}$ und einer Wechselfeldamplitude von $b_{AC} = 11 \mu\text{T}$. Es tritt je Konzentration x ein ausgeprägtes Maximum auf, das mit zunehmendem x zu tieferen Temperaturen verschiebt und dessen Absolutwert gleichzeitig annimmt.

Wie schon in den Polykristallen beobachtet, zeigt sich auch hier im Bereich von 1 bis 2 K ein zusätzlicher Beitrag zur Suszeptibilität in Form eines breiten „Buckels“ der für $x = 0.85$ und $x = 0.86$ besonders deutlich zu erkennen ist. Je kleiner das Probensignal ist, desto stärker tritt dieser Effekt in den Vordergrund. Es besteht die Möglichkeit, dass in Proben mit geringerem Rh-Anteil auf Grund des größeren Signals, diese Anomalie überdeckt ist. Es ist also davon auszugehen, dass sowohl in Poly- als auch in Einkristallen zu sehr kleinem Volumenanteil Fremdphasen auftreten, die einen zusätzlichen Beitrag zu χ_{AC} liefern. Eine mögliche Erklärung liegt in der Luftempfindlichkeit der Proben. Zwar wurden die Proben stets unter Argon-Atmosphäre aufbewahrt, eine Oxidation beim Einbau der Proben ist jedoch nicht völlig auszuschließen.

Für den Einkristall mit $x = 0.8$ ist in Abb. 5.11 die Frequenzabhängigkeit von Real- und Imaginärteil gezeigt. Wie schon bei den Polykristallen ist auch hier eine deutliche Verschiebung der Übergangstemperatur T_C^* , an der das Maximum in $\chi'(T)$ auftritt, zu erkennen. Mit steigender Frequenz schiebt auch hier T_C^* zu höherer Temperatur, bei

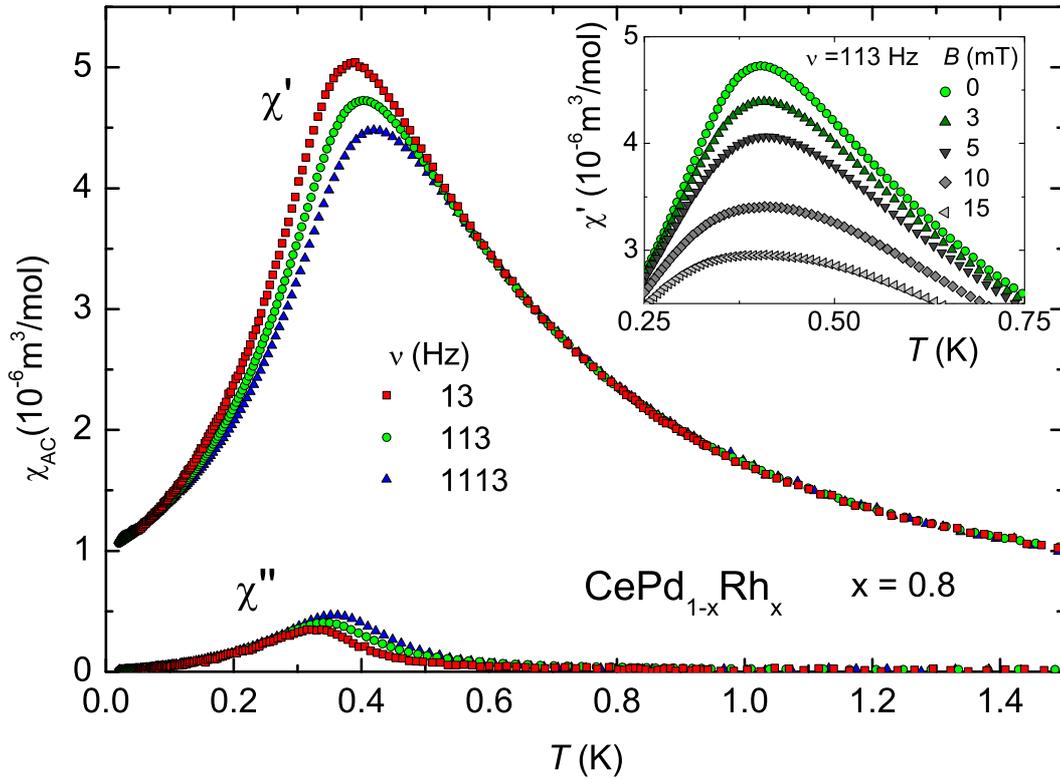


Abb. 5.11: Magnetische AC-Suszeptibilität χ_{AC} über T für $\text{CePd}_{0.2}\text{Rh}_{0.8}$. Gezeigt sind sowohl der Realteil χ' als auch der Imaginärteil χ'' , gemessen bei den drei Frequenzen $\nu = 13, 113$ und 1113 Hz. Das Maximum in χ' ist deutlich frequenzabhängig und schiebt mit zunehmender Frequenz zu höherer Temperatur während die Amplitude abnimmt. χ'' zeigt entsprechend einen Wendepunkt. Im Inset ist das Maximum in $\chi'(T)$ unter Einfluss eines kleinen, statischen Magnetfeldes von bis zu 15 mT gezeigt. Die Höhe des Maximums nimmt mit zunehmendem Feld sehr schnell ab.

Abnahme der Signalstärke. Die Wendepunkte bei T_C^* in χ'' verhalten sich entsprechend, jedoch mit zunehmender Signalstärke. Allerdings ist der Imaginärteil sehr klein, so dass sich geringe Fehler bei der Normierung der Rohdaten deutlich stärker auswirken als dies beim Realteil der Fall ist. Für den Imaginärteil wurde die Annahme gemacht, dass nach Abzug des Leersignals der gleiche Faktor angewendet werden kann, der für hohe Temperaturen T den Realteil χ' auf χ_{DC} normiert. An dieser Probe wurde außerdem der Einfluss eines zusätzlichen äußeren Magnetfeldes auf das Probensignal untersucht. Durch Anlegen eines kleinen, statischen Magnetfeldes wird das Maximum in $\chi'(T)$ deutlich unterdrückt, wie im Inset von Abb. 5.11 gezeigt ist. Es reichen schon 15 mT aus, um das Signal des Maximums in etwa zu halbieren. Solch ein Effekt ist typisch für Systeme mit spinglasartigem Verhalten [59].

In der Probe mit einem tatsächlichen Rh-Anteil $x = 0.9$ kann kein Phasenübergang

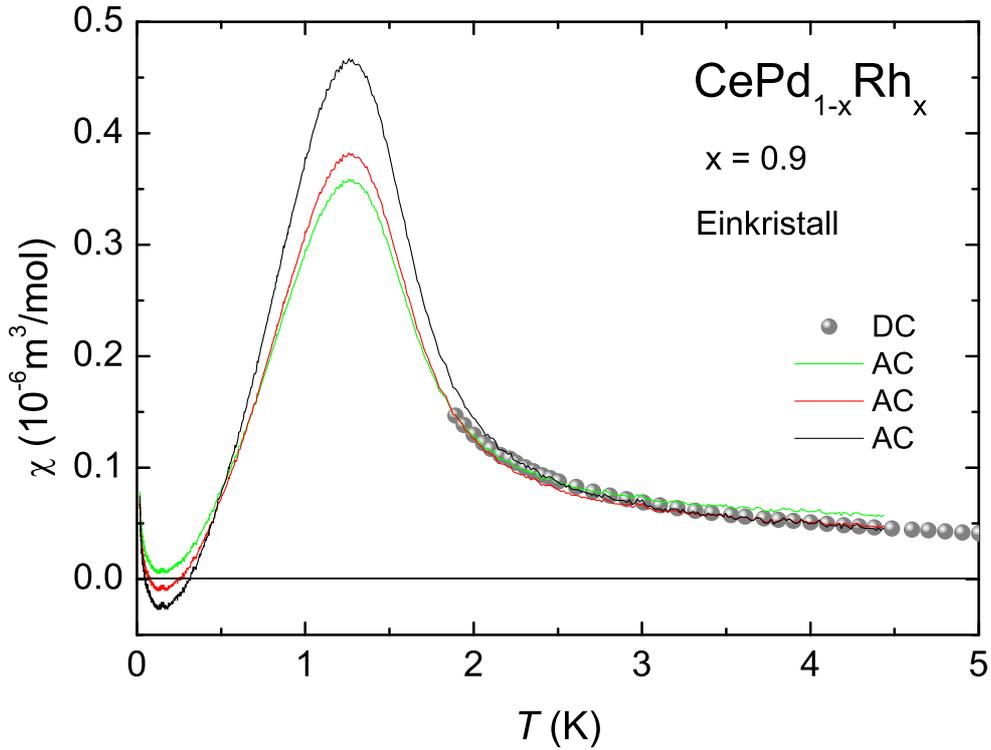


Abb. 5.12: Realteil χ' der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität (AC) sowie die Suszeptibilität $M(T)/B$ (DC) über der Temperatur T für $\text{CePd}_{0.1}\text{Rh}_{0.9}$. Für χ' sind drei verschiedene Anpassungen an die DC-Daten gezeigt, um den Fehler der Werte zu verdeutlichen.

mehr detektiert werden, die Werte der Suszeptibilität sind klein im Vergleich zu den anderen Proben. Allerdings sind auf Grund der hohen Sensibilität der Messmethode Signale von kleinsten Verunreinigungen messbar. Hier zeigt sich entsprechend zu den Messungen der anderen Proben eine magnetische Fremdphase in Form eines breiten Maximums um 1.25 K, siehe Abb. 5.12. Bei tieferer Temperatur tendiert $\chi'(T)$ zu negativen Werten mit einem Minimum bei $T \approx 0.15$ K. Dieser Effekt ist für verschiedene Anpassungen von $\chi'(T)$ an die Hochtemperaturmessdaten $\chi_{DC}(T)$ des Squid-Magnetometers unterschiedlich stark ausgeprägt, deutet jedoch auf eine supraleitende Fremdphase hin, siehe dazu Abschnitt 5.2.4. Bei tiefsten Temperaturen ist ein erneuter Anstieg zu beobachten. Auf Grund des kleinen Signals in der Probe mit $x = 0.86$ ist dieser Anstieg möglicherweise als Anzeichen eines Maximums unterhalb von $T = 18$ mK zu interpretieren.

In Tabelle 5.3 sind die Curie-Temperatur T_C (für $x = 0.58$) sowie für $x \geq 0.72$ die Übergangstemperaturen T_C^* in den kurzreichweitig geordneten Bereich in Abhängigkeit vom Rh-Gehalt x und der Wechselfeldfrequenz ν zusammengefasst dargestellt. Der Fehler bei der Bestimmung von T_C^* beträgt etwa 5 mK, wobei jedoch für alle Konzentrationen mit steigender Frequenz klar der Trend zu höheren Werten von T_C^* zu

	$x = 0.58$	$x = 0.72$	$x = 0.80$	$x = 0.82$	$x = 0.85$	$x = 0.86$
ν (Hz)	T_C (mK)	T_C^* (mK)				
13	2370	650	385	235	105	52
113	2370	660	402	245	115	58
1113	2375	680	420	260	130	65

Tabelle 5.3: Temperaturen der Maxima von $\chi'(T)$ gemessen an Einkristallen in Abhängigkeit von der Rh-Konzentration x und der Wechselfeldfrequenz ν .

erkennen ist.

Die Messungen der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität an Poly- und Einkristalle zeigen keine großen Abweichungen voneinander. Es konnte gezeigt werden, dass sich das System $CePd_{1-x}Rh_x$ bei $x = 0.58$ noch in einem eindeutig ferromagnetischen Grundzustand befindet. Für $0.72 \leq x \leq 0.87$ wurde eine Frequenzabhängigkeit der Übergangstemperatur beobachtet. Dieses Verhalten deutet, zusammen mit der starken Abnahme der Amplitude des Signals, auf das Einfrieren magnetischer Zustände hin. In Abschnitt 5.3 wird dieses Verhalten genauer analysiert.

5.2.4 Widerstandsmessungen

An den Einkristallen mit einem Rh-Gehalt von $x = 0.58$ und $x = 0.8$ wurden Widerstandsmessungen bis zur tiefsten Temperatur von 20 mK durchgeführt. Abb. 5.13 zeigt die Messungen im Nullfeld und für mehrere äußere Magnetfelder. Bei $x = 0.58$ ist etwas unterhalb von 3 K der ferromagnetische Phasenübergang in Form eines Maximums zu erkennen (schwarzer Pfeil). Das Maximum schiebt mit zunehmendem Magnetfeld zu höherer Temperatur. Bei etwa 1 K tritt eine weitere Anomalie auf. Der Widerstand zeigt ein leichtes Abknicken zu tieferen Werten bei sinkender Temperatur, gekennzeichnet durch einen Pfeil mit weißer Spitze. Diese Anomalie verschiebt im angelegten Magnetfeld zu tieferer Temperatur. Für $x = 0.8$ ist ebenfalls bei etwa 1 K eine Anomalie, hier in Form eines steilen Abfalls des Widerstandes, zu beobachten (weiße Pfeilspitze). Sie schiebt ebenfalls mit ansteigendem Magnetfeld zu tieferen Temperaturen, kann aber erst oberhalb von 1 T vollständig unterdrückt werden. Ein schwarzer Pfeil kennzeichnet die durch die Suszeptibilitätsmessungen ermittelte Übergangstemperatur in die kurzreichweitig geordnete Phase. An dieser Stelle tritt ein leichter Knick auf.

Der Abfall des Widerstandes bei etwa 1 K spricht für eine supraleitende Fremdphase in den Kristallen. Tatsächlich wurden in der anschließenden Analyse der Proben mit Hilfe winkelauflösender EDX systematisch Verunreinigungen in Form von Ta_7Rh_3 gefunden [152]. Da die Proben in Tantal-Tiegeln gezogen wurden und bei der Zucht ein leichter Rh-Überschuss entsteht, ist dieses Ergebnis durchaus schlüssig. Tantal wird bei 4.3 K supraleitend. Für amorphes $Ta_{11}Rh_9$ wird eine supraleitende Sprungtempe-

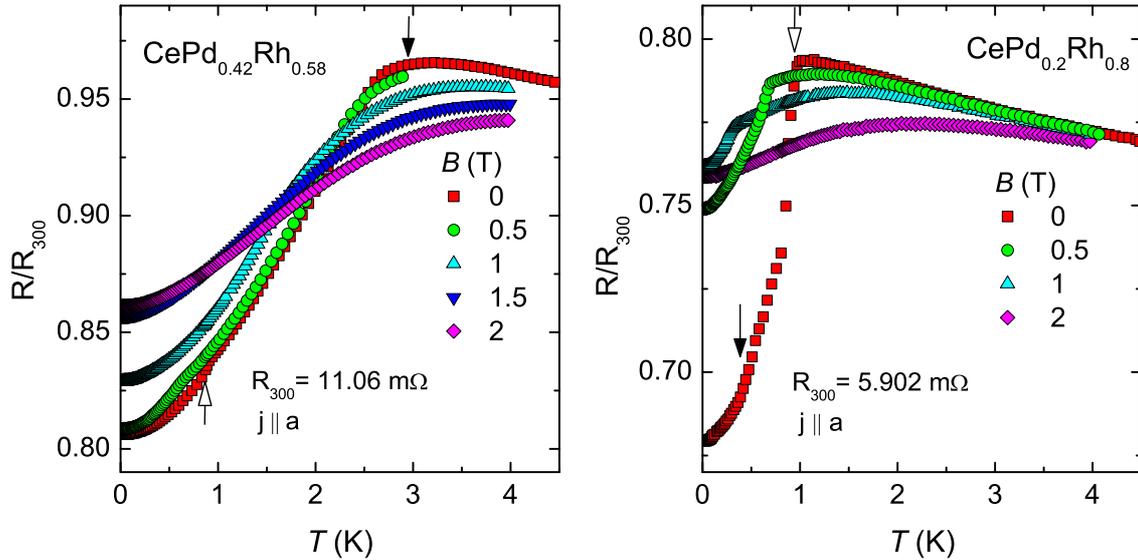


Abb. 5.13: Elektrischer Widerstand von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ normiert auf die Werte bei Raumtemperatur aufgetragen über der Temperatur für $x = 0.58$ und $x = 0.8$ für einige Magnetfeldern. Für $B = 0$ kennzeichnen schwarze Pfeile T_C bzw. T_C^* und Pfeile mit weißen Spitzen eine zusätzliche Anomalie bei jeweils etwas unterhalb von 1 K. R_{300} bezeichnet den Widerstand bei Raumtemperatur.

ratur von 3.37 K angegeben [154]. Supraleitende Fremdphasen in $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ würden auch den negativen Beitrag zur Suszeptibilität in $\text{CePd}_{0.1}\text{Rh}_{0.9}$ erklären. Auf Grund dieser Probleme wurde auf weitere Widerstandsmessungen, insbesondere für höhere Rh-Konzentrationen, bei tiefen Temperaturen verzichtet. Insgesamt sind die Widerstandswerte bei tiefer Temperatur nur wenig kleiner als bei Raumtemperatur, wie es in Legierungen zu erwarten ist. Das Widerstandsverhältnis von Raumtemperatur zu 2 K ist für Proben mit Rh-Anteilen im Bereich der positiven Krümmung der Phasengrenzlinie am geringsten [152].

5.3 Analyse und Diskussion

Die mit Hilfe der Wechselfeldsuszeptibilität ermittelten Übergangstemperaturen können in guter Übereinstimmung zu den bisherigen Daten im Phasendiagramm eingetragen werden, siehe Abb. 5.14. Die neuen Ergebnisse bestätigen das Ausschmieren zu einer positiven Krümmung der Phasengrenzlinie, die im Bereich von $0.7 \leq x \leq 0.87$ in einen linearen Verlauf übergeht. Rechts in Abb. 5.14 ist dieser Bereich vergrößert dargestellt, der erstmals bis zur tiefsten Temperatur von 20 mK vermessen wurde. Es sind die Übergangstemperaturen von Poly- und Einkristallen bei $\nu = 13$ Hz aufgetragen. Die Abweichung zwischen den beiden Proben mit $x = 0.8$ ist vermutlich auf einen

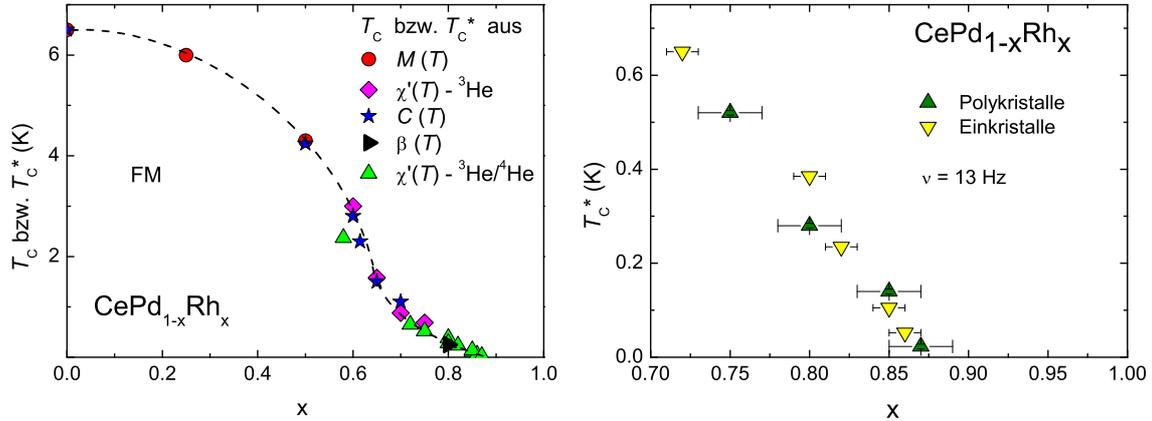


Abb. 5.14: Links: Phasendiagramm entsprechend Abb. 5.1 ergänzt um die Übergangstemperaturen der AC-Suszeptibilität. Rechts: Vergrößerter Ausschnitt für $0.7 \leq x \leq 1$, in dem nur die Suszeptibilitätsdaten von Poly- (Δ) und Einkristallen (∇) gezeigt sind.

geringeren Rh-Gehalt in der einkristallinen Probe zurückzuführen. Neben ihrer Übergangstemperatur im Phasendiagramm ist auch die Stärke des Maximums in $\chi'(T)$ im Vergleich zu den übrigen Proben erhöht, wie aus den Abbildungen 5.7 und 5.10 hervorgeht.

Die Frequenzabhängigkeit der Maxima in $\chi'(T)$ ist charakteristisch für Spingläser. In klassischen Spingläsern (vergleiche Abschnitt 3.4.1) beträgt die relative Verschiebung in der Temperatur üblicherweise etwa 1 bis 2% pro Frequenzdekade [59]. Die Frequenzverschiebung FV lässt sich über die Formel

$$FV = \frac{\Delta T_C^*}{T_C^* \Delta(\log \nu)} = \frac{T_2 - T_1}{T_2 \log \frac{\nu_2}{\nu_1}} \quad (5.2)$$

ermitteln. T_C^* bezeichnet die Spinglas- bzw. Clusterglastemperatur. ΔT_C^* entspricht der Temperatur- und $\Delta(\log \nu)$ der Frequenzdifferenz der Maxima. Konkret wurden hier für die Bestimmung von FV zwei Messfrequenzen ν_1 und ν_2 gewählt, wobei $\nu_1 < \nu_2$ gewählt wurde. ΔT_C^* wurde aus der Differenz der Übergangstemperaturen T_2 bei ν_2 und T_1 bei ν_1 gebildet. Es wurde auf die höhere Temperatur T_2 normiert. Die für $CePd_{1-x}Rh_x$ berechneten Frequenzabhängigkeiten sind in Abb. 5.15 dargestellt.

Es zeigt sich, dass die relative Frequenzverschiebung mit zunehmendem Rh-Gehalt zunimmt. Liegt der Wert für $x = 0.72$ noch bei 2.3% so steigt er bis auf 10% für $x \geq 0.85$. Die Werte liegen oberhalb von den in klassischen Spingläsern beobachteten, aber noch deutlich unterhalb von Werten die in Superparamagneten gefunden wurden [59]. Zwar lässt sich aus diesem Verhalten nicht direkt eine Aussage über Art oder Größe der einfrierenden magnetischen Momente ziehen. Allerdings ist anzunehmen, dass die Rh-Konzentration einen Einfluss auf den Einfrierprozess haben muss.

Unabhängig von der Stärke der Frequenzverschiebung zeigen die Ergebnisse der Wechselfeldsuszeptibilität eindeutig, dass in $CePd_{1-x}Rh_x$ mit $x \geq 0.72$ kurzreichweitige

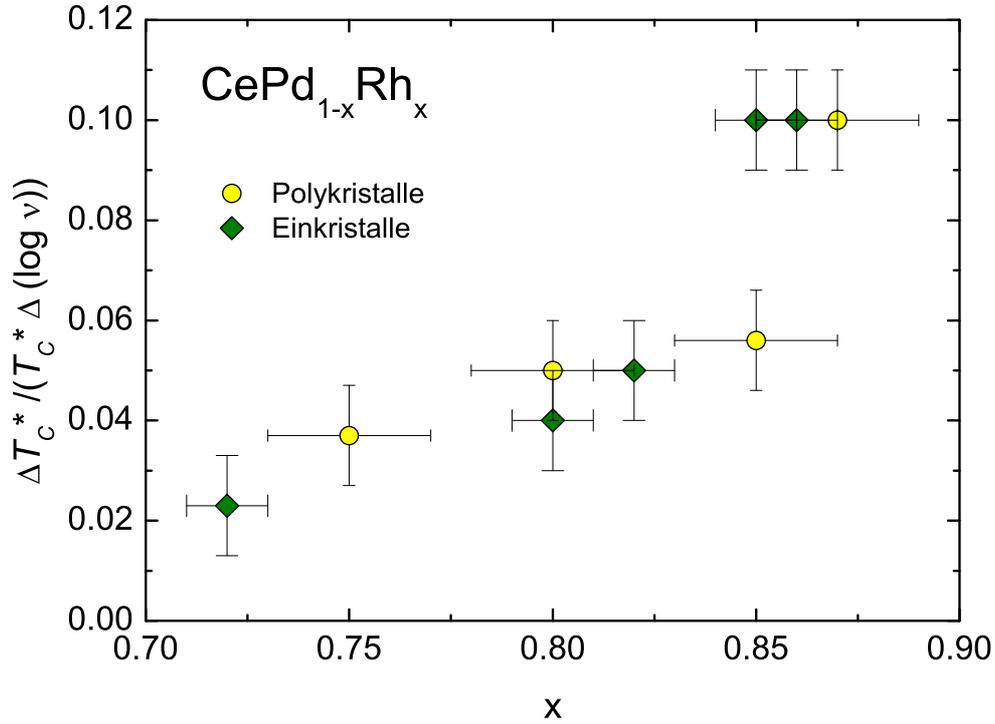


Abb. 5.15: Relative Frequenzverschiebung von T_C^* pro Dekade in der Frequenz in Abhängigkeit vom Rh-Anteil x , berechnet nach Gl. (5.2). Poly- (○) und Einkristalle (◇) sind durch verschiedene Symbole gekennzeichnet.

Ordnung auftritt, die unterhalb von T_C^* zu einem eingefrorenen Zustand führt. Dieses Verhalten konnte durch Messungen der Magnetisierung als Funktion der Temperatur $M(T)$ bestätigt werden, welche von M. Deppe und M. Brando durchgeführt wurden. Dazu wurde die Probe von weit oberhalb der Übergangstemperatur bis zur tiefsten zu erreichenden Temperatur im Nullfeld abgekühlt. Anschließend wurde $M(T)$ nach Anlegen eines kleinen Magnetfeldes im Aufwärmen gemessen. Dieser Vorgang wird als nullfeldgekühlt bezeichnet. Danach wurde $M(T)$ im selben Magnetfeld im Abkühlen gemessen. Entsprechend wird dieser Vorgang als feldgekühlt bezeichnet.

Im Inset von Abb. 5.16 ist $M(T)$ in der Umgebung des spinglasartigen Übergangs T_C^* exemplarisch für einen Rh-Anteil von $x = 0.7$ dargestellt. Im feldgekühlten Fall bleibt eine remanente Magnetisierung unterhalb von T_C^* bestehen. Im nullfeldgekühlten Fall hingegen sind die magnetischen Momente bei tiefer Temperatur zufällig eingefroren und können sich auch im angelegten Feld erst durch Erhöhen der Temperatur allmählich ausrichten. Somit durchläuft $M(T)$ in diesem Fall ein Maximum bei T_C^* . Oberhalb von T_C^* laufen die Messkurven in dieser Darstellung zusammen. In doppelt-logarithmischer Auftragung ist zu erkennen, dass die beiden Kurven erst bei höherer Temperatur $T \gg T_C^*$ aufeinander liegen. Die Irreversibilität setzt also schon deutlich oberhalb von T_C^* bei einer Temperatur $T_{cluster}$ ein. Dies ist in Abb. 5.16 für mehrere

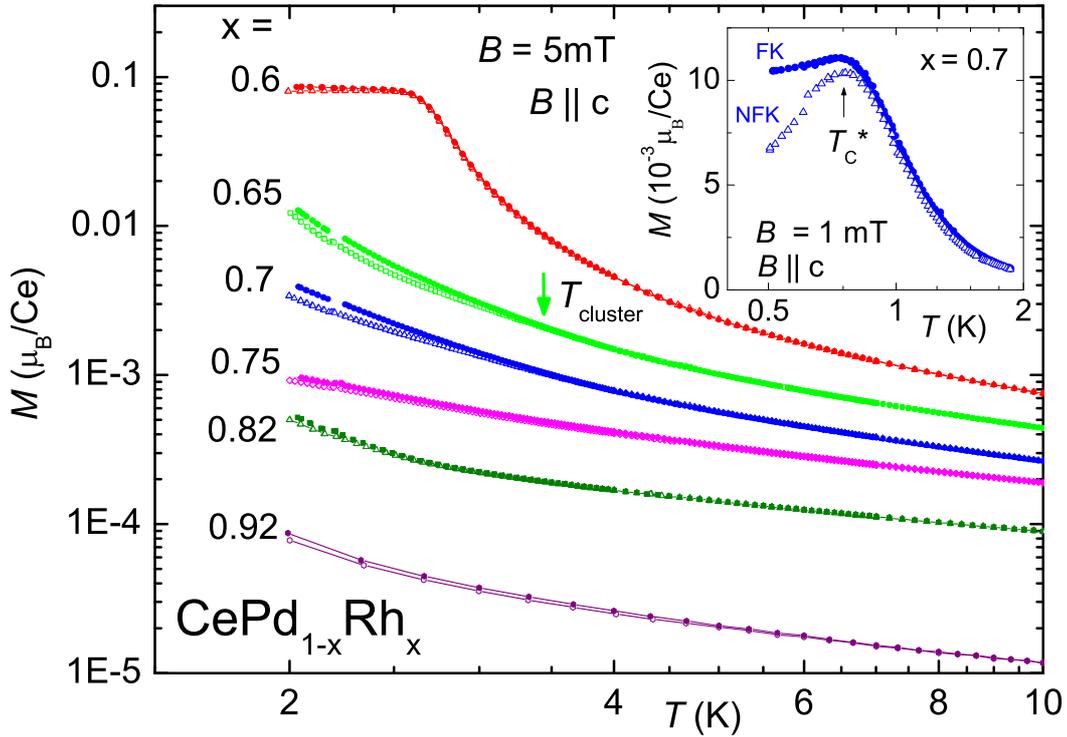


Abb. 5.16: Magnetisierung als Funktion der Temperatur in logarithmischer Auftragung in einem konstanten Magnetfeld von 5 mT. Gezeigt sind nullfeldgekühlte (NFK, offene Symbole) und feldgekühlte (FK, gefüllte Symbole) Messungen an Einkristallen mit einem Rh-Gehalt von $0.6 \leq x \leq 0.92$ bis hinab zu 2 K. Der Pfeil bei der Temperatur $T_{cluster}$ kennzeichnet (exemplarisch für $x = 0.65$) die einsetzende Ordnung innerhalb der Cluster. Im Inset ist eine Messung für $x = 0.7$ bis hinab zu $T = 0.45$ K bei $B = 1$ mT gezeigt. Hier kennzeichnet der Pfeil die Übergangstemperatur T_C^* in den eingefrorenen Clusterglas-Zustand. Messungen von M. Deppe und M. Brando.

Rh-Konzentrationen gezeigt. Eine mögliche Erklärung ist die Bildung von Clustern bei $T_{cluster}$. Die einzelnen Cluster sind für sich betrachtet ferromagnetisch geordnet, fluktuieren jedoch gegeneinander und frieren erst unterhalb von T_C^* ein. Für $x = 0.65$ ist die Temperatur $T_{cluster}$, an der die Aufspaltung zwischen nullfeld- und feldgekühlter Messung verschwindet, durch einen Pfeil gekennzeichnet. Die Breite der Aufspaltung nimmt mit zunehmendem Rh-Gehalt ab. Die Bildung ferromagnetischer Cluster könnte auch die negative thermische Ausdehnung und das daraus resultierende negative Grüneisen-Verhältnis $\Gamma(T)$, welche in Abschnitt 5.1 diskutiert wurden, erklären. Im paramagnetischen Bereich des Phasendiagramms wird für $\Gamma(T)$ auf Grund der unter Druck zunehmenden Dominanz der Kondo-Energie ein positiver Wert erwartet. Die bei der Clusterbildung auftretenden ferromagnetischen Korrelationen müssten demnach dieser Dominanz entgegenwirken. Für $x = 0.6$ zeigt $M(T)$ den Phasenübergang

in die ferromagnetische Phase.

Wie in Abb. 5.4 gezeigt, nimmt mit zunehmendem Rh-Gehalt im hier betrachteten Bereich des Phasendiagramms die Konzentration der unabgeschirmten magnetischen Momente auf Grund der steigenden gemittelten Kondo-Temperatur ab. Dieser Effekt könnte möglicherweise die zunehmende Frequenzabhängigkeit in $\chi'(T)$ und die Abschwächung der Aufspaltung in $M(T)$ beeinflussen. Messungen der Muon-Spin-Resonanz [155] an einer Probe mit $x = 0.85$ haben gezeigt, dass die Spinfluktuationsrate unterhalb von 2 K deutlich sinkt. Allerdings konnte bis hinab zu 60 mK weder langreichweitige Ordnung noch das Einfrieren der Spins beobachtet werden, was dafür spricht, dass die Konzentration der Cluster im Kristall sehr klein ist.

Auf Grund der Form der Phasengrenzlinie und der Ausbildung kurzreichweiti-ger Ordnung in $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ scheint das System über das Modell von Dobrosavljević und Miranda zur Bildung eines Clusterglases im Bereich einer Quanten-Griffiths-Phase [71] (siehe Abschnitt 3.4.3) erklärt werden zu können. Im Quanten-Griffiths-Phasen-Szenario, wie in Abschnitt 3.4.2 beschrieben, nimmt der Exponent $(\alpha - 1)$ der thermodynamischen Messgrößen $C(T)/T$ und $\chi(T)$ ab, je weiter das System vom langreichweitig geordneten Grundzustand entfernt ist. Für $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ sollte demnach mit steigendem Rh-Anteil der Exponent abnehmen. Ein entsprechendes Verhalten wurde in $C(T)/T$ für $x \geq 0.87$ bereits beobachtet [148]. α entspricht dabei 0.6 für $x = 0.87$ und 0.67 für $x = 0.9$.

Die Daten der Wechselfeldsuszeptibilität weisen alle ein Maximum am Übergang in die Clusterglas-Phase auf. Dennoch ist anzunehmen, dass für hohe Rh-Konzentrationen der Exponent oberhalb des Übergangs im Wesentlichen vom Einfluss der Quanten-Griffiths-Phase bestimmt wird. In Abb. 5.17 sind die Daten aus den Abbildungen 5.7 und 5.10 in doppelt-logarithmischer Auftragung dargestellt. Die durchgezogenen Linien entsprechen Anpassungen mit $\chi \sim T^{\alpha-1}$. Poly- und Einkristalle zeigen ähnliches Verhalten. Es zeigt sich, dass für $x \leq 0.8$ die Werte von α sehr klein und damit im Griffiths-Bild nicht sinnvoll sind. Dies ist auf die höhere Übergangstemperatur in die Clusterglas-Phase bei abnehmender Rh-Konzentration zurückzuführen. Der Übergang überlagert hier den für die Anpassung relevanten Temperaturbereich. Zudem nimmt die Amplitude des Maximums mit abnehmendem Rh-Gehalt zu. Für größere x ist aber dieselbe Tendenz wie in $C(T)/T$ zu erkennen, α steigt mit zunehmendem x . Der einzige direkte Vergleich, der hier möglich ist, ergibt für die polykristalline Probe mit $x = 0.87$ in $\chi(T)$ einen Wert $\alpha = 0.49$, der etwas kleiner als in $C(T)/T$ ist. Im Quanten-Griffiths-Szenario sollten die Exponenten zwar übereinstimmen, die Abweichung lässt sich aber möglicherweise durch einen auf Grund des Einfrierprozesses zusätzlich auftretenden Beitrag in $\chi(T)$ erklären. Die bereits in Abschnitt 5.2 diskutierten Verunreinigungen sind in der doppelt-logarithmischen Auftragung oberhalb etwa 1 K noch deutlicher als Schulter zu erkennen. Die zugehörigen Datenpunkte in diesen Bereichen wurden bei den Anpassungen ausgespart.

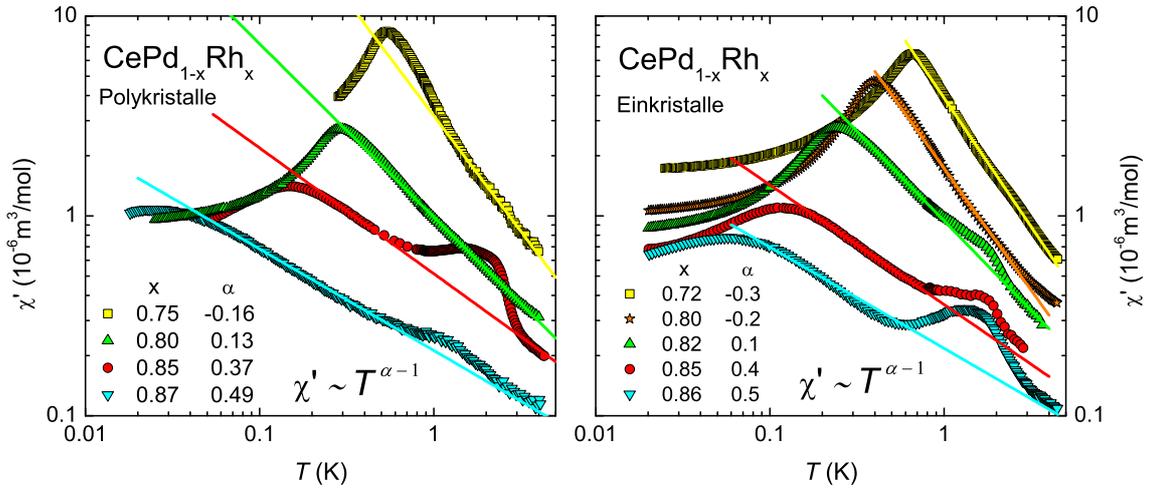


Abb. 5.17: Suszeptibilitätsdaten der Poly- und Einkristalle bei 113Hz in doppelt-logarithmischer Auftragung. Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen entsprechend der Theorie zu Quanten-Griffiths-Phasen mit $\chi \sim T^{\alpha-1}$ [70].

Zwar gibt es für die thermische Ausdehnung keine theoretischen Vorhersagen zu deren Divergenz im Quanten-Griffiths-Phasen-Szenario. Unter der Annahme, dass sich die thermische Ausdehnung analog zu $\chi(T)$ und $C(T)/T$ verhalten könnte, wären dieselben Exponenten α zu erwarten. Diese Vermutung ergibt sich daraus, dass die thermische Ausdehnung ebenfalls eine zweite Ableitung der freien Energie ist. Weil das Grüneisen-Verhältnis der Quotient aus thermischer Ausdehnung und spezifischer Wärme ist, wäre dafür in diesem Fall ein temperaturunabhängiges Verhalten zu erwarten, wie es experimentell beobachtet wurde (vergleiche Abb. 5.5).

Die Größe der Cluster in $CePd_{1-x}Rh_x$ ist nach wie vor ungeklärt. Wie in Abschnitt 3.4.2 beschrieben, ist das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis ein Maß, um die Größe des magnetischen Moments der Cluster abzuschätzen. Es ist proportional zum Quotienten aus $\chi(T)$ und $C(T)/T$. Da in beiden Größen die Anzahl der Cluster enthalten ist, kürzt sie sich heraus. Der Proportionalitätsfaktor entspricht $\pi^2 k_B^2 / (\mu_0 \mu_{eff}^2)$ [95]. Abb. 5.18 zeigt das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis in Abhängigkeit von der Temperatur in logarithmischer Auftragung für die drei Polykristalle, an denen sowohl $\chi(T)$ als auch $C(T)/T$ gemessen wurde. Es ergeben sich relativ große Werte von etwa 20 bis 30 wie sie z. B. in nahezu ferromagnetischen Metallen beobachtet wurden [156]. Eine Divergenz nach Gl. (3.10) ist jedoch nicht über einen größeren Temperaturbereich zu beobachten. Für das effektive magnetische Moment wurde hier ein typischer Wert von $1 \mu_B$ angenommen. Diese Größenordnung ist für Ce-Systeme realistisch. Aus Curie-Weiss-Anpassungen oberhalb von T_C^* geht hervor, dass der Wert auch etwas kleiner als $1 \mu_B$ sein könnte. Das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis wäre dann noch etwas höher. Da das mittlere magnetische Moment der Cluster quadratisch in das Sommerfeld-Wilson-

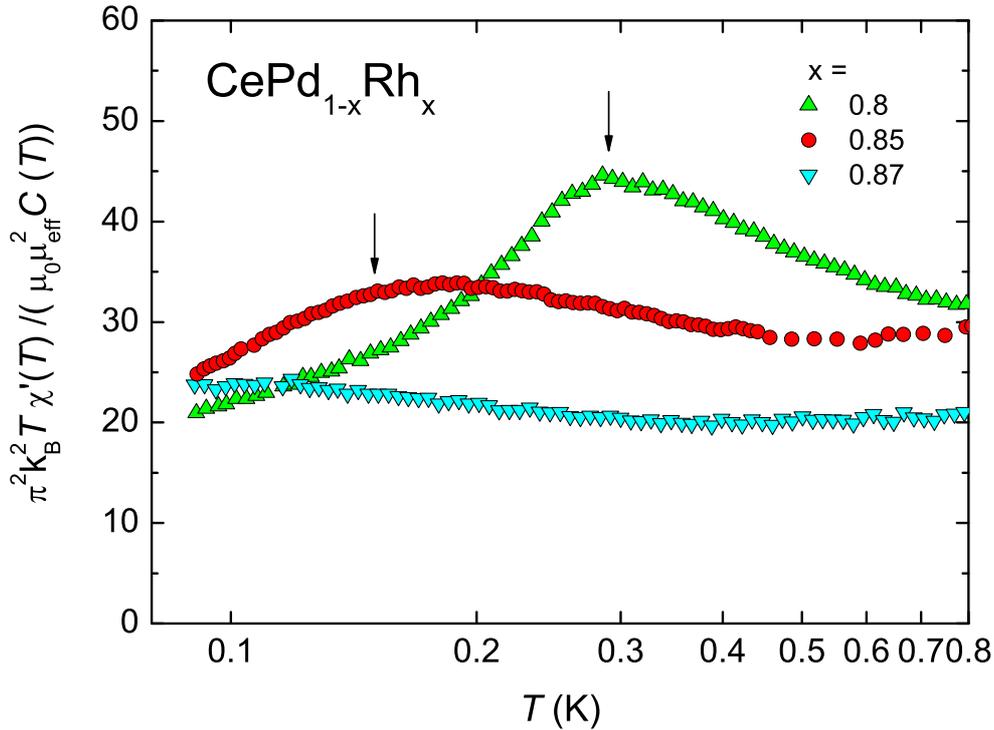


Abb. 5.18: Temperaturabhängigkeit des Sommerfeld-Wilson-Verhältnisses für die drei Konzentrationen $x = 0.8, 0.85$ und 0.87 . Dazu wurden die Daten der AC-Suszeptibilität und der spezifischen Wärme [148] verwendet, die an denselben Proben gemessen wurden. Es ist deutlich zu erkennen, dass das Sommerfeld-Wilson-Verhältnis mit Werten zwischen 20 und 30 im Vergleich zu Kondo-Systemen deutlich erhöht ist. Daneben ist jeweils T_C^* zu erkennen und durch Pfeile markiert.

Verhältnis eingeht und dieses auf das effektive magnetische Moment normiert wurde, entspricht die Quadratwurzel des Sommerfeld-Wilson-Verhältnisses in etwa der typischen Anzahl der Spins pro Cluster. Somit ist von Clustern mit durchschnittlich etwa fünf Spins auszugehen. Definitiv handelt es sich aber nicht um einzelne Spins, die hier fluktuieren und später einfrieren. Auch die geringe Entropie, die aus der spezifischen Wärme ermittelt wurde [148], spricht gemäß Gl. (3.11) dafür, dass die typischen Cluster nicht aus einzelnen Spins gebildet werden.

Für $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ ist nach den bisherigen Erkenntnissen eher das Bild der magnetischen Quanten-Griffiths-Phase zutreffend, da elektronische Quanten-Griffiths-Phasen von einzelnen Kondo-Spins gebildet werden. In der theoretischen Beschreibung von Quanten-Griffiths-Phasen ist die Unordnung im System ein entscheidender Parameter. Wodurch sie verursacht wird, ist jedoch nicht festgelegt. In $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ kommen dazu mehrere Ursachen in Frage. Zum einen handelt es sich um eine Dotierungsreihe, so dass Unordnung auf Grund der statistisch verteilten Pd- und Rh-Atome entsteht. Zum anderen spielt in diesem System aber auch die Kondo-Temperatur eine wichtige

Rolle. Im Bereich hoher Rh-Anteile steigt sie stark an. Wie in Abschnitt 5.1 beschrieben, führt dies auf Grund der Unordnung zu einer breiten Verteilung lokaler Kondo-Temperaturen. Dieser Effekt trägt sicher mit zur Entstehung der magnetischen Cluster bei, da die Momente der Ce-Ionen abhängig von ihrer lokalen Umgebung unterschiedlich stark abgeschirmt werden. In den theoretischen Modellen wurden Quanten-Griffiths-Phasen bisher nur unter einem dieser beiden Aspekte betrachtet. Interessant wäre, ob sich die Modelle für elektronische und magnetische Quanten-Griffiths-Phasen kombinieren lassen, da in ersterem eine Verteilung von Kondo-Temperaturen berücksichtigt wird.

Schematisch ist die Vorstellung zur Entstehung und dem Einfrieren von Clustern in $CePd_{1-x}Rh_x$ in Abb. 5.19 für eine beliebige Rh-Konzentration im Bereich des Ausläufers im Phasendiagramm dargestellt [150]. Bei hoher Temperatur, die größer ist als die gemittelte Kondo-Temperatur $\langle T_K \rangle$, sind die magnetischen Ce-Momente ungeschirmt und fluktuieren, wie in Teilbild (a) gezeigt. Bei Abkühlung unter $\langle T_K \rangle$ werden immer mehr Ce-Momente abgeschirmt. Somit entstehen Bereiche im Kristall mit mehr magnetischen Momenten, die über die Kondo-Wechselwirkung koppeln, als andere Bereiche, siehe Teilbild (b). Bei Temperaturen unterhalb von $T_{cluster}$ bilden sich ferromagnetische Cluster, deren Gesamtmomente aber weiterhin gegeneinander fluktuieren (Teilbild (c)). Dies entspricht der Beobachtung irreversiblen Verhaltens in der Magnetisierung $M(T)$. Erst bei T_C^* frieren die Momente der Cluster auf Grund der zusätzlich relevant werdenden RKKY-Wechselwirkung willkürlich ein (Teilbild (d)), wie es die Ergebnisse der AC-Suszeptibilitätsmessungen nahelegen. Es bildet sich ein Clusterglas-Zustand, der auf Grund des Zusammenspiels der oben beschriebenen Faktoren, als „Kondo-Clusterglas“ bezeichnet werden kann.

In anderen Systemen wie etwa $CeCu_{1-x}Ni_x$ [142] scheint ein anderer Mechanismus die Clusterbildung zu verursachen. Dazu wurde ein Szenario perkolativer Cluster vorgeschlagen. In diesem System ist die Kondo-Temperatur mit wenigen Kelvin im gesamten Dotierungsbereich klein und die Entropie an der Übergangstemperatur mit etwa $0.5 R \ln 2$ groß [157] im Vergleich zu $CePd_{1-x}Rh_x$. Der Übergang in die Clusterglas-Phase kann dort in $C(T)$ und μSR beobachtet werden. Bevor die Clusterglas-Phase durch Dotierung zu $T = 0$ unterdrückt werden kann, erfolgt ein struktureller Phasenübergang.

$CePd_{1-x}Rh_x$ ist das im Tieftemperaturbereich bisher am besten untersuchte Ce-basierte ferromagnetische Schwere-Fermionen-System, in dem die Phasengrenzlinie bis hinab zu 25 mK verfolgt werden konnte. Im Bereich der positiv gekrümmten Phasengrenzlinie wechselt das System bei tiefer Temperatur und zunehmender Rh-Konzentration von einem langreichweitig geordneten, ferromagnetischen Zustand in den „Kondo-Clusterglas“-Zustand. Das Temperaturverhalten in diesem Bereich kann über das Quanten-Griffiths-Phasen-Szenario unter Einbeziehung der RKKY-Wechselwirkung beschrieben werden.

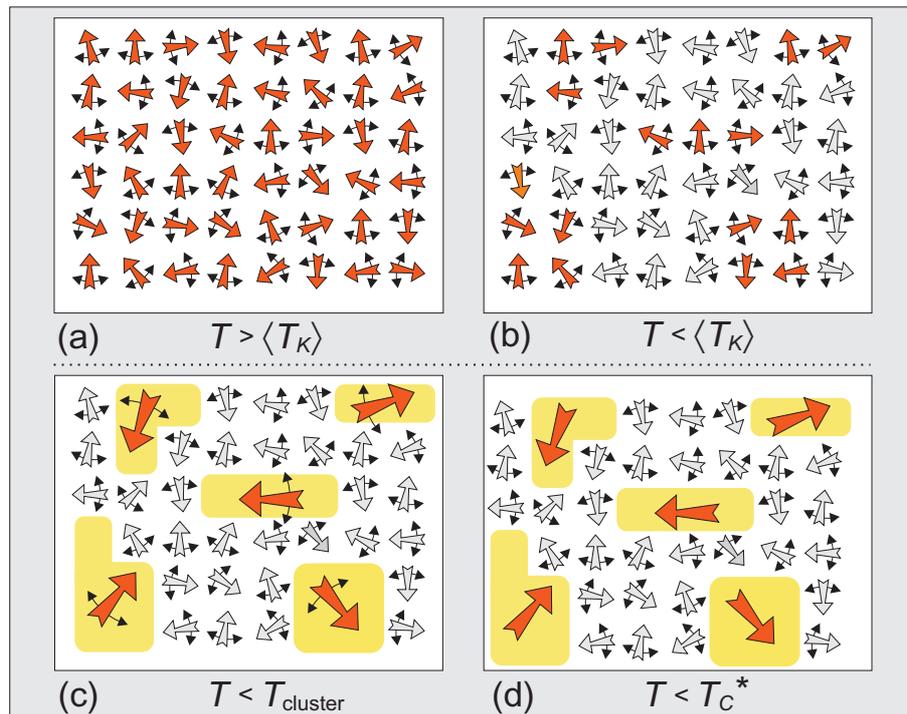


Abb. 5.19: Schematische Darstellung der verschiedenen beim Abkühlen durchlaufenen magnetischen Zustände in $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ für einen konstanten Rh-Anteil (Temperatur abnehmend von Teilbild (a) bis (d)). (a) Alle Ce-Momente unabgeschirmt (rote Blockpfeile) und fluktuierend (schwarze Pfeile). (b) Ce-Momente teilweise abgeschirmt (graue Blockpfeile), Entstehung von Regionen mit höherer Konzentration magnetischer Momente. (c) Ausbildung ferromagnetischer Cluster (große Blockpfeile), die gegeneinander fluktuieren. (d) Eingefrorene ferromagnetische Cluster.

5.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel konnte gezeigt werden, dass die Dotierungsreihe $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ von ihrem ferromagnetischen Grundzustand auf der Pd-reichen Seite durch einen kurzreichweitig geordneten Bereich zu einem paramagnetischen Grundzustand nahe CeRh übergeht. Die Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität haben ergeben, dass das System in einem Bereich von $0.72 \leq x \leq 0.87$ bei tiefen Temperaturen in einen Clusterglas-Zustand übergeht. Diese Phase bildet einen Ausläufer zu höheren Rh-Konzentrationen. Zusammen mit Ergebnissen aus Messungen der spezifischen Wärme und der Magnetisierung ergibt sich ein konsistentes Bild von der Ausbildung ferromagnetischer Cluster bei $T_{cluster}$ auf Grund von Unordnung und mit dem Rh-Gehalt stark zunehmender Kondo-Abschirmung in diesem Bereich. Alle bisherigen Beobachtungen sprechen dafür, dass sich $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ im Szenario für magnetische Quanten-Griffiths-Phasen verstehen lässt. Die Clusterglas-Phase entsteht auf Grund der Dämpfung magnetischer Fluktua-

tionen durch die RKKY-Wechselwirkung zwischen den Clustern [71], welche wegen der Verteilung lokaler Kondo-Temperaturen entstehen, und überlagert somit die Quanten-Griffiths-Phase. Weiteren Aufschluss über die Existenz einer solchen Quanten-Griffiths-Phase könnten Messungen der Magnetisierung bei tiefen Temperaturen als Funktion des Feldes liefern. Diese Größe sollte mit $M(H) \sim H^\alpha$ demselben Griffiths-Exponenten α wie die spezifische Wärme und die Suszeptibilität folgen [158]. Für $x = 0.8$ existieren bereits Daten und eine entsprechende Anpassung ergibt einen Wert $\alpha = 0.21$ [130]. Dieser stimmt gut mit den Beobachtungen aus der AC-Suszeptibilität überein. Weitere Messungen, insbesondere für höhere Rh-Konzentrationen, sind geplant.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden zwei intermetallische Seltenerd-Verbindungen experimentell untersucht. Die dazu durchgeführten Tieftemperaturexperimente umfassten Messungen des elektrischen Widerstands, der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität, der Magnetostriktion und der thermischen Ausdehnung. Beide Systeme sind durch ausgeprägtes Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten gekennzeichnet. Auf Grund ihrer Nähe zu einer magnetischen Instabilität eignen sich beide Systeme zur Analyse quantenkritischen Verhaltens, worauf der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt. Dabei wurde zum einen die antiferromagnetische Verbindung YbRh_2Si_2 untersucht, dessen geordnete Phase in einem kleinen Magnetfeld zu einem quantenkritischen Punkt unterdrückt werden kann. Hier konnte die Existenz einer zusätzlichen Energieskala thermodynamisch bewiesen werden. Durch Messung dotierter Proben wurde gezeigt, dass diese Energieskala unabhängig von der magnetischen Ordnung auftritt. Zum anderen wurde die Dotierungsreihe $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ betrachtet. In diesem System wird ferromagnetische Ordnung durch Dotierung mit Rh unterdrückt. Das Grüneisen-Verhältnis sättigt bei tiefen Temperaturen, anders als für quantenkritische Punkte erwartet. In dieser Arbeit wurde gezeigt, dass das System in einen kurzreichweitig geordneten, glasartigen Zustand übergeht, bevor es vollständig paramagnetisch wird.

Mit YbRh_2Si_2 wurde ein System untersucht, das sich in unmittelbarer Nähe zu einem quantenkritischen Punkt befindet, der sich nicht im itineranten Hertz-Millis-Szenario beschreiben lässt. Die antiferromagnetische Phase weist nur ein sehr kleines magnetisches Moment auf und lässt sich durch Anlegen eines Magnetfeldes von 0.05 T entlang der Basalebene des Kristall oder 0.66 T entlang dessen c -Richtung unterdrücken. An diesen kritischen Feldern tritt jeweils ein magnetfeldinduzierter quantenkritischer Punkt auf. Im höheren Feld zeigt das System bei tiefen Temperaturen einen Crossover zu Landau-Fermi-Flüssigkeitsverhalten. Im quantenkritischen Bereich wurde in Messungen des Hall-Effekts eine zusätzliche Crossover-Linie $T^*(B)$ beobachtet. Die Halbwertsbreiten der Crossover-Anomalien extrapolieren für $T \rightarrow 0$ zu null. Als Ursprung der Crossover-Linie wurde daher ein Sprung des Fermi-Volumens

am quantenkritischen Punkt vermutet, der in Form verbreiteter Signaturen bei endlichen Temperaturen beobachtbar ist. Dieser Effekt wurde auf den Zusammenbruch der Kondo-Abschirmung am quantenkritischen Punkt zurückgeführt. Die f -Elektronen würden demnach auf der antiferromagnetischen Seite nicht zur Fermi-Fläche beitragen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte mittels thermodynamischer Messungen bewiesen werden, dass $T^*(B)$ eine zusätzliche charakteristische Energieskala darstellt, die am quantenkritischen Punkt verschwindet. Die Messungen wurden an einkristallinen Proben mit einem Restwiderstand von etwa $0.5 \mu\Omega\text{cm}$ vorgenommen. Es konnte gezeigt werden, dass im Magnetwiderstand, der Magnetostriktion und der Magnetisierung als Funktion des Magnetfeldes Crossover auftreten, deren Halbwertsbreiten für $T \rightarrow 0$ zu null extrapolieren. Die zusätzlichen Energieskala, die neben denen der antiferromagnetischen Phase und des Landau-Fermi-Flüssigkeitsbereichs auftritt, ist nicht mit dem Hertz-Millis-Szenario für quantenkritische Punkte vereinbar. Ihr Ursprung könnte in elektronischen Fluktuationen liegen, die mit der Desintegration der Quasiteilchen einhergehen und nicht mit den Fluktuationen des magnetischen Ordnungsparameters zusammenhängen.

Unabhängig vom Nachweis der Existenz einer zusätzlichen Energieskala wurden einige weitere interessante Ergebnisse zu YbRh_2Si_2 erzielt. Zunächst konnte gezeigt werden, dass der Temperaturverlauf des elektrischen Widerstands in diesem System deutlich von der Probenqualität abhängt. Dieser Effekt könnte auf den Einfluss von Unordnung auf das anisotrope Streuverhalten im quantenkritischen Bereich hindeuten. Weiterhin wurde in der Magnetostriktion für $B \perp c$ bei etwa 10 T ein Übergang in einen Bereich linearer Längenänderung beobachtet, der vermutlich auf den Einfluss der Zeeman-Aufspaltung zurückzuführen ist, deren Energie in diesem Feldbereich mit der Kondo-Wechselwirkung vergleichbar wird und somit eine Polarisation der f -Elektronen bewirkt. Des Weiteren wurde mit Hilfe der magnetfeldabhängigen Wechselfeldsuszeptibilität nachgewiesen, dass die Winkelabhängigkeit des kritischen Feldes der antiferromagnetischen Phase der erwarteten Anisotropie des Landé-Faktors in tetragonalen Systemen folgt. Zudem konnten schließlich auf Grund der sehr guten Probenqualität unter Verwendung derselben Messmethode mit modifiziertem Messaufbau oberhalb von 13 T erstmals de Haas-van Alphen-Oszillationen nachgewiesen werden, deren Frequenz mit $F = 13.9 \text{ kT}$ größer als 10 kT ist. Diese Beobachtung ist konsistent zur mittels renormierter Bandstruktur berechneten Fermi-Fläche von YbRh_2Si_2 für itinerante f -Elektronen. Diese weist einen Extremalquerschnitt mit einer dazugehörigen de Haas-van Alphen-Frequenz von 13 kT auf.

Die zusätzliche Energieskala in YbRh_2Si_2 , die am quantenkritischen Punkt verschwindet, hat die Frage aufgeworfen, welche Auswirkungen eine leichte Dotierung der Proben auf dieses Phänomen hat. Hier wurden sowohl Proben mit Ir-Dotierung untersucht, deren Einheitszellenvolumen gegenüber YbRh_2Si_2 vergrößert ist, als auch Proben mit Co-Dotierung, die ein kleineres Einheitszellenvolumen aufweisen. An diesen Proben

wurden Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität, der Magnetostriktion und der thermischen Ausdehnung durchgeführt. Die Wechselfeldsuszeptibilität weist in allen Proben Anomalien auf, die nahezu identisch mit den im undotierten YbRh_2Si_2 beobachteten Signaturen sind. Daher ist für die dotierten Proben davon auszugehen, dass die sich in deren jeweiligen Phasendiagrammen ergebende Crossover-Linie gleichen Ursprungs ist. Besonders bemerkenswert ist jedoch, dass ihre Lage im Magnetfeld-Temperatur-Phasendiagramm weitestgehend unabhängig von der Dotierung ist. In den Ir-dotierten Proben wird die antiferromagnetische Phase unterdrückt, so dass die Crossover-Linie im paramagnetischen Bereich des Phasendiagramms bei $B = B_0$ zu $T = 0$ geht. Dagegen ist mit zunehmender Co-Dotierung eine Stabilisierung des Antiferromagnetismus zu beobachten, was in größeren kritischen Feldern resultiert. In diesem Fall zeigt sich, dass die Crossover-Linie die antiferromagnetische Phasengrenzlinie schneidet und im magnetischen Bereich des Phasendiagramms verschwindet. Diese neuen Erkenntnisse erfordern weitere Untersuchungen, da zu klären ist, ob die zusätzliche Energieskala auch für die dotierten Proben im Sinne einer thermodynamischen Signatur der Änderung des Fermi-Volumens interpretiert werden kann. Hierzu ist zum einen die Analyse von Hall-Effekt-Messungen [127] notwendig. Zum anderen sollte die Natur des antiferromagnetischen quantenkritischen Punktes mittels Messungen der spezifischen Wärme, des elektrischen Widerstandes und der thermischen Volumenausdehnung untersucht werden. Insbesondere das Grüneisen-Verhältnis aus thermischer Volumenausdehnung und spezifischer Wärme sollte Aufschluss darüber geben, ob am kritischen Feld der antiferromagnetischen Phase ein quantenkritischer Punkt existiert und welcher Natur er ist. Die Theorie macht für die Divergenz des Grüneisen-Parameters am antiferromagnetischen quantenkritischen Punkt unterschiedliche Vorhersagen im itineranten bzw. im lokal-kritischen Szenario. In Ersterem wird eine Divergenz nach einem Potenzgesetz mit einem Exponenten von -1 erwartet, während in Letzterem ein gebrochenzahliger Exponent vorhergesagt wird.

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass YbRh_2Si_2 ein System ist, das auch nach jahrelanger Forschung weiterhin durch neue Ergebnisse zum Verständnis quantenkritischen Verhaltens beiträgt und nach wie vor zahlreiche Möglichkeiten bietet auf diesem Gebiet neue Erkenntnisse zu liefern. Der Nachweis der Existenz einer zusätzlichen Energieskala, die unabhängig vom Magnetismus auftritt, erfordert neue theoretische Modelle und weitere experimentelle Untersuchungen. Insbesondere bleibt durch letztere zu klären, ob und wo in den dotierten Proben quantenkritische Punkte existieren.

Mit $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ wurde eine Verbindung untersucht, die die bisher einzigartige Möglichkeit bietet, in einem auf Ce basierenden Kondo-Gitter-System ferromagnetische Ordnung über mehrere Dekaden in der Temperatur bis hinab zu 20 mK zu verfolgen. In diesem System erfolgt mit zunehmender Rh-Dotierung ein Vorzeichenwechsel der Krümmung der Phasengrenzlinie von negativ zu positiv. Das nicht divergierende Grüneisen-Verhältnis legt nahe, dass in diesem System kein quantenkritischer Punkt im

Sinne der vorgestellten Theorien auftritt. Vielmehr muss das in spezifischer Wärme und thermischer Ausdehnung beobachtete Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten anderen Ursprungs sein. Im Rahmen dieser Arbeit konnte an Hand der Wechselfeldsuszeptibilität gezeigt werden, dass beim Übergang in den Dotierungsbereich mit positiv gekrümmter Phasengrenzlinie die langreichweitige, ferromagnetische Ordnung in einen kurzreichweitig geordneten Zustand übergeht, der spinglasartige Signaturen aufweist. Es wurde sowohl in poly- als auch in einkristallinen Proben ein scharfer Peak im Realteil der Wechselfeldsuszeptibilität beobachtet, der eine signifikante Frequenzabhängigkeit aufweist und bereits durch kleine, zusätzlich zum Wechselfeld angelegte, statische Magnetfelder unterdrückt wird. Dieses Verhalten zeigt deutliche Ähnlichkeit zu Spingläsern. Unter Berücksichtigung von Messergebnissen der Magnetisierung und der spezifische Wärme wurde der kurzreichweitig geordnete Zustand als Kondo-Clusterglas bezeichnet, denn auf Grund der Unordnung im System tritt im hier betrachteten Dotierungsbereich eine breite Verteilung lokaler Kondo-Temperaturen auf. Die Entstehung der Cluster ist wahrscheinlich auf die Wechselspiel zwischen der stark zunehmenden Kondo-Energie und den magnetischen Korrelationen zurückzuführen. Auf Grund der beobachteten Temperaturabhängigkeit in $C(T)/T$ und $\chi'(T)$ wird vermutet, dass das System im Szenario magnetischer Quanten-Griffiths-Phasen zu verstehen ist. Beide Größen folgen in etwa demselben Potenzgesetz mit nicht-universellen, von der Rh-Konzentration abhängenden Exponenten.

In dieser Arbeit wurden zwei sehr unterschiedliche, jedoch jeweils prototypische Systeme untersucht. Die Ergebnisse zu undotiertem und mit Ir bzw. Co dotiertem YbRh_2Si_2 haben aufgezeigt, dass eine unerwartete Energieskala im Phasendiagramm existiert, die neue theoretische Modelle zur Beschreibung quantenkritischen Verhaltens erfordert. An Hand von $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ konnte gezeigt werden, dass es möglich ist, das Verschwinden ferromagnetischer Ordnung in Abwesenheit eines quantenkritischen Punktes in einem Schwere-Fermionen-System im Rahmen des Quanten-Griffiths-Szenarios unter Berücksichtigung von Clusterglasbildung zu beschreiben. An YbRh_2Si_2 sind weitere Messungen durchzuführen, die die Lage und Natur eventueller quantenkritischer Punkte in den dotierten Proben bestimmen können. Hier seien als Beispiele die spezifische Wärme und die thermische Ausdehnung genannt. Weitere Messungen des de Haas-van Alphen-Effekts versprechen zusätzliche Erkenntnisse über die Natur der Fermi-Flächen in hohen Magnetfeldern. Für $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ wären weitere Messungen wünschenswert, die die Annahme eines Quanten-Griffiths-Szenarios bestätigen könnten. Hier sei die Magnetisierung als Funktion des Magnetfeldes genannt, für die ebenfalls Vorhersagen der Divergenz nach einem Potenzgesetz vorliegen. Außerdem bleibt das Verhalten der thermischen Ausdehnung, die bisher nur an Polykristallen gemessen wurde, in einkristallinen Proben zu klären. Aus theoretischer Sicht wäre von Interesse, im Modell der magnetischen Quanten-Griffiths-Phase die Verteilung von Kondo-Temperaturen als Prozess zu Bildung und Einfrieren von Clustern zu berücksichtigen.

Literaturverzeichnis

- [1] L. D. Landau, Sov. Phys. JETP **3**, 920 (1957).
- [2] G. Zwicknagl, Advances in Physics **41**, 203 (1992).
- [3] G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001).
- [4] G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **78**, 743 (2006).
- [5] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz und H. Schäfer, Phys. Rev. Lett. **43**, 1892 (1979).
- [6] J. A. Hertz, Phys. Rev. B **14**, 1165 (1976).
- [7] A. J. Millis, Phys. Rev. B **48**, 7183 (1993).
- [8] S. Doniach, Physica B **91**, 231 (1977).
- [9] R. KÜchler, N. Oeschler, P. Gegenwart, T. Cichorek, K. Neumaier, O. Tegus, C. Geibel, J. A. Mydosh, F. Steglich, L. Zhu und Q. Si, Phys. Rev. Lett. **91**, 066405 (2003).
- [10] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer und G. G. Lonzarich, Nature **394**, 39 (1998).
- [11] P. Gegenwart, Q. Si und F. Steglich, Nature Physics **4**, 186 (2008).
- [12] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman und Q. Si, Nature **432**, 881 (2004).
- [13] F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg, 1996.
- [14] E. Grüneisen, Annalen der Physik **16**, 530 (1933).
- [15] F. Bloch, Z. für Physik **59**, 208 (1930).
- [16] G. Brändli und R. Griessen, Cryogenics **13**, 299 (1973).

- [17] R. Pott und R. Schefzyk, J. Phys. E **16**, 444 (1983).
- [18] M. Lang, *Thermische Ausdehnung des Kondo-Systems (CeLa)Al₂ bei sehr tiefen Temperaturen*, Diplomarbeit, Technische Hochschule Darmstadt, 1986.
- [19] M. Lang, *Thermische Ausdehnung von elektronisch hochkorrelierten Materialien*, Dissertation, Technische Hochschule Darmstadt, 1991.
- [20] R. Modler, *Dilatometrische Untersuchungen zum Wechselspiel zwischen Supraleitung und Magnetismus in elektronisch hochkorrelierten Materialien*, Dissertation, Technische Hochschule Darmstadt, 1995.
- [21] F. Kromer, *Dilatometrische Untersuchungen an den Schwere-Fermionen-Verbindungen (UTh)Be₁₃*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2000.
- [22] F. Weickert, *Quantenkritisches Verhalten in hochkorrelierten Elektronensystemen*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2006.
- [23] J. Custers, *Quantum-Critical Behavior in the Heavy-Fermion Compounds YbRh₂Si₂ and CeIn_{3-x}Sn_x*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2004.
- [24] L. D. Landau, Z. für Physik **64**, 629 (1930).
- [25] L. Onsager, Phil. Mag. **43**, 1006 (1952).
- [26] D. Shoenberg, *Magnetic oscillations in metals*, Cambridge University Press, 1984.
- [27] P. Fulde, J. Keller und G. Zwicknagl, Solid State Physics **41**, 1 (1988).
- [28] G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **56**, 755 (1984).
- [29] F. Steglich, Springer Series in Solid-State Science **62**, 23 (1985).
- [30] F. Steglich, J. Phys. Chem. Solids **50**, 225 (1989).
- [31] K. Andres, J. E. Graebner und H. R. Ott, Phys. Rev. Lett. **35**, 1779 (1975).
- [32] R. D. Mattuck, *A guide to feynman diagrams in the many-body problem*, McGraw-Hill International Book Company, 1976.
- [33] J. Kondo, Prog. Theor. Phys. **32**, 37 (1964).
- [34] H. v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta und P. Wölfle, Rev. Mod. Phys. **79**, 1015 (2007).
- [35] L. D. Landau, Phys. Z. Soviet **11**, 26 (1937).

- [36] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Statistical Physics*, Butterworth-Heinemann, Oxford, 1997.
- [37] R. B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. **24**, 1479 (1970).
- [38] L. P. Kadanoff, W. Götze, D. Hamblen, R. Hecht, E. A. S. Lewis, V. V. Palciauskas, M. Rayl, J. Swift, D. Aspnes und J. Kane, Rev. Mod. Phys. **39**, 395 (1967).
- [39] W. Gebhardt und U. Krey, *Phasenübergänge und kritische Phänomene*, Vieweg, Braunschweig, 1980.
- [40] M. Vojta, Rep. Prog. Phys. **66**, 2069 (2003).
- [41] K. G. Wilson, Phys. Rev. B **4**, 3174 (1971).
- [42] M. A. Ruderman und C. Kittel, Phys. Rev. **96**, 99 (1954).
- [43] T. Kasuya, Prog. Theo. Phys. **16**, 45 (1956).
- [44] K. Yosida, Phys. Rev. **106**, 893 (1957).
- [45] T. Moriya und T. Takimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 960 (1995).
- [46] S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions*, Cambridge University Press, 1999.
- [47] H. v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schlager, A. Schröder, M. Sieck und T. Trappmann, Phys. Rev. Lett. **72**, 3262 (1994).
- [48] A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili und P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **80**, 5623 (1998).
- [49] A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili und P. Coleman, Nature **407**, 351 (2000).
- [50] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent und J. L. Smith, Nature **413**, 804 (2001).
- [51] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent und J. L. Smith, Phys. Rev. B **68**, 115103 (2003).
- [52] P. Coleman, C. Pépin, Q. Si und R. Ramazashvili, J. Phys.: Cond. Matter **13**, R723 (2001).
- [53] T. Senthil, M. Vojta und S. Sachdev, Phys. Rev. B **69**, 035111 (2004).
- [54] C. Pépin, Phys. Rev. Lett. **98**, 206401 (2007).
- [55] I. Paul, C. Pépin und M. R. Norman, Phys. Rev. Lett. **98**, 026402 (2007).

- [56] I. Paul, C. Pépin und M. R. Norman, Phys. Rev. B **78**, 035109 (2008).
- [57] M. Vojta, Phys. Rev. B **78**, 125109 (2008).
- [58] A. Fleischmann und C. Enss, Physik Journal **6**, 41 (2007).
- [59] J. A. Mydosh, *Spin Glasses - An Experimental Introduction*, Taylor and Francis, London, Washington, DC, 1993.
- [60] K. Binder und A. P. Young, Rev. Mod. Phys. **58**, 801 (1986).
- [61] V. Cannella und J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **6**, 4220 (1972).
- [62] J. L. Tholence und R. Tournier, Physica B **86-88**, 873 (1977).
- [63] P. Monod, J. J. Préjean und B. Tessier, J. Appl. Phys. **50**, 7324 (1979).
- [64] C. A. M. Mulder, A. J. van Duynveldt und J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **23**, 1384 (1981).
- [65] H. Maletta und W. Felsch, Phys. Rev. B **20**, 1245 (1979).
- [66] L. E. Wenger, C. A. M. Mijlder, A. J. van Duynveldt und M. Hardiman, Phys. Lett. A **87**, 439 (1982).
- [67] D. A. Gajewski, N. R. Dilley, R. Chau und M. B. Maple, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 9793 (1996).
- [68] B. Andraka und G. R. Stewart, Phys. Rev. B **47**, 3208 (1993).
- [69] S. Süllo, S. A. M. Mentink, T. E. Mason, R. Feyerherm, G. J. Nieuwenhuys, A. A. Menovsky und J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **61**, 8878 (2000).
- [70] E. Miranda und V. Dobrosavljević, Rep. Prog. Phys. **68**, 2337 (2005).
- [71] V. Dobrosavljević und E. Miranda, Phys. Rev. Lett. **94**, 187203 (2005).
- [72] T. Vojta, Phys. Rev. Lett. **90**, 107202 (2003).
- [73] T. Vojta und J. Schmalian, Phys. Rev. B **72**, 045438 (2005).
- [74] R. B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. **23**, 17 (1969).
- [75] M. Randeria, J. P. Sethna und R. G. Palmer, Phys. Rev. Lett. **54**, 1321 (1985).
- [76] D. Tanasković, E. Miranda und V. Dobrosavljević, Phys. Rev. B **70**, 205108 (2004).

- [77] M. C. de Andrade, R. Chau, R. P. Dickey, N. R. Dilley, E. J. Freeman, D. A. Gajewski, M. B. Maple, R. Movshovich, A. H. Castro Neto, G. Castilla und B. A. Jones, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5620 (1998).
- [78] M. A. Paalanen und R. N. Bhatt, *Physica B* **169**, 223 (1991).
- [79] D. S. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 534 (1992).
- [80] D. S. Fisher, *Phys. Rev. B* **51**, 6411 (1995).
- [81] A. H. Castro Neto und B. A. Jones, *Europhys. Lett.* **71**, 790 (2005).
- [82] A. J. Millis, D. K. Morr und J. Schmalian, *Europhys. Lett.* **72**, 1052 (2005).
- [83] A. H. Castro Neto und B. A. Jones, *Europhys. Lett.* **72**, 1054 (2005).
- [84] A. J. Millis, D. K. Morr und J. Schmalian, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 167202 (2001).
- [85] C. Petrovic, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, R. Movshovich, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk und P. Monthoux, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, L337 (2001).
- [86] K. Ishida, D. E. MacLaughlin, K. Okamoto, Y. Kawasaki, Y. Kitaoka, G. J. Nieuwenhuys, O. O. Bernal, A. Koda, W. Higemoto, R. Kadono, C. Geibel und F. Steglich, *Physica B* **329-333**, 589 (2003).
- [87] P. Gegenwart, J. Custers, C. Geibel, K. Neumaier, T. Tayama, K. Tenya, O. Trovarelli und F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 056402 (2002).
- [88] O. Stockert, M. M. Koza, J. Ferstl, A. P. Murani, C. Geibel und F. Steglich, *Physica B* **378-380**, 157 (2006).
- [89] J. Custers, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaier, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, C. Pépin und P. Coleman, *Nature* **424**, 524 (2003).
- [90] P. Gegenwart, Y. Tokiwa, T. Westerkamp, F. Weickert, J. Custers, J. Ferstl, C. Krellner, C. Geibel, P. Kersch, K.-H. Müller und F. Steglich, *New J. of Phys.* **8**, 171 (2006).
- [91] J. G. Sereni, C. Geibel, M. G-Berisso, P. Hellmann, O. Trovarelli und F. Steglich, *Physica B* **230-232**, 580 (1997).
- [92] Y. Tokiwa, P. Gegenwart, T. Radu, J. Ferstl, G. Sparn, C. Geibel und F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 226402 (2005).
- [93] J. Sichelschmidt, V. A. Ivanshin, J. Ferstl, C. Geibel und F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 156401 (2003).

- [94] C. Krellner, T. Förster, H. Jeevan, C. Geibel und J. Sichelschmidt, Phys. Rev. Lett. **100**, 066401 (2008).
- [95] P. Gegenwart, J. Custers, Y. Tokiwa, C. Geibel und F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **94**, 076402 (2005).
- [96] K. Ishida, K. Okamoto, Y. Kawasaki, Y. Kitaoka, O. Trovarelli, C. Geibel und F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **89**, 107202 (2002).
- [97] S. Mederle, R. Borth, C. Geibel, F. M. Grosche, G. Sparn, O. Trovarelli und F. Steglich, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 10731 (2002).
- [98] J. Ferstl, C. Geibel, F. Weickert, P. Gegenwart, T. Radu, T. Lühmann und F. Steglich, Physica B **359-361**, 26 (2005).
- [99] F. Weickert, P. Gegenwart, J. Ferstl, C. Geibel und F. Steglich, Physica B **378-380**, 72 (2006).
- [100] M. Nicklas, J. Ferstl, C. Geibel und F. Steglich, Physica B **378-380**, 159 (2006).
- [101] O. Travarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn und F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **85**, 626 (2000).
- [102] C. Krellner, Dissertation, Technische Universität Dresden, in Vorbereitung.
- [103] A. Rosch, Phys. Rev. B **62**, 4945 (2000).
- [104] A. Rosch, Phys. Rev. Lett. **82**, 4280 (1999).
- [105] S. R. Julian, C. Pfleiderer, F. M. Grosche, N. D. Mathur, G. J. McMullan, A. J. Diver, I. R. Walker und G. G. Lonzarich, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 9675 (1996).
- [106] A. Rosch, persönliche Mitteilung, 2007.
- [107] B. S. Chandrasekhar und E. Fawcett, Adv. Phys. **20**, 775 (1971).
- [108] N. Tsujii, H. Mitamura, T. Goto, K. Yoshimura, K. Kosuge, T. Terashima, T. Takamasu, H. Kitazawa, S. Kato und G. Kido, Physica B **294-295**, 284 (2001).
- [109] A. Abragam und B. Bleaney, *Electron paramagnetic resonance of transition ions*, Dover Publications, Inc., New York, 1986.
- [110] J. Wykhoff, persönliche Mitteilung, 2008.
- [111] G. Knebel, R. Boursier, E. Hassinger, G. Lapertot, P. G. Niklowitz, A. Pourret, B. Salce, J. P. Sanchez, I. Sheikin, P. Bonville, H. Harima und J. Flouquet, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 114709 (2006).

- [112] P. M. C. Rourke, A. McCollam, G. Lapertot, G. Knebel, J. Flouquet und S. R. Julian, arXiv:0807.3970 (2008).
- [113] G. Zwicknagl, *Vortrag beim Abschluss-Kolloquium des SFB 463 in Bad Schandau*, persönliche Mitteilung, 2008.
- [114] G. Zwicknagl und U. Pulst, *Physica B* **186-188**, 895 (1993).
- [115] P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Abrahams und Q. Si, *Science* **315**, 969 (2007).
- [116] P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Abrahams und Q. Si, *Science* **315**, 969 (2007), Supporting Online Material.
- [117] Z. Hossain, C. Geibel, F. Weickert, T. Radu, Y. Tokiwa, H. Jeevan, P. Gegenwart und F. Steglich, *Phys. Rev. B* **72**, 094411 (2005).
- [118] J. A. Hodges, *Europhys. Lett.* **4**, 749 (1987).
- [119] M. Macovei, M. Nicklas, C. Krellner, C. Geibel und F. Steglich, *Effect of pressure and Ir substitution in YbRh₂Si₂*, eingereicht bei *J. Phys.: Condens. Matter*, 2008.
- [120] R. KÜchler, *Thermische Ausdehnung und divergierendes Grüneisenverhältnis in Schwere-Fermionen-Systemen*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2005.
- [121] J. Ferstl, *New Yb-based systems: From an intermediate-valent to a magnetically ordered state*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 2007.
- [122] M. Garst und A. Rosch, *Phys. Rev.* **72**, 205129 (2005).
- [123] Y. Tokiwa, P. Gegenwart, F. Weickert, R. KÜchler, J. Custers, J. Ferstl, C. Geibel und F. Steglich, *J. Magn. Mag. Mat.* **272-276**, e87 (2004).
- [124] J. Plessel, *Hochdruckuntersuchungen an Yb-Kondo-Gitter-Systemen in der Nähe einer magnetischen Instabilität*, Dissertation, Universität Köln, 2002.
- [125] T. Moriya und A. Kawabata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **34**, 639 (1973).
- [126] E. Schuberth, M. Tippmann, M. Kath, C. Krellner, C. Geibel, T. Westerkamp, C. Klingner, und F. Steglich, *Magnetization Measurements on YbRh₂Si₂ at Very Low Temperatures*, eingereicht bei *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2008.
- [127] S. Friedemann, Dissertation, Technische Universität Dresden, in Vorbereitung.

- [128] A. J. Millis, A. J. Schofield, G. G. Lonzarich und S. A. Grigera, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 217204 (2002).
- [129] S.-I. Ikeda, Y. Maeno, S. Nakatsuji, M. Kosaka und Y. Uwatoko, *Phys. Rev. B* **62**, R6089 (2000).
- [130] M. Brando, unveröffentlichte Ergebnisse, 2008.
- [131] S. Friedemann, N. Oeschler, S. Wirth, C. Krellner, C. Geibel, F. Steglich, S. Ma-Quilon, Z. Fisk, S. Paschen und G. Zwicknagl, [arXiv:0803.4428](https://arxiv.org/abs/0803.4428) (2008).
- [132] S. R. Julian, F. V. Carter, F. M. Grosche, R. K. W. Haselwimmer, S. J. Lister, N. D. Mathur, G. J. McMullan, C. Pfleiderer, S. S. Saxena, I. R. Walker, N. J. W. Wilson und G. G. Lonzarich, *J. Mag. Mag. Mat.* **177-181**, 265 (1998).
- [133] C. Pfleiderer, G. J. McMullan, S. R. Julian und G. G. Lonzarich, *Phys. Rev. B* **55**, 8330 (1997).
- [134] M. Uhlarz, C. Pfleiderer und S. M. Hayden, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 256404 (2004).
- [135] T. R. Kirkpatrick und D. Belitz, *Phys. Rev. B* **67**, 024419 (2003).
- [136] S. S. Saxena, P. Agarwal, K. Ahilan, F. M. Grosche, R. K. W. Haselwimmer, M. J. Steiner, E. Pugh, I. R. Walker, S. R. Julian, P. Monthoux, G. G. Lonzarich, A. Huxley, I. Sheikin, D. Braithwaite und J. Flouquet, *Nature* **406**, 587 (2000).
- [137] D. A. Sokolov, M. C. Aronson, W. Gannon und Z. Fisk, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 116404 (2006).
- [138] N. T. Huy, A. Gasparini, J. C. P. Klaasse, A. de Visser, S. Sakarya und N. H. van Dijk, *Phys. Rev. B* **75**, 212405 (2007).
- [139] S. Süllo, M. C. Aronson, B. D. Rainford und P. Haen, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2963 (1999).
- [140] T. Burghardt, H. Neemann, E. Bauer und A. Eichler, *J. Phys.: Condens. Matter* **17**, S871 (2005).
- [141] J. Larrea J., M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, E. M. Baggio-Saitovitch, T. Burghardt, A. Eichler und M. A. Continentino, *Phys. Rev. B* **72**, 035129 (2005).
- [142] N. Marcano, J. C. Gómez Sal, J. I. Espeso, J. M. D. Teresa, P. A. Algarabel, C. Paulsen und J. R. Iglesias, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 166406 (2007).
- [143] J. Kappler, M. Besnus, A. Herr, A. Meyer und J. Sereni, *Physica B* **171**, 346 (1991).

- [144] J. G. Sereni, T. Westerkamp, R. KÜchler, N. Caroca-Canales, P. Gegenwart und C. Geibel, *Phys. Rev. B* **75**, 024432 (2007).
- [145] J. G. Sereni, E. Beaurepaire und J. P. Kappler, *Phys. Rev. B* **48**, 3747 (1993).
- [146] J. G. Sereni, *Physica B* **215**, 273 (1995).
- [147] H. R. Krishna-murthy, K. G. Wilson und J. W. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1101 (1975).
- [148] A. P. Pikul, N. Caroca-Canales, M. Deppe, P. Gegenwart, J. G. Sereni, C. Geibel und F. Steglich, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, L535 (2006).
- [149] L. Zhu, M. Garst, A. Rosch und Q. Si, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 066404 (2003).
- [150] T. Westerkamp, M. Deppe, R. KÜchler, M. Brando, C. Geibel, P. Gegenwart, A. P. Pikul und F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* , eingereicht (2008).
- [151] M. Deppe, P. Pedrazzini, N. Caroca-Canales, C. Geibel und J. Sereni, *Physica B* **378-380**, 96 (2006).
- [152] M. Deppe, persönliche Mitteilung, 2008.
- [153] J. C. LeGuillou und J. Zinn-Justin, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 95 (1977).
- [154] C. C. Koch, D. M. Kroeger, J. O. Scarbrough und B. C. Giessen, *Phys. Rev. B* **22**, 5213 (1980).
- [155] D. T. Adroja, A. D. Hillier, J.-G. Park, W. Kockelmann, K. A. McEwen, B. D. Rainford, K.-H. Jang, C. Geibel und T. Takabatake, *Phys. Rev. B* **78**, 014412 (2008).
- [156] S. R. Julian, A. P. Mackenzie, G. G. Lonzarich, C. Bergemann, R. K. W. Haselwimmer, Y. Maeno, S. NishiZaki, A. W. Tyler, S. Ikeda und T. Fujita, *Physica B* **259-261**, 928 (1999).
- [157] N. Marcano, J. I. Espeso, J. C. Gómez Sal, J. Rodríguez Fernández, J. Herrero-Albillos und F. Bartolomé, *Phys. Rev. B* **71**, 134401 (2005).
- [158] T. Vojta, *J. Phys. A: Math. Gen.* **39**, R143 (2006).

LITERATURVERZEICHNIS

Publikationsliste

- T. Westerkamp, P. Gegenwart, C. Krellner, C. Geibel, F. Steglich
Low-temperature magnetic susceptibility of $\text{Yb}(\text{Rh}_{1-x}\text{M}_x)_2\text{Si}_2$ ($M=\text{Ir}, \text{Co}$) single crystals
Physica B **403**, 1236 (2008)
- P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, M. Brando, Y. Tokiwa, C. Geibel, F. Steglich
Unconventional quantum criticality in YbRh_2Si_2
Physica B **403**, 1184 (2008)
- U. Köhler, A. P. Pikul, N. Oeschler, T. Westerkamp, A. M. Strydom, F. Steglich
Low-temperature study of the strongly correlated compound $\text{Ce}_3\text{Rh}_4\text{Sn}_{13}$
Journal of Physics: Cond. Matter **19**, 386207 (2007)
- P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Abrahams, Q. Si
Multiple Energy Scales at a Quantum Critical Point
Science **315**, 969 (2007)
- J. G. Sereni, T. Westerkamp, R. KÜchler, N. Caroca-Canales, P. Gegenwart, C. Geibel
Ferromagnetic quantum criticality in the alloy $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$
Phys. Rev. B **75**, 024432 (2007)

- P. Gegenwart, Y. Tokiwa, T. Westerkamp, F. Weickert, J. Custers, J. Ferstl, C. Krellner, C. Geibel, P. Kersch, K.H. Müller, F. Steglich
High-field phase diagram of the heavy-fermion metal YbRh_2Si_2
New Journal of Physics **8**, 171 (2006)

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 Arbeit wurde am Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden unter der wissenschaftlichen Betreuung von Herrn Prof. Dr. Frank Steglich und Herrn Prof. Dr. Philipp Gegenwart angefertigt.

Ich erkenne die Promotionsordnung der Technischen Universität Dresden an.

Dresden, den 14.10.2008

Danksagung

Ohne die Hilfe und Unterstützung zahlreicher Personen wäre diese Arbeit in der vorliegenden Form nicht möglich gewesen. So möchte ich mich an dieser Stelle bedanken.

Zunächst gilt mein herzlicher Dank Herrn Prof. Dr. Frank Steglich, der mir die Anfertigung dieser Doktorarbeit am Institut für Chemische Physik fester Stoffe ermöglicht hat und mich dabei stets unterstützt hat.

Mein besonderer Dank geht an meinen Betreuer Prof. Dr. Philipp Gegenwart. Er war zu Beginn meiner Arbeit Leiter der Kompetenzgruppe Tiefe Temperaturen, der ich angehöre. Auf seine Unterstützung konnte ich, auch nach seinem Ruf an die Universität Göttingen, immer zählen. Er stand mir stets mit guten Einfällen und Anregungen zur Seite und war immer in der Lage mich zu motivieren. Ich habe sehr viel von ihm gelernt. Und schließlich hat mir seine Schnelligkeit bei der kritischen Durchsicht des Manuskripts ermöglicht, die Arbeit vor der Geburt meiner Tochter einzureichen.

Danken möchte ich auch Herrn Prof. Dr. Joachim Wosnitza für die freundliche Übernahme eines der Gutachten.

Zu Dank verpflichtet bin ich auch meiner Vorgängerin Frau Dr. Franziska Weichert für die hervorragende Einarbeitung an meinem Messaufbau, dem Kelvinox 400. Ohne sie hätte mir das Gewirr aus Kabeln, Schläuchen, Ventilen und Messgeräten sehr viel mehr Kopfzerbrechen bereitet.

Weiterhin geht mein Dank an die Gruppe Materialentwicklung von Herrn Dr. Christoph Geibel, dem ich zahlreiche lehrreiche Diskussionen verdanke. Insbesondere geht mein Dank an Frau Nubia Caroca-Canales, Herrn Dr. Micha Deppe und Herrn Cornelius Krellner, die mir hochwertige Proben zur Verfügung gestellt haben.

Für viele interessante fachliche Diskussionen, aber auch so manche Erheiterung möchte ich mich bei meiner Arbeitsgruppe bedanken. Hier seien der jetzige Leiter Herr Dr. Manuel Brando, meine Bürokollegen Herr Jan Guido Donath und Herr Dr. Robert Küchler, sowie die Herren Dr. Yoshifumi Tokiwa, Dr. Adam Pikul, Luis Pedrero, Stefan Lausberg und Alexander Steppke genannt. Auch Herrn Sven Friedemann möchte ich an dieser Stelle für zahlreiche fachliche Diskussionen danken.

Herrn Dr. Thomas Lühmann und Herrn Robert Borth danke ich für die tatkräftige Unterstützung bei technischen Problemen.

Frau Dr. Teodora Radu, Herrn Dr. Gabriel Dionicio und Herrn Dr. Ivica Zerec danke ich neben fachlichen Diskussionen für die abwechslungsreiche Freizeitgestaltung

während meiner ersten Zeit in Dresden.

Mein Dank geht auch an unsere wissenschaftliche Hilfskraft Herrn Christoph Klingner für interessante Gespräche und auch für das Babysitting während meines Probevortrages der Verteidigung.

Frau Ulrike Ließ danke ich für die Bearbeitung feinmechanischer Bauteile und Herrn Torsten Breitenborn, stellvertretend für die Elektronikwerkstatt, für die Unterstützung bei elektronischen Schwierigkeiten, die mich insbesondere bei Messung des de Haas-van Alphen-Effektes geplagt haben. Herrn Jens Schreiber möchte ich für die stets freundliche Bereitstellung flüssigen Heliums danken, aber auch für seinen Reisetipp, der mich ins slowakische Paradies geführt hat.

Für die Zusammenarbeit über das Institut hinaus möchte ich mich ganz herzlich bedanken bei Herrn Prof. Dr. Julian Sereni vom Centro Atómico Bariloche in Argentinien, der das Projekt $\text{CePd}_{1-x}\text{Rh}_x$ stark vorangetrieben hat, bei Herrn Prof. Dr. Thomas Vojta von der Missouri University of Science and Technology in den USA, der viel zu meinem Verständnis von Griffiths-Phasen beigetragen hat, bei Herrn Prof. Dr. Qimiao Si von der Rice University in den USA für zahlreiche Diskussionen über quantenkritisches Verhalten in YbRh_2Si_2 , bei Herrn Prof. Dr. Achim Rosch von der Universität Köln für seine Erklärungen zum Verhalten des Widerstandes im quantenkritischen Bereich von YbRh_2Si_2 , sowie bei Frau Prof. Dr. Gertrud Zwicknagl von der Technischen Universität Braunschweig, die mir die von ihr berechneten Fermi-Flächen von YbRh_2Si_2 zur Verfügung gestellt hat und den dHvA-Querschnitt dazu berechnet hat.

Für die Korrekturen des Manuskripts danke ich herzlich Frau Anja Herold und meiner Schwester Birgit Nolte.

Ein besonderes Dankeschön geht an meine Familie, an meine Schwestern, auf die ich mich immer verlassen konnte, an meinen Freund Dr. Matthias Neef, der mich in jeder Hinsicht unterstützt hat, sei es durch Vorantreiben als die Zeit drängte, durch Hilfe bei der Durchsicht des Manuskripts, durch die Entlastung während der Zeit der Vorbereitung auf die Verteidigung oder durch zahllose Aufmunterungen. Besonders dankbar bin ich schließlich, dass meine Tochter Franka zunächst in meinem Bauch und anschließend stets in meiner Nähe, die Endphase dieser Arbeit anstandslos mitgemacht hat.