

**Supraleitung, Magnetismus und Nicht-Fermi-Flüssigkeits-  
Verhalten in Schwere-Fermionen-Systemen; Untersuchungen zu  
Magnetotransport und magnetischen Eigenschaften**

Vom Fachbereich Physik  
der Technischen Universität Darmstadt

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

genehmigte  
**D i s s e r t a t i o n**

angefertigt von  
**Dipl.-Phys. Peter Hinze**  
aus Frankfurt am Main

Referent: Prof. Dr. R. Feile  
Korreferent: Prof. Dr. J. Kübler

Tag der Einreichung: 16.10.2001  
Tag der Prüfung: 14.1.2002

Darmstadt 2002

D 17

## Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung.....	1
2 Experimentelle Methoden.....	5
2.1 Messapparatur.....	6
2.2 Elektrischer Widerstand.....	7
2.3 Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität.....	9
2.4 DC-Magnetisierung.....	11
3 Grundlagen.....	19
3.1 Schwere-Fermionen-Systeme.....	20
3.1.1 Einzelionen-Kondo-Modell.....	20
3.1.2 Kondo-Gitter.....	21
3.1.3 Experimentelles Verhalten.....	23
3.2 Fermi-Flüssigkeits-Verhalten.....	25
3.3 Nicht-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten.....	27
3.3.1 „Nearly antiferromagnetic Fermi liquid“.....	29
3.3.2 Lokaler quantenkritischer Punkt.....	33
3.3.3 Griffith-Phase.....	34
4 CeNi <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> .....	35
4.1 Einleitung.....	37
4.2 Proben.....	39
4.3 Messergebnisse.....	45
4.3.1 Beginnende Supraleitung.....	46
4.3.2 „A-Phasen“-Anomalie.....	51
4.3.3 Hochfeld „B-Phasen“-Anomalie.....	54
4.3.4 Isothermer Magnetwiderstand.....	59
4.3.5 Untersuchungen am Einkristall Ce <sub>0.98</sub> Ni <sub>2.02</sub> Ge <sub>1.98</sub> .....	62
4.3.6 Nicht-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten.....	66
4.4 Zusammenfassung.....	74

5	$\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.9}\text{Ge}_{0.1})_2$ .....	77
5.1	Einleitung.....	78
5.2	Messungen.....	83
5.2.1	Magnetische Anomalien.....	85
5.2.2	Supraleitung.....	90
5.2.3	Isothermer Magnetwiderstand.....	93
5.3	Diskussion.....	94
6	$\text{U}_{1-x}\text{Th}_x\text{Be}_{13}$ .....	97
6.1	Einleitung.....	97
6.2	Messungen.....	101
6.2.1	Wechselfeldsuszeptibilität.....	102
6.2.2	DC-Magnetisierung.....	107
6.2.3	$B$ - $T$ -Phasendiagramme.....	109
6.2.4	Einkristall $x = 0.0275$ .....	110
6.2.5	Hystereseeffekte für $B > 0$ .....	112
6.3	Zusammenfassung.....	115
7	Schwere-Fermionen Systeme auf Ytterbium-Basis.....	117
7.1	$\text{Yb}_2\text{Ni}_2\text{Al}$ .....	119
7.2	$\text{YbCo}_2\text{Ge}_2$ .....	121
7.3	$\text{YbRh}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ .....	123
7.3.1	Undotiertes System ( $x = 0$ ).....	124
7.3.2	Germanium-dotiertes System ( $x = 0.05$ ).....	126
7.4	Diskussion.....	131
8	Zusammenfassung.....	133
	Literaturverzeichnis.....	139

# 1 Einleitung

Diese Arbeit befasst sich mit dem Wechselspiel von magnetischer Ordnung und Supraleitung, sowie der Beobachtung von sogenanntem Nicht-Fermi-Flüssigkeits (NFF)-Verhalten in einer speziellen Klasse intermetallischer Verbindungen, den Schwere-Fermionen (SF)-Systemen. Eine grundlegende Eigenschaft dieser Verbindungen, die alle Elemente der Seltenen Erden oder der Aktiniden enthalten, ist der immens hohe Beitrag der elektronischen spezifischen Wärme, der um ein bis zwei Größenordnungen gegenüber einfachen Metallen erhöht ist. Da auch die Pauli-Suszeptibilität von SF-Systemen um einen ähnlich großen Faktor erhöht ist, kann man diesen Zustand nach Landau's Theorie der Fermi-Flüssigkeiten als ein System von fast wechselwirkungsfreien Quasiteilchen mit einer sehr hohen effektiven Masse  $m^*$  beschreiben. Dies führt auch auf die Bezeichnung „Schwere-Fermionen-Systeme“.

Das Phänomen der Supraleitung wurde 1911 von Heike Kammerlingh Onnes entdeckt [Onnes11], nachdem es ihm 1908 gelungen war, Helium als letztes der Edelgase zu verflüssigen [Onnes08] und damit einen neuen Temperaturbereich in der Nähe des absoluten Nullpunktes für eine experimentelle Nutzung zugänglich zu machen. Welche Bedeutung die Entdeckung von Onnes für die Entwicklung der Physik hatte zeigt die Tatsache, dass er im Jahre 1913 den Nobelpreis für Arbeiten zur Tieftemperaturphysik verliehen bekam. Interessanterweise führte Onnes die Untersuchungen an Quecksilber, die schließlich zur Entdeckung der Supraleitung führten, zur experimentellen Bestätigung eines völlig anderen Sachverhaltes durch. Erst 46 Jahre nach Entdeckung der Supraleitung konnte mit der BCS-Theorie, benannt nach ihren Begründern Bardeen, Cooper und Schrieffer, eine erste theoretische Beschreibung für dieses Phänomen vorgestellt werden [Bardeen57]. Obwohl diese Theorie gute Erfolge bei der Beschreibung klassischer Supraleiter aufweisen kann, sind mit der Schwere-Fermionen-Supraleitung im Jahre 1979 durch Steglich [Steglich79] und der Hochtemperatursupraleitung im Jahre 1986 durch Bednorz und Müller [Bednorz86] Phänomene entdeckt worden, deren umfassende theoretische Beschreibung noch lange nicht abgeschlossen ist.

Gerade die Entdeckung von Supraleitung an SF-Systemen stellte eine Sensation dar, führen doch bereits geringe Mengen an magnetischen Verunreinigungen in gewöhnlichen Supraleitern zu einer starken Unterdrückung der supraleitenden Übergangstemperatur bis hin zur vollständigen Zerstörung der Supraleitung. Zwar gibt es mit den Rhodiumboriden ( $\text{RRh}_4\text{B}_4$ ) und den Chevrel-Phasen ( $\text{PbMo}_6\text{S}_8$ ) [Fischer87] auch andere Systeme, welche Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus zeigen, allerdings werden die Cooperpaare in diesen Systemen von Elektronen gebildet, deren Bänder kaum mit den magnetischen Wellenfunktionen überlappen. In SF-Supraleitern sind dagegen die schweren Quasiteilchen sowohl für das Auftreten lokaler magnetischer Momente als auch für die Supraleitung verantwortlich, wie sich aus der relativen Sprunghöhe der spezifischen Wärme ergibt. Das Tieftemperaturverhalten von SF-Systemen lässt sich häufig nach dem von Landau vorgeschlagenen Fermi-Flüssigkeits (FF)-Modell beschreiben [Landau57]. In jüngster Zeit gelangen jedoch immer mehr Systeme in den

Blickpunkt, die sich nicht mit dieser Theorie beschreiben lassen. Dementsprechend wird das Verhalten dieser Systeme als „Nicht-Landau-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten“ oder kurz „Nicht-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten“ bezeichnet. Eine häufig diskutierte Erklärung hierfür ist die Nähe des untersuchten Systems zu einer „magnetischen Instabilität“ bzw. einem „Quantenkritischen Punkt“ (QKP). Der Begriff QKP bezeichnet den Punkt im magnetischen Phasendiagramm, an dem die magnetische Ordnungstemperatur  $T_M$  verschwindet ( $T_M \rightarrow 0$ ).

Die vorliegende Arbeit enthält in Kapitel 2 eine Beschreibung der grundlegenden experimentellen Techniken und Messmethoden, gefolgt von einer Abhandlung der theoretischen Grundlagen (Kapitel 3). Ausgehend vom Doniach'schen Bild [Doniach77], der Konkurrenz von Kondo- [Kondo64] und RKKY-Wechselwirkung [Ashcroft87], werden wesentliche Eigenschaften von SF-Systemen vorgestellt. Anschließend folgt die Vorstellung einiger theoretischer Modelle, welche sich mit dem Auftreten von NFF-Verhalten beschäftigen. Die übrigen Kapitel befassen sich dann mit der Beschreibung und Diskussion der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen.

In Kapitel 4 wird zunächst das SF-System  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  behandelt.  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  zeigt ausgeprägtes NFF-Verhalten unter Atmosphärendruck und ist das mit Abstand reinste System unter den Nicht-Fermi-Flüssigkeiten. So werden in dieser Arbeit Proben mit einem Restwiderstand von  $0.1 \mu\Omega\text{cm}$  diskutiert. Für kein anderes ternäres SFS konnten bisher derart saubere Proben hergestellt werden. Dennoch wurde für  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  eine relativ starke Probenabhängigkeit im Tieftemperaturverhalten beobachtet [Steglich96, Grosche98, Gegenwart98], insbesondere wurde an einigen Proben Supraleitung im elektrischen Widerstand beobachtet. Um zu untersuchen, ob dies eine intrinsische Eigenschaft von  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  ist, wurde eine systematische Untersuchung an leicht von der exakten Stöchiometrie abweichenden Polykristallen durchgeführt, deren Ergebnisse in dieser Arbeit vorgestellt werden.

Obwohl in  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  die SF-Supraleitung bereits vor 22 Jahren entdeckt wurde [Steglich79], hat dieses System nichts von seiner Faszination verloren und ist noch immer Gegenstand aktueller Forschung. In Kapitel 5 der vorliegenden Arbeit werden Untersuchungen an  $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.9}\text{Ge}_{0.1})_2$ -Einkristallen vorgestellt. Die Dotierung von isoelektrischen Germanium-Atomen am Silizium-Platz führt zu einer Vergrößerung des Einheitszellenvolumens und damit zu einer Reduktion der Hybridisierungsstärke  $g$  zwischen 4f- und Valenzelektronen. Dies führt zu einer Stabilisierung der schon für  $x = 0$  beobachteten Spin-Dichtewellen-artigen, sogenannten „A“-Phase, wobei  $T_A$  deutlich ansteigt. Die Untersuchungen an  $\text{CeCu}_2(\text{Si}_{0.9}\text{Ge}_{0.1})_2$ -Einkristallen sollen Aufschluss über die Entwicklung des Wechselspiels zwischen Supraleitung und magnetischer „A“-Phase als Funktion der Hybridisierungsstärke  $g$  geben.

Eine charakteristische Eigenschaft der Dotierungsreihe  $\text{U}_{1-x}\text{Th}_x\text{Be}_{13}$  ist der nicht monotone Verlauf von  $T_c(x)$  verbunden mit dem Auftreten eines zweiten Phasenüberganges  $T_{c2}$  innerhalb der supraleitenden Phase in dem Dotierungsbereich  $1.9 \% \leq x \leq 4.5 \%$  [Ott85]. Die in Kapi-

tel 6 vorgestellten Untersuchungen der Wechselfeldsuszeptibilität und des Meissner-Effektes sollen Aufschluss über die Entwicklung der Supraleitung in diesem System geben. Ein besonderes Interesse liegt dabei auf dem Konzentrationsbereich  $x > x_{c2}$ , da in thermodynamischen Untersuchungen die beobachtete Anomalie für  $x > 0.3$  stark abnimmt und für  $x \rightarrow x_{c2}$  schließlich nicht mehr aufgelöst werden kann, so dass hiermit für  $x > x_{c2}$  keine Aussagen über das Auftreten von Supraleitung mehr möglich sind.

Nachdem eine verbesserte Probenpräparation nun auch die Herstellung hochwertiger SF-Systeme auf Ytterbium-Basis erlaubt, soll in Kapitel 7 auf dieses gegenüber SF-Systemen auf Cer-Basis lange vernachlässigte Gebiet eingegangen werden. Auch hier ist wieder die Untersuchung von NFF-Verhalten eines Systems in unmittelbarer Nähe einer magnetischen Instabilität von Interesse. Auf der Suche nach einem solchen System wurden die Systeme  $\text{Yb}_2\text{Ni}_2\text{Al}$ ,  $\text{YbCo}_2\text{Ge}_2$  und  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  untersucht und schließlich mit  $\text{YbRh}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ge}_{0.05})_2$  ein System mit ausgeprägtem NFF-Verhalten entdeckt. Hier zeigt der elektrische Widerstand über drei Dekaden der Temperatur ( $10 \text{ mK} \leq T \leq 10 \text{ K}$ ) ein lineares Verhalten. Dabei zeigt der niedrige Restwiderstand von  $\rho_0 = 5 \mu\Omega\text{cm}$ , dass dieses NFF-Verhalten nicht durch Unordnung hervorgerufen wird, sondern eindeutig auf die Nähe zum QKP zurückzuführen ist. Weiterhin wird gezeigt, dass ein ähnliches Skalenverhalten wie bei  $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$  [Stockert98, Schröder98, 00] vorliegt. Dies könnte auf einen lokalen QKP hindeuten, bei dem neben langreichweitigen magnetischen Fluktuationen auch lokale Korrelationen eine Rolle spielen [Si00].

## 2 Experimentelle Methoden

Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über die verwendete Messapparatur und die verwendeten Messmethoden gegeben werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden supraleitende und magnetische Eigenschaften von Schwere-Fermionen-Systemen untersucht, die gerade im Temperaturbereich  $T \ll 1$  K interessante Ergebnisse erwarten lassen. Die zur Durchführung dieser Untersuchungen verwendete Apparatur und die zur Temperaturbestimmung notwendige Thermometrie sind in Kapitel 2.1 beschrieben. Die Proben wurden in Magnetfeldern  $B \leq 15.5$  T anhand von Messungen des elektrischen Widerstandes  $\rho$  (Kapitel 2.2) sowie der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität  $\chi_{AC}$  (Kapitel 2.3) untersucht. Hierbei konnten jeweils temperaturabhängige Messungen bei konstantem Magnetfeld und feldabhängige Messungen bei konstanter Temperatur durchgeführt werden. Für die Bestimmung des Meissner-Effektes stand ein SQUID-Sensor zur Verfügung (Kapitel 2.4). Dieser ermöglichte außerdem für  $B \leq 8$  mT die Bestimmung der Wechselfeldsuszeptibilität bei extrem kleinen Wechselfeldern  $50 \mu\text{T} > B_{AC} > 5$  nT. Weitere Details zu den verwendeten experimentellen Methoden finden sich in den Diplomarbeiten [Gegenwart94], [Hinze98] und [Lohmann96] sowie den Dissertationen [Lühmann96] und [Gegenwart98].

## 2.1 Messapparatur

Die Messungen wurden an einem kommerziellen  $^3\text{He}/^4\text{He}$  Mischungskryostaten<sup>1</sup> im Temperaturbereich  $6 \text{ mK} \leq T \leq 6.6 \text{ K}$  durchgeführt. Der Kryostat ist mit einem supraleitenden Magneten ausgestattet, mit dem Magnetfelder  $B \leq 15.5 \text{ T}$  angelegt werden können<sup>2</sup>. Unterhalb der Mischkammer steht eine feldkompensierte Zone zur Verfügung ( $B_{\text{komp.}} \leq 3 \text{ mT}$ ), in der die Widerstandsthermometer untergebracht sind.

Zur Bestimmung der Mischkammertemperatur stehen ein CMN<sup>3</sup>-Thermometer und zwei Widerstandsthermometer zur Verfügung. Im Temperaturbereich  $T < 0.1 \text{ K}$  wurde das schnelle CMN-Thermometer [Gegenwart94] verwendet. Die Temperatur wird hier mit Hilfe einer Spulenordnung über die Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität eines paramagnetischen Salzes (CMN) bestimmt. Die Eichung des CMN-Thermometers wurde regelmäßig anhand supraleitender Fixpunkte überprüft [Hinze98]. Für  $0.03 \text{ K} \leq T \leq 1.2 \text{ K}$  wurde ein kommerziell geeichter  $\text{RuO}_2$ -Chipwiderstand<sup>4</sup>, oberhalb  $T \approx 1 \text{ K}$  ein ebenfalls kommerziell geeichter Germanium-Sensor<sup>5</sup> verwendet.

Die Aufnahme und Steuerung der Messungen erfolgte mit Computerunterstützung. Hierzu wurde ein von P. Gegenwart entwickeltes Computerprogramm benutzt. Dieses erlaubt die vollautomatische Durchführung von temperaturabhängigen Messungen bei konstantem Magnetfeld und isothermen, feldabhängigen Messungen in einer beliebig wählbaren Reihenfolge [Gegenwart94, 98]. Alle Ausgangssignale werden vom Kryostaten, der sich zur Abschirmung gegen Hochfrequenzstrahlung innerhalb eines Faradayschen Käfiges befindet, über Tiefpassfilter<sup>6</sup> zu einem schnellen Digitalvoltmeter<sup>7</sup> geführt, welches vom Computer ausgelesen wird. Die Regelung der Mischkammertemperatur erfolgte über eine Widerstandsmessbrücke<sup>8</sup> (innerhalb des Faradayschen Käfigs) und einen PID-Regler<sup>9</sup> (außerhalb des Faradayschen Käfigs).

---

1 Modell 400 S der Firma Oxford Instruments.

2 Bei Betrieb der Lambda-Stufe bis 17 T.

3 Cer-Magnesium-Nitrat ( $2 \text{ Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3 \text{ Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 24 \text{ H}_2\text{O}$ ).

4 Firma Dale, Bauform 1206.

5 Firma Lake Shore: GR-2001-30 No.23905.

6 Modell 84312-C30-B3 der Firma Siemens.

7 Modell 2001 der Firma Keithley.

8 Modell AVS 46 der Firma RV-Elektroniikka Oy.

9 Modell TS-530 der Firma RV-Elektroniikka Oy.



## 2.2 Elektrischer Widerstand

Die Messung des elektrischen Widerstandes erfolgte nach der 4-Punkt-AC-Methode. Hierbei wird durch die Probe über die zwei äußeren Kontakte ein Wechselstrom  $I_{AC}$  geleitet (in der Regel  $I_{AC} = 0.3 \text{ mA}$ ,  $\nu = 17 \text{ Hz}$ , nur bei tiefsten Temperaturen  $T < \text{ca. } 0.2 \text{ K}$  wurde zur Vermeidung von Aufheizeffekten ein kleinerer Strom  $0.05 \text{ mA} \leq I < 0.3 \text{ mA}$  gewählt). Die an den beiden inneren Kontakten abfallende Spannung  $U_{AC}$  wird dann mit Lock-In (LI)-Technik bestimmt (Abbildung 2.1).

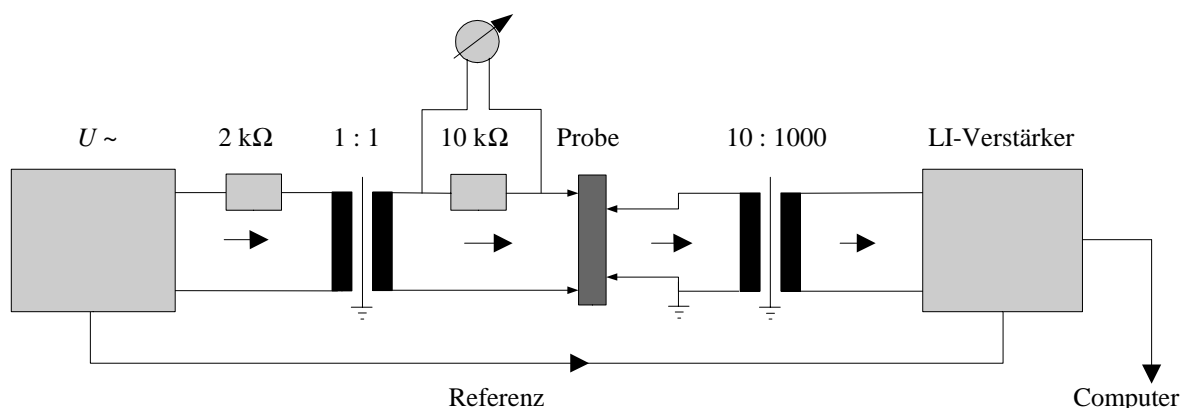


Abbildung 2.1: Schematisches Blockschaltbild für AC-Widerstandsmessungen.

Auf der Primärseite ist der Spannungsgenerator<sup>10</sup> galvanisch vom Stromkreis der Probe über einen 1:1 Ringkerntransformator<sup>11</sup> getrennt. Dieser unterdrückt eventuell vorhandene Gleichstromanteile der Spannungsquelle, die zu unerwünschten Aufheizeffekten führen können. Auf der Sekundärseite wird die an den Kontakten abfallende Spannung über einen rauscharmen Transformator<sup>12</sup> um den Faktor 100 erhöht und anschließend mit einem Lock-In-Verstärker<sup>13</sup> gemessen.

Gerade im Millikelvinbereich kann durch Joule'sche Wärmeentwicklung eine erhebliche Aufheizung der Proben stattfinden. Deshalb ist eine Kontaktierung der Proben mit kleinen Kontaktwiderständen unabdingbar. Zur Kontaktierung der Proben wurden zwei verschiedene Verfahren eingesetzt. Ein Teil der Proben wurde mit  $100 \mu\text{m}$  Kupfer-Drähten kontaktiert, die mit Silberleitkleber<sup>14</sup> befestigt wurden. Dieser zeichnet sich durch kleine Kontaktwiderstände ( $< 1 \Omega$ ), eine hohe mechanische Festigkeit und eine einfache Anwendung aus. Ein Nachteil dieser Methode ist jedoch, dass die zur Aufbringung der einzelnen Kontakte notwendige Fläche ( $\varnothing$  ca. 1 - 2 mm) im Verhältnis zur Probe relativ groß ist. Da die verwendeten Proben in der Regel zwischen 4 mm und 8 mm lang sind, ergibt sich eine durch den geringen Abstand

<sup>10</sup> Oszillator der Firma Hewlett Packard, Typ 3245A, universal source.

<sup>11</sup> Ringkerntransformator der Firma Talema.

<sup>12</sup> Modell 1900 der Firma Princeton Applied Research.

<sup>13</sup> Modell 399 der Firma Ithaco.

<sup>14</sup> Firma Dupond, Nr. 4922.

der Spannungsabgriffe bedingte schlechte Geometrie. Ein weitaus besseres Verfahren ist deshalb die Kontaktierung der Proben mit dem im Folgenden beschriebenen Punktschweißverfahren<sup>15</sup>. Hierbei werden 50 µm Gold-Drähte auf die geerdete Probe gelegt und eine spitze Nadel auf das Drahtende, welches festgeschweißt werden soll, gesetzt. Nun wird ein Strom<sup>16</sup> durch Nadel, Drahtende und Probe geleitet und damit das Drahtende auf die Probe geschweißt. Die Nadel kann anschließend wieder abgenommen werden. Vorteil dieser Methode sind sehr kleine Kontaktflächen und damit eine bessere Geometrie (es lassen sich größere Abstände zwischen den Spannungsabgriffen realisieren, was unmittelbar eine bessere Auflösung zur Folge hat).

Zur Berechnung des spezifischen Widerstandes  $\rho$  aus dem gemessenen Widerstand ist eine Berücksichtigung der Probengeometrie notwendig. Unter der Annahme einer gleichförmigen Stromverteilung gilt

$$\rho = \frac{A}{s} \cdot R \quad ,$$

mit dem Abstand  $s$  zwischen den zwei Kontakten des Spannungsabgriffs, dem Probenquerschnitt  $A$  und dem gemessenen Widerstand  $R$ .

In der Regel ist jedoch noch eine Korrektur von  $\rho$  notwendig, da die vorliegende Stromverteilung nicht gleichförmig ist. So wurden bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen immer alle vier Kontakte auf der Oberseite der Probe angebracht. Für eine quaderförmige Probe mit zur Probenmitte symmetrischer Anordnung der Kontakte und typischen Probenmaßen ( $2 \cdot 2 \cdot 6 \text{ mm}^3$ ) ergibt sich dann:

$$\rho = \frac{A}{s} \cdot R \cdot K$$

Dabei beträgt nach [Lühmann96] der Korrekturfaktor  $K = 0.84$ . Für Proben, die nicht quaderförmig oder zu klein sind, ist die Angabe eines zuverlässigen Absolutwerts von  $\rho$  nicht mehr möglich. Hier bietet sich eine Normierung auf den Raumwiderstandswert  $\rho_{300 \text{ K}}$  an.

<sup>15</sup> Dieses Verfahren konnte erst mit Fertigstellung des MPI Dresden angewendet werden. Deshalb wurden die zu Beginn dieser Arbeit untersuchten Proben noch mit Silberleitkleber kontaktiert.

<sup>16</sup> Wichtig ist hier die Wahl einer geeigneten Stromstärke. Eine zu kleine Stromstärke führt zu einer ungenügenden mechanischen Festigkeit, eine zu hohe Stromstärke zur Zerstörung des Gold-Drahtes.

## 2.3 Magnetische Wechselfeldsuszeptibilität

Zur induktiven Messung der magnetischen Wechselfeld (AC)-Suszeptibilität wird ein Wechselstrom ( $\nu = 117 \text{ Hz}$ ,  $I \approx 0.1 \text{ mA}$ ) durch eine Primärspule geleitet, die ein magnetisches Wechselfeld (Amplitude  $B_{AC} \approx 100 \text{ } \mu\text{T}$ ) erzeugt. Dieses induziert in einem Sekundärspulenpaar mit jeweils  $N_s$  Windungen, welches astatisch um die Primärspule gewickelt ist, zwei Teilspannungen, die sich im Idealfall (perfekte Astasie) vollständig aufheben. Durch eine Probe (Querschnittsfläche  $A$ ), die sich in einer der beiden Sekundärspulen befindet, wird eine zusätzliche Spannung in dieser Spule induziert, die proportional zur Probensuszeptibilität ist. Diese wird mit LI-Technik detektiert (Abbildung 2.2). Die elektronischen Komponenten sind schon bei der AC-Widerstandsmessung (Kapitel 2.2) beschrieben. Der verwendete Probenhalter ist in [Hinze98] vorgestellt. Einige Messungen wurden auch an einem von U. Rauchschwalbe konstruierten Probenhalter mit vier Messplätzen durchgeführt [Rauchschwalbe82], welcher jedoch ein geringeres Auflösungsvermögen aufweist.

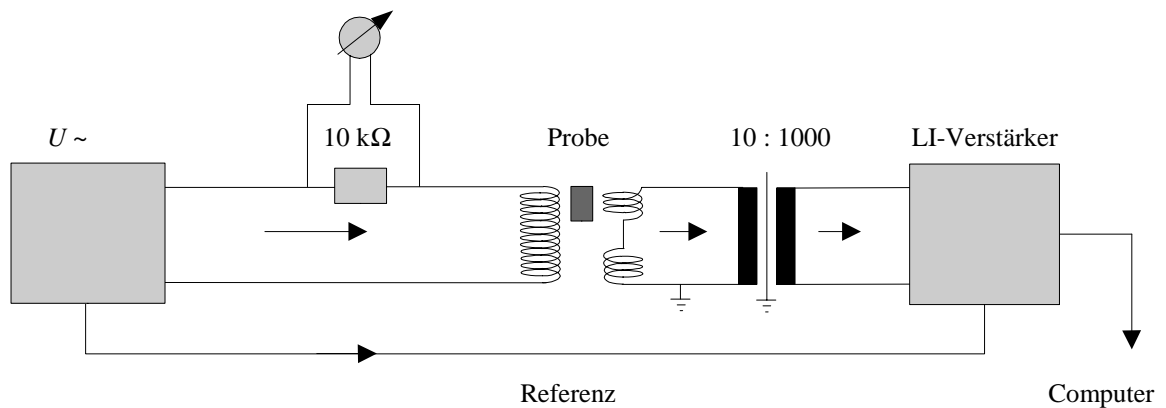


Abbildung 2.2: Schematisches Blockschaltbild für AC-Suszeptibilitätsmessungen.

Die in der Sekundärspule induzierte Spannung ergibt sich zu:

$$U_{ind}(t) = -N_s \cdot \frac{d\phi_s}{dt} = -N_s \cdot A \cdot \mu_0 \cdot \dot{M}(t)$$

Hierbei wird die zeitliche Änderung des magnetischen Flusses  $\frac{d\phi}{dt}$  durch die Sekundärspule betrachtet. Die Magnetisierung  $M(t)$  wird unter Annahme eines periodischen Außenfeldes ( $B(t) = B_{AC} \cdot \cos(2\pi\nu \cdot t)$ ) in eine Fourier-Reihe entwickelt:

$$M(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \left( M'_n \cdot \cos(2\pi\nu n \cdot t) + M''_n \cdot \sin(2\pi\nu n \cdot t) \right)$$

Die Koeffizienten  $M'_n$  und  $M''_n$  sind dabei folgendermaßen definiert:

$$M'_n = 2\nu \int_0^{1/\nu} M(t) \cdot \cos(2\pi\nu n \cdot t) dt \quad \text{und} \quad M''_n = 2\nu \int_0^{1/\nu} M(t) \cdot \sin(2\pi\nu n \cdot t) dt$$

Die magnetische Wechselfeldsuszeptibilität wird mit den Koeffizienten  $M'_1$  und  $M''_1$  ( $n=1$ ) der Entwicklung folgendermaßen definiert:

$$\chi_{AC} = \chi' + i \cdot \chi'' \quad \text{mit} \quad \chi' = \frac{\mu_0 \cdot M'_1}{B_{AC}} \quad \text{und} \quad \chi'' = \frac{\mu_0 \cdot M''_1}{B_{AC}}$$

Damit ergeben sich die vom LI-Verstärker gemessenen Spannungen:

$$U_{ind}^{\Delta\varphi=90^\circ} = \frac{2\pi \cdot \nu}{\sqrt{2}} \cdot N_S \cdot A \cdot B_{AC} \cdot \chi'$$

$$U_{ind}^{\Delta\varphi=180^\circ} = \frac{2\pi \cdot \nu}{\sqrt{2}} \cdot N_S \cdot A \cdot B_{AC} \cdot \chi''$$

Die Induktion im Probenhalter verursacht die Phasenverschiebung  $\Delta\varphi = 90^\circ$  zwischen Mess- und Referenzsignal.

## 2.4 DC-Magnetisierung

Die Messungen der DC-Magnetisierung wurden mit einem selbst gebauten Probenhalter in Kombination mit einem SQUID-Sensor der Firma Oxford Instruments durchgeführt.

Der Probenhalter [Gegenwart94] befindet sich in der feldkompensierten Zone direkt unterhalb der Mischkammer. Er enthält eine kleine Feldspule aus supraleitendem Draht, mit welcher Magnetfelder bis zu 8 mT erzeugt werden können<sup>17</sup>, sowie ein astatisch gewickeltes Aufnehmerspulenpaar aus NbTi-Draht in Kupfer-Matrix mit jeweils drei Windungen. Die Probe befindet sich, thermisch über einen Kupfer-Zopf direkt an die Mischkammer angekoppelt, in einer der beiden Aufnehmerspulen. Von den Aufnehmerspulen registrierte Flussänderungen  $\Delta\phi$  werden über einen Flusstransformator in den SQUID-Sensor eingekoppelt. Zur Abschirmung gegen externe Felder ist dabei der Flusstransformator durch eine Pb-Zn-Kapillare<sup>18</sup> geführt. Der SQUID-Sensor ist direkt auf dem 1K-Topf des Kryostaten montiert [Hinze98]. Die übrige Elektronik des SQUID befindet sich außerhalb des Kryostaten.

### Funktionsprinzip des SQUID

In diesem Abschnitt soll ein kurzer Überblick über einige wesentliche Grundlagen gegeben werden, welche zum prinzipiellen Verständnis eines SQUID notwendig sind. Für eine ausführlichere Beschreibung siehe [Lounasmaa74, Buckel86].

SQUIDs<sup>19</sup> sind eine Klasse von höchst empfindlichen Detektoren für magnetischen Fluss. Die Funktionsweise eines SQUID beruht darauf, dass der magnetische Fluss durch die Öffnung eines geschlossenen supraleitenden Ringes nicht nur konstant ist<sup>20</sup>, sondern außerdem nur bestimmte, diskrete Werte annehmen kann. Dies ergibt sich aus der Forderung nach Eindeutigkeit der Wellenfunktion, die den supraleitenden Zustand beschreibt. Quantisiert ist hierbei die Größe  $\phi_F$ , das sogenannte „Fluxoid“:

$$\phi_F = \phi + \oint \frac{m}{2e^2 \cdot \rho} \cdot \vec{j}_s \cdot \vec{ds} = \frac{n \cdot h}{2e} = n \cdot \phi_0 \quad , \quad (1)$$

wobei hier die Elektronenladung  $e$ , die Elektronenmasse  $m$ , die Cooperpaardichte  $\rho$ ,  $n \in \mathbb{N}$ , die Planck-Konstante  $h$ , die supraleitende Stromdichte  $\vec{j}_s$  und das supraleitende Flussquant  $\phi_0 = 2,07 \text{ nT} \cdot \text{mm}^2$  betrachtet werden. Wählt man einen Integrationsweg  $\vec{ds}$  im Inneren eines ausreichend dicken supraleitenden Ringes<sup>21</sup>, so erhält man die Quantisierung des magnetischen Flusses  $\phi$  in Einheiten von  $\phi_0$ :

$$\phi_F = \phi = n \cdot \phi_0$$

<sup>17</sup>  $B = 0,128 \text{ mT/mA} \cdot I$  [Gegenwart94].

<sup>18</sup> Diese wurde aus handelsüblichem Lötzinn durch Entfernen des innen eingelassenen Flussmittels hergestellt.

<sup>19</sup> Superconducting QUantum Interference Devices.

<sup>20</sup> Die Konstanz selbst ergibt sich allein daraus, dass ein Supraleiter ein perfekter Diamagnet ist.

<sup>21</sup> In Supraleitern fließen Abschirmströme im allgemeinen nur in einer einige  $\mu\text{m}$  dicken Oberflächenschicht, so dass bei Wahl von  $\vec{ds}$  im Inneren des Supraleiters das Linienintegral über  $j_s$  null wird [Buckel86].

Bei dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten SQUID wurde der supraleitende Ring in Dünnschichttechnik erstellt (ohne Abbildung), es ist jedoch auch die Verwendung anderer Geometrien wie z.B. eines supraleitenden Zylinders möglich. Entscheidend ist nur die Existenz einer geschlossenen supraleitenden Verbindung. In diese wird ein Bereich mit schwacher Kopplung, ein sogenanntes „weak link“, eingebaut. Dadurch erhält man einen Josephson-Kontakt, der z.B. durch eine dünne, normalleitende oder isolierende Schicht oder eine sehr schmale supraleitende Verbindung realisiert wird (Abbildung 2.3). Durch das „weak link“ können die Cooperpaare widerstandsfrei hindurchtunneln<sup>22</sup>. Im Vergleich zum Rest des supraleitenden Ringes ist die kritische Stromdichte  $j_c$  und damit auch der kritische Strom  $I_c$  ( $I = \iint \vec{j} d\vec{a}$ ) jedoch erheblich reduziert.

**Abbildung 2.3:**

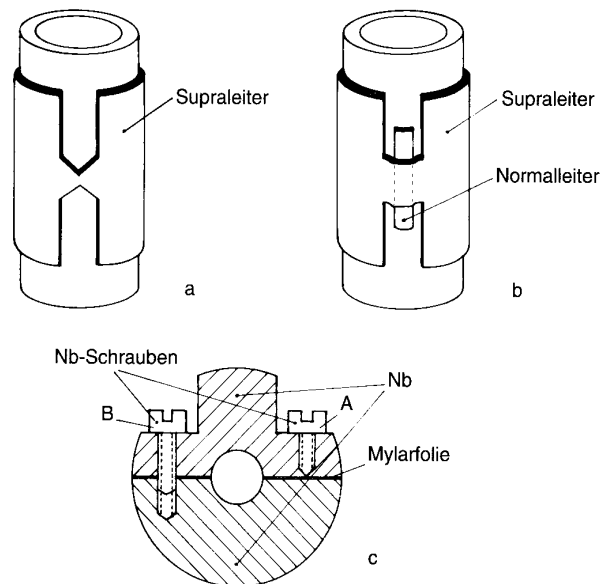
Beispiele für die Realisierung eines s.l. Zylinders mit einem Bereich schwacher Kopplung („weak link“) [Buckel86]:

a) Filmbrücke

b) Doppelschichtkontakt

(beide auf normalleitendem Trägerröhrchen)

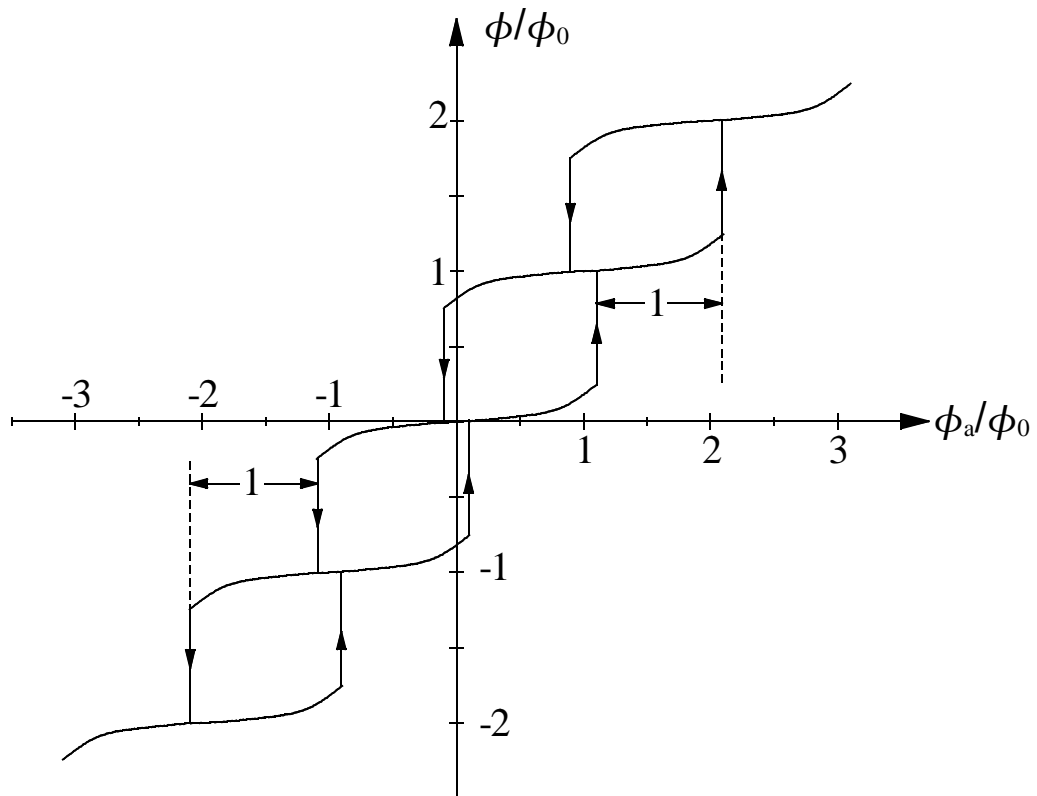
c) Niobzylinder mit Punktkontakt



Das Anlegen eines äußeren Magnetfeldes  $B_a$  an einen supraleitenden Ring mit „weak link“ führt dazu, dass Abschirmströme an der Oberfläche des Ringes zu fließen beginnen, die den vom Ring eingeschlossenen Fluss  $\phi$  konstant halten. Wenn die kritische Stromdichte  $j_c$  des „weak link“ erreicht wird, bricht dort die Supraleitung zusammen und Fluss in Form von einem oder mehreren Flussquanten dringt in den Ring ein. Dieser Vorgang wiederholt sich bei Steigerung des angelegten Magnetfeldes. Prinzipiell gleiches Verhalten tritt beim Reduzieren des äußeren Feldes auf. Wie in Abbildung 2.4 schematisch gezeigt wird, erfolgen die Sprünge von  $\phi(B_a)$  zwar immer in Einheiten eines Flussquanten, allerdings zeigt sich ein deutliches „Ausschmieren“ des Kurvenverlaufes. Ursache hierfür ist die Tatsache, dass nicht der magnetische Fluss  $\phi$ , sondern das Fluxoid  $\phi_F$  quantisiert ist. Während im massiven supraleitenden Ring der Integralteil in (1) durch Wahl eines Integrationsweges im Inneren des Supraleiters, wo  $j = 0$  gilt, wegfällt, ist dies an der Stelle des „weak link“ nicht mehr der Fall. Hier hat die Dicke des Supraleiters nur noch die Größenordnung der London'schen Ein-

<sup>22</sup> Dies ist der sogenannte DC-Josephson-Effekt.

dringtiefte, auch im Inneren des Supraleiters fließt noch ein Strom und es kann somit kein Integrationsweg mit  $j = 0$  mehr gewählt werden. Außerdem hängt der Verlauf von  $\phi(B_a)$  und damit auch das Auftreten der in Abbildung 2.4 gezeigten Hysterese vom Selbstinduktionskoeffizienten des supraleitenden Ringes ab. Für den Betrieb eines SQUID ist der exakte Verlauf von  $\phi(B_a)$  jedoch nicht von Bedeutung. Wichtig ist vielmehr die Tatsache, dass die Flussänderung sich mit der Schrittweite eines Flussquanten wiederholt.

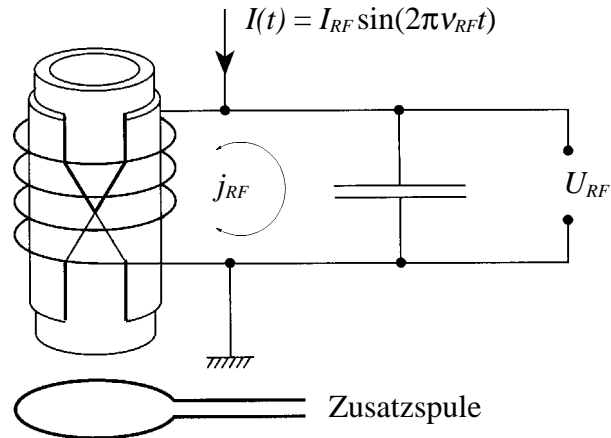


**Abbildung 2.4:** Magnetischer Fluss  $\phi$  durch einen supraleitenden Ring mit „weak link“, aufgetragen über einem externen Magnetfeld  $B_a \sim \phi_a$ . Die vertikalen Linien mit Pfeil markieren diskontinuierliche Sprünge des Fluxoids  $\phi'$  um ein Flussquant  $\phi_0$  bzw. des Flusses  $\phi$  um etwas weniger als ein Flussquant  $\phi_0$ .

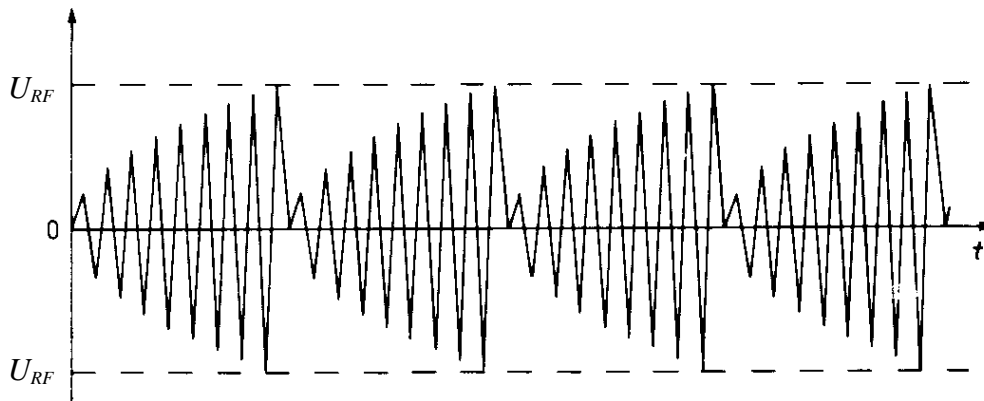
Zur Bestimmung der sprunghaften Flussänderung  $\Delta\phi = n \cdot \phi_0$  durch den supraleitenden Ring ist dieser induktiv an einen Schwingkreis gekoppelt. Dazu befindet sich auf dem Ring die Spule eines RF-Schwingkreises ( $\nu_{RF} \approx 20$  MHz) (Abbildung 2.5). Ein Oszillator, der sich außerhalb des Kryostaten auf Raumtemperatur befindet, treibt den Schwingkreis in seiner Resonanzfrequenz an, wobei die Ankopplung des Schwingkreises an den Oszillator justierbar ist. Der im Schwingkreis oszillierende Strom  $j_{RF}$  führt zu einer Oszillation des Flusses durch den supraleitenden Ring (Abbildung 2.4). Die Amplitude dieser Oszillation steigt an, bis im supraleitenden Ring der Abschirmstrom die kritische Stromdichte erreicht. Nun bricht die Supraleitung im „weak link“ zusammen, ein Flussquant dringt in den Ring ein und ein Großteil der Energie des Schwingkreises wird im „weak link“ dissipiert, so dass die Amplitude des Schwingkreises auf einen sehr kleinen Wert zurückspringt und die Oszillation von neuem

**Abbildung 2.5:**

Resonanzkreis zur Bestimmung der Flussänderung durch einen supraleitenden Ring. Die Zusatzspule wird zur Kompensation kleiner Feldänderungen verwendet. Der zur Kompensation nötige Strom ist proportional zur Feldänderung und liefert das Messsignal [Buckel86].



beginnt (Abbildung 2.6). Da die Energie des Schwingkreises größtenteils dissipiert wird, verlässt ein Flussquant den supraleitenden Ring sofort wieder, so dass in Abbildung 2.4 gerade eine Hystereseschleife durchlaufen wird. Die Ankopplung des Schwingkreises wird so eingestellt, dass die maximale Spannung  $U_{RF}$ , bei der ein Flussquant in den Ring eintritt, erst nach einigen Oszillationen erreicht wird. Die maximale Spannung  $U_{RF}$  wird mit einem Verstärker detektiert.



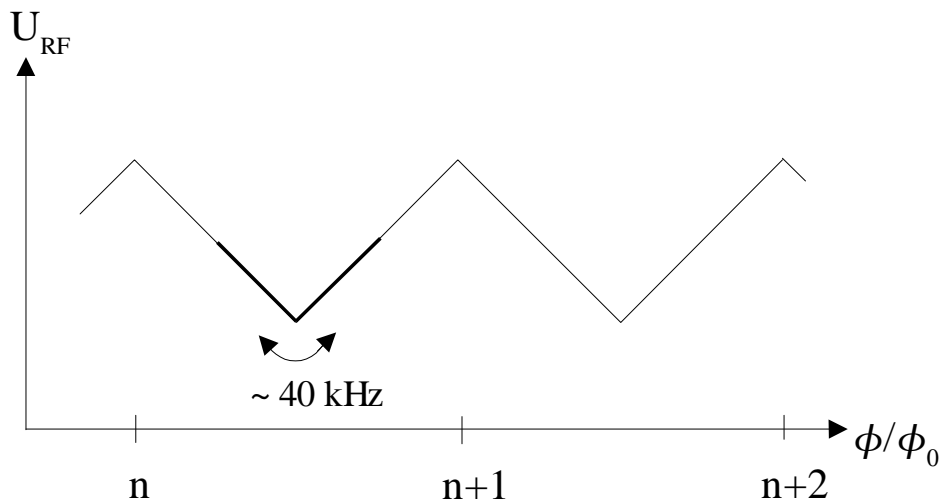
**Abbildung 2.6:** Spannung  $U_{RF}(t)$  am RF-Schwingkreis, aufgetragen über der Zeit. Zur Vereinfachung ist hier die sinusförmige Oszillation als eine dreieckförmige Welle für einen verlustfreien Schwingkreis dargestellt, dessen Spannung nach der Dissipation auf  $U_{RF} = 0$  zurückspringt [Lounasmaa74].

Die Spannung  $U_{RF}$  ist vom Fluss  $\phi$  eines zusätzlich zu  $\phi_{RF}$  vorhandenen, quasi stationären magnetischen Feldes periodisch in  $\phi / \phi_0$  abhängig (Abbildung 2.7). Diese Abhängigkeit ist die Grundlage zur Bestimmung niederfrequenter oder quasistatischer Flussänderungen  $\Delta\phi_P$ , welche durch die Magnetisierungsänderung  $\Delta M_P$  einer Probe hervorgerufen werden.

Dazu wird der RF-Schwingung zusätzlich eine niederfrequente (LF) Modulation ( $\nu_{LF} \approx 40$  kHz) überlagert, so dass auf dem in Abbildung 2.7 dick gezeichneten Bereich der Dreieckskurve niederfrequent hin- und hergefahren wird. Daraus wird mit einem phasensensitiven Verstärker die niederfrequente Oszillation von  $U_{RF}$  bestimmt. Dieses Signal wird zur



Steuerung einer Zusatzspule verwendet, um einen festen Arbeitspunkt beizubehalten und damit den Fluss durch den supraleitenden Ring konstant zu halten. In Abbildung 2.7 ist der Arbeitspunkt ein Minimum der Dreieckskurve. Diese Betriebsart wird als „flux-locked-loop“ bezeichnet. Der Strom durch die Zusatzspule kompensiert alle durch  $\Delta\phi$  verursachten Flussänderungen durch den supraleitenden Ring. Es besteht ein linearer Zusammenhang zwischen diesem Strom und externen Flussänderungen  $\Delta\phi$ .



**Abbildung 2.7:** Die Auftragung  $U_{RF}$  vs  $\phi/\phi_0$  verdeutlicht, dass  $U_{RF}$  exakt periodisch in Einheiten von  $\phi_0$  vom Fluss  $\phi$  eines magnetischen Feldes abhängig ist („triangle pattern“).

Wenn das Rückführungssignal die maximal mögliche Ausgangsspannung der Elektronik übersteigt, stellt sich der Arbeitspunkt nach einem kurzen Auftrennen der Rückführungsschleife an einer anderen Stelle neu ein. Da jede Spitze der Dreieckskurve aus Abbildung 2.7 einen gleichwertigen Arbeitspunkt darstellt, ist so trotz des extrem hohen Auflösungsvermögens der Messanordnung ein fast beliebig großer Aussteuerungsbereich möglich.

In der Regel befindet sich die Probe, von der die durch die Magnetisierungsänderung  $\Delta M_P$  hervorgerufene Flussänderung  $\Delta\phi_P$  bestimmt werden soll, nicht direkt in der Öffnung des supraleitenden Ringes. Stattdessen wird der zu messende Fluss mit Hilfe eines Flusstransformators in den Ring eingekoppelt. Der Flusstransformator besteht aus einer Aufnehmerspule und einer Signalspule. Die Aufnehmerspule ist bei der hier verwendeten Messanordnung unterhalb der Mischkammer angeordnet. In dieser Spule befindet sich die Probe. Die Signalspule ist innerhalb des supraleitenden Rings. Beide Spulen bilden zusammen mit den sorgfältig verdrillten Zuleitungen einen geschlossenen supraleitenden Ring. Für diesen gilt, dass der Gesamtfluss durch Signalspule, Aufnehmerspule und Zuleitungen konstant ist. Eine Änderung der Magnetisierung  $\Delta M_P$  der Probe erzeugt einen Strom im Flusstransformator, der wiederum eine Flussänderung  $\Delta\phi$  in der Signalspule erzeugt, die proportional zu  $\Delta M_P$  ist.

## Verwendete Messverfahren

Mit der verwendeten SQUID-Anordnung wurden zwei verschiedene Messverfahren realisiert. Zum einen wurde das „Meissner-Volumen“, das ist der Volumenanteil einer Probe, in dem Flussverdrängung stattfindet, bestimmt. Außerdem wurden hochempfindliche Messungen der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität durchgeführt (Abbildung 2.8).

- Die vollständige Verdrängung des magnetischen Flusses aus einem Supraleiter, unabhängig von seiner magnetischen Vorgeschichte, wird als „Meissner-Effekt“<sup>23</sup> bezeichnet. Neben der spezifischen Wärme ist die Höhe des Meissner-Effektes die einzige Messgröße, die das Vorliegen von Volumensupraleitung in einer Probe anzeigen kann<sup>24</sup>. Zur Bestimmung der Größe des Meissner-Effektes wird folgendermaßen vorgegangen:

Eine Probe wird im Nullfeld<sup>25</sup> auf eine Temperatur unterhalb  $T_c$  abgekühlt (ZFC  $\hat{=}$  zero-field cooled) und anschließend ein kleines Feld  $H < H_{c1}$  angelegt. Nach der Lenz'schen Regel führt dies zur Induktion von dauerhaften<sup>26</sup> Abschirmströmen auf der Probenoberfläche („shielding“), die das in der Probe herrschende Magnetfeld zu Null kompensieren. Anschließend wird die Probe auf eine Temperatur  $T > T_c$  erwärmt und dabei vom SQUID die Flussänderung  $\Delta\phi_{ZFC}$  gemessen, die allein aus dem Abbau der Abschirmströme resultiert und einem 100 %-igen Eindringen des magnetischen Flusses in die Probe entspricht. Ein erneutes Abkühlen der Probe im beibehaltenen Magnetfeld auf eine Temperatur  $T < T_c$  (FC  $\hat{=}$  field cooled) führt zu einer vom Meissner-Effekt hervorgerufenen Flussverdrängung  $\Delta\phi_{FC}$ . Der Volumenanteil der Probe, in dem Flussverdrängung stattfindet (das „Meissner-Volumen“), ergibt sich aus dem Quotienten  $\Delta\phi_{FC} / \Delta\phi_{ZFC}$ . Für den Idealfall eines vollständigen Meissner-Effektes (100 % Flussverdrängung) sollte man also beim Abkühlen ein entgegengesetzt gleiches Signal wie beim Aufwärmen erhalten ( $\Delta\phi_{FC} = \Delta\phi_{ZFC}$ ). Die Existenz von Pinningzentren, an denen beim Abkühlen in den supraleitenden Zustand

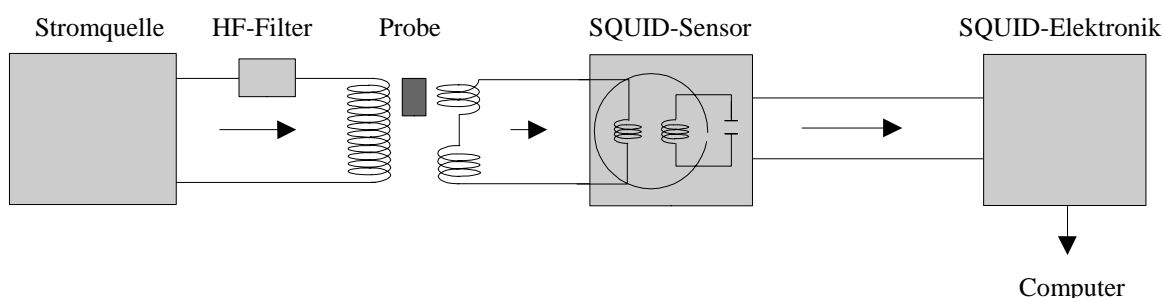


Abbildung 2.8: Schematischer Aufbau für Messungen des Meissner-Effektes.

23 Der „Meissner-Ochsenfeld-Effekt“ oder kurz „Meissner-Effekt“ wurde 1933 von W. Meissner und R. Ochsenfeld entdeckt [Meissner33].

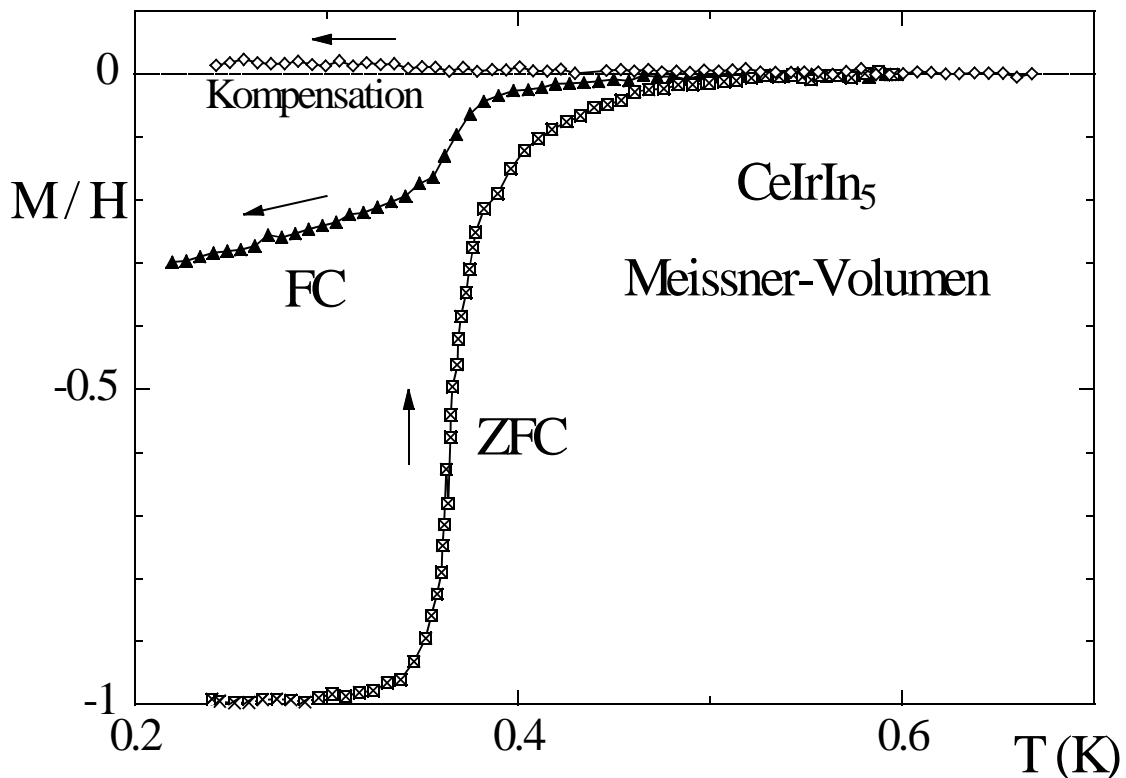
24 Für das Anzeigen von Supraleitung reicht bei Widerstandsmessungen ein supraleitender Pfad, der die Probe kurzschließt, und bei AC-Suszeptibilitätsmessungen ein Netzwerk supraleitender Fäden, welches die Probe abschirmt, aus.

25 Eventuell vorhandene Umgebungsfelder müssen vorher kompensiert werden.

26 Dies ist durch  $\rho = 0$  bedingt. In einer normalleitenden Probe würden die Abschirmströme wieder abklingen.

Flussschläuche in der Probe festgehalten werden, führt häufig dazu, dass ein Meissner-Volumen von nur wenigen Prozent bestimmt wird, obwohl die Probe Volumensupraleitung zeigt [Rauchschwalbe82, 86].

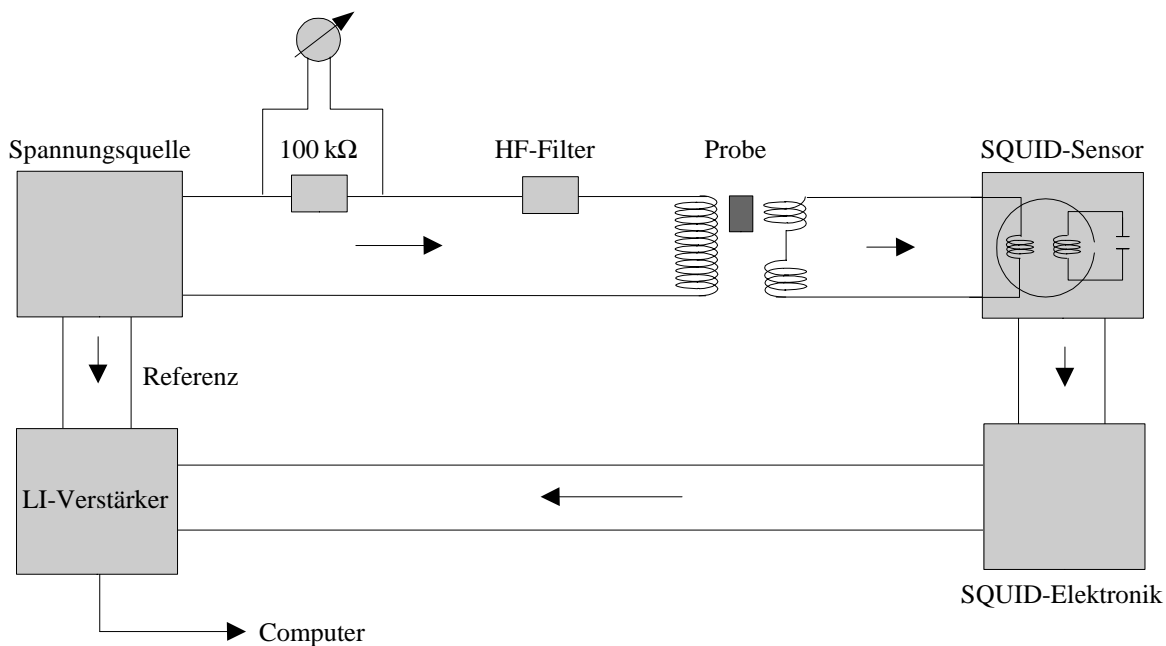
Ein Beispiel für den erfolgreichen Einsatz dieser Messmethode sind die Untersuchungen des Meissner-Volumens an einem  $\text{CeIrIn}_5$ -Einkristall (Abbildung 2.9).  $\text{CeIrIn}_5$  gehört zu einer kürzlich neu entdeckten Klasse von SF-Supraleitern [Petrovic01]  $\text{CeMIn}_5$  ( $M = \text{Rh}, \text{Ir}, \text{Co}$ ). Diese zeichnet sich durch eine geschichtete quasi zweidimensionale Kristallstruktur aus mit einer alternierenden Folge von  $\text{CeIn}_3$  und  $\text{MIn}_2$ .  $\text{CeIn}_3$  zeigt unter einem kritischen Druck von  $p_c \approx 25$  kbar das Auftreten von SF-Supraleitung bei  $T_c \leq 0.25$  K [Grosche00a]. In  $\text{CeMIn}_5$  führt die geschichtete Anordnung zu einer Veränderung der Gitterparameter der  $\text{CeIn}_3$ -Schichten und somit zum Anlegen von chemischem Druck an diese Schichten. Dies verhindert das für  $\text{CeIn}_3$  beobachtete Ausbilden von antiferromagnetischer Ordnung und ist somit eine Voraussetzung dafür, dass in  $\text{CeMIn}_5$  Supraleitung schon unter Atmosphärendruck beobachtet werden kann. Es gibt Hinweise dafür, dass in  $\text{CeMIn}_5$  eine stärkere kristalline Anisotropie zu einer



**Abbildung 2.9:** DC-Magnetisierung  $M/H$  vs  $T$  für einen  $\text{CeIrIn}_5$ -Einkristall, aufgenommen im Aufwärmen nach Nullfeldabkühlung ( $\boxtimes$ , ZFC) sowie im Abkühlen ( $\blacktriangle$ , FC), jeweils in  $B = 64$  mT. Das Meissner-Volumen ergibt sich aus  $\Delta M_{\text{FC}} / \Delta M_{\text{ZFC}} \approx 30\%$ . Zur Kontrolle, ob eventuell vorhandene Umgebungsfelder ausreichend kompensiert sind, wird eine Messung in  $B = 0$  durchgeführt ( $\diamond$ ). Bei ungenügender Kompensation würde aufgrund des Meissner-Effektes das Magnetfeld aus der Probe verdrängt und somit eine Änderung der Magnetisierung bestimmt.

Erhöhung von  $T_c$  führt. Für  $\text{CeIrIn}_5$  konnten bisherige Untersuchungen mit  $T_{c1} = 1.1$  K aus dem elektrischen Widerstand bzw.  $T_{c2} = 0.4$  K aus der Wechselfeldsuszeptibilität sowie der spezifischen Wärme mit unterschiedlichen Messmethoden zwei völlig unterschiedliche supraleitende Übergangstemperaturen auflösen. Die Messungen des Meissner-Volumens können nun belegen, dass Volumensupraleitung erst bei  $T_{c2} \approx 0.4$  K auftritt. Das beobachtete Meissner-Volumen von etwa 30 % hat dabei einen für „bulk“-Proben ungewöhnlich hohen Wert.

- Zur Bestimmung der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität wird dem Gleichfeld ( $B \leq 8$  mT) ein extrem kleines Wechselfeld ( $50 \mu\text{T} > B_{AC} > 5$  nT,  $\nu = 17$  Hz) überlagert und die zur Flussänderung proportionale SQUID-Ausgangsspannung mit einem Lock-In Verstärker detektiert. Dabei macht erst die hohe Empfindlichkeit des SQUID-Sensors die Verwendung solch kleiner Wechselfeldamplituden möglich. Mit dem konventionellen Probenhalter zur Messung der Wechselfeldsuszeptibilität (Kapitel 2.3) müssen erheblich größere Wechselfeldamplituden verwendet werden (Abbildung 2.10).



**Abbildung 2.10:** Schematisches Blockschaltbild für Messungen der Wechselfeldsuszeptibilität bei Verwendung des SQUID-Sensors.

Erfolgreich eingesetzt wurde dieses Verfahren bei der Untersuchung von Supraleitung in einem  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$ -Polykristall (Kapitel 4). Die deutlich größere Wechselfeldamplitude des konventionellen Probenhalters hätte hier schon zur Unterdrückung der Supraleitung geführt.

### 3 Grundlagen

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Systeme gehören zur Klasse der sogenannten Schwere-Fermionen-Systeme (SFS). Diese sind intermetallische Verbindungen, die Elemente mit nicht abgeschlossenen 4f- und 5f-Schalen enthalten. Die Elektronen dieser Schalen sind sowohl für das Auftreten lokaler magnetischer Momente als auch für die Supraleitung in SF-Supraleitern verantwortlich. SFS weichen in ihren physikalischen Eigenschaften sowohl vom Verhalten klassischer unmagnetischer Metalle, als auch klassischer magnetisch ordnender Systeme ab. Ein charakteristisches Merkmal dieser Verbindungen ist die Existenz einer Temperatur  $T^*$ , die üblicherweise zwischen 5 K und 50 K liegt [Grewe91]. Oberhalb dieser Temperatur  $T^*$  zeigen sie ein Verhalten mit gut lokalisierten magnetischen Momenten. Im Bereich um  $T^*$  nimmt die Größe dieser magnetischen Momente, bedingt durch den Kondo-Abschirmungsmechanismus, immer weiter ab. Für Temperaturen weit unterhalb von  $T^*$  setzt ein kohärenter Zustand ein, der sich in der Regel durch das von L.D. Landau vorgeschlagene Fermi-Flüssigkeits (FF)-Modell beschreiben lässt [Landau57].

In jüngster Zeit gelangen immer mehr Systeme in den Blickpunkt, die sich nicht mit Landaus Fermi-Flüssigkeits-Theorie beschreiben lassen. Dementsprechend wird das Verhalten dieser Systeme als „Nicht-Landau-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten“ oder kurz „Nicht-Fermi-Flüssigkeits (NFF)-Verhalten“ bezeichnet. Eine häufig diskutierte Erklärung hierfür ist die Nähe des untersuchten Systems zu einer „magnetischen Instabilität“ bzw. einem „Quantenkritischen Punkt“ (QKP). Der Begriff QKP bezeichnet den Punkt im magnetischen Phasendiagramm, an dem die magnetische Ordnungstemperatur  $T_M$  verschwindet ( $T_M \rightarrow 0$ ). Experimentell ist es möglich, den QKP eines Systems über einen Kontrollparameter wie Druck, Dotierung oder ein äußeres Magnetfeld quasikontinuierlich zu durchlaufen. In Kapitel 3.3 werden einige theoretische Ansätze zur Erklärung des NFF-Verhaltens vorgestellt.

### 3.1 Schwere-Fermionen-Systeme

In diesem Abschnitt werden einige auf dem Kondo-Modell [Kondo64] basierende Grundlagen zur theoretischen Beschreibung von SFS vorgestellt. Anschließend wird ein kurzer Überblick über das Tieftemperaturverhalten der wichtigen physikalischen Messgrößen elektronische spezifische Wärme, magnetische Suszeptibilität und elektrischer Widerstand für SFS gegeben.

#### 3.1.1 Einzelionen-Kondo-Modell

Grundlage zur theoretischen Betrachtung von SFS ist das Kondo-Modell [Kondo64]. In seiner einfachsten Form wurde das Einzelionen-Kondo-Modell zur Beschreibung von einzelnen magnetischen Störstellen in einem unmagnetischen Metall entwickelt. Dieses eignet sich zur Anwendung an verdünnten magnetischen Legierungen wie  $\text{LaCe}_x$  oder  $\text{CuFe}_x$  ( $x \ll 1$ ). Es geht von einer Wechselwirkung der Spins der Leitungselektronen mit den Spins der Störstellen aus, wobei eine Wechselwirkung der magnetischen Störstellen untereinander ausgeschlossen wird. Die Streuung eines freien Elektrons an einer Fehlstelle ruft eine Änderung der Spinrichtungen von Fehlstelle und Leitungselektron hervor. Dagegen muss der Gesamtspin bei einer Spinflip-Streuung erhalten bleiben. Deshalb kann ein zweites Elektron, welches den gleichen Zustand wie das erste Elektron vor der Streuung hat, an dieser Fehlstelle keinen Spinflip mehr erfahren. Dies führt zu einer Korrelation unter den Leitungselektronen. Durch die Kopplung zwischen den itineranten<sup>1</sup>, also vorwiegend frei beweglichen, Leitungselektronen und den stark lokalisierten f-Elektronen kommt es zur Bildung einer resonanzartigen Erhöhung der Zustandsdichte an der Fermi-Kante, die als „Abrikosov-Suhl-Resonanz“ bezeichnet wird [Grewe91]. Diese hohe Dichte itineranter Zustände ist nach dem FF-Modell verantwortlich für die großen effektiven Massen  $m^*$  der Quasiteilchen, die in SFS als Ladungsträger dienen. Der Kondo-Effekt bewirkt, dass für Temperaturen  $T \ll T_K$  das magnetische Moment der Störstelle durch eine Wolke aus Leitungselektronen abgeschirmt wird. Daraus folgt für die magnetische Störstelle eine Energieabsenkung von

$$k_B \cdot T_K \sim E_F \cdot e^{\frac{1}{N(E_F)|J|}}$$

mit der Boltzmannkonstanten  $k_B$ , der Fermi-Energie  $E_F$ , der Zustandsdichte an der Fermi-Kante  $N(E_F)$  und der Austauschwechselwirkung  $J < 0$  zwischen f- und Leitungselektronen. Dadurch ergibt sich unterhalb von  $T_K$  ein Abflachen der Suszeptibilität gegenüber dem Curie-Weiß-Verlauf eines stabilen magnetischen Moments.

---

<sup>1</sup> itiner, -eris (n) lat. = Wanderung, Reise.

### 3.1.2 Kondo-Gitter

Die Betrachtung der Tieftemperatureigenschaften von SFS zeigt jedoch, dass mit dem Einzelionen-Kondo-Effekt alleine keine zufriedenstellende Beschreibung möglich ist. Ursache hierfür ist die gitterperiodische Anordnung der magnetischen „Störstellen“<sup>2</sup>. Die Anordnung in diesem sogenannten Kondo-Gitter führt zu einer Wechselwirkung der magnetischen Störstellen untereinander, der sogenannten RKKY-Wechselwirkung<sup>3</sup> [Ashcroft87]. Ursache dieser indirekten Wechselwirkung ist die Spinpolarisation der Leitungselektronen durch die magnetischen Momente. Ein lokales magnetisches Moment erzeugt eine mit  $r^{-3}$  abklingende langreichweitige Polarisation der Leitungselektronenspins. Dies ruft eine Beeinflussung benachbarter lokaler magnetischer Momente hervor und kann zur Bildung von langreichweitiger magnetischer Ordnung führen, die meist antiferromagnetischer Natur ist. Die Stärke dieser magnetischen Ordnung lässt sich interessanterweise ebenfalls über die schon im Einzelionen-Kondo-Modell verwendete Austauschwechselwirkung  $J$  beschreiben:

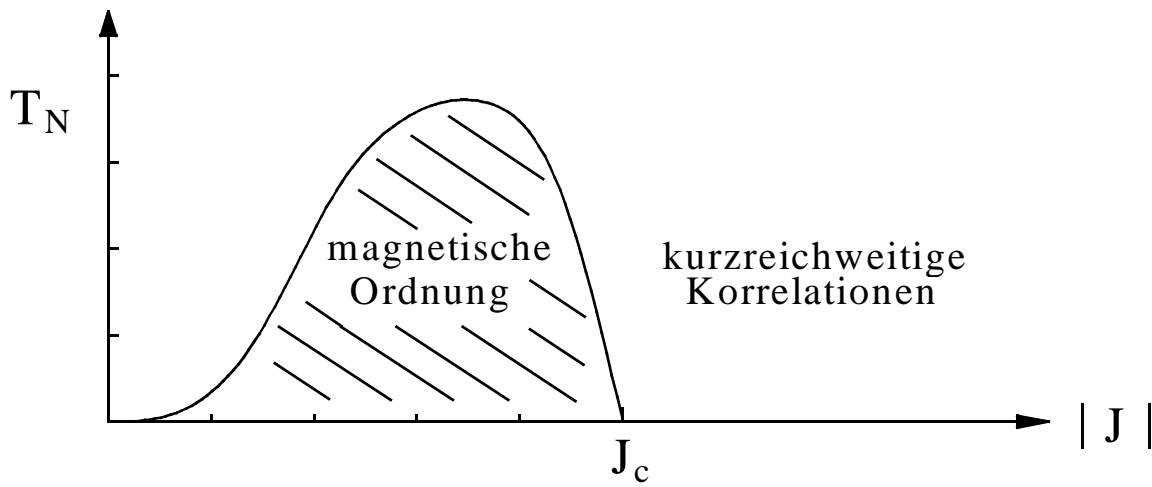
$$k_B \cdot T_{RKKY} \sim J^2 \cdot N(E_F)$$

Somit ergeben sich im Kondo-Gitter zwei konkurrierende Wechselwirkungen (Kondo-Effekt und RKKY-Wechselwirkung), welche beide durch die Austauschwechselwirkung  $|J|$  beschrieben werden können. Zu berücksichtigen ist, dass im Kondo-Gitter die Kondo-Temperatur  $T_K$  des Einzelionen-Kondo-Effektes durch die charakteristische Kondo-Gitter-Temperatur  $T^*$  ersetzt werden muss, welche auch die Wechselwirkung der magnetischen Momente untereinander berücksichtigt. Dabei ist jedoch der genaue Zusammenhang zwischen  $T^*$  und  $T_K$  noch unbekannt.

Welche Form der Grundzustand eines SFS nun annimmt hängt davon ab, welche der beiden konkurrierenden Wechselwirkungen dominiert. Die RKKY-Wechselwirkung herrscht für kleine Werte von  $|J|$  vor und führt zu einem magnetisch (meist antiferromagnetisch) geordneten Grundzustand. Der Kondo-Effekt dominiert dagegen für große Werte von  $|J|$  und ruft damit den unmagnetischen Kondo-Grundzustand hervor, in dem nur kurzreichweitige magnetische Korrelationen beobachtet werden. Eine einfache schematische Darstellung für die Abhängigkeit der magnetischen Ordnungstemperatur von der Austauschwechselwirkung  $J$  geht auf Doniach [Doniach77] zurück (Abbildung 3.1). Diese zeigt die magnetische Ordnungstemperatur  $T_N$  in Abhängigkeit von der Austauschwechselwirkung  $|J|$  zwischen f-Elektronen und Leitungselektronen.

<sup>2</sup> Diese werden durch die nicht abgeschlossenen f-Schalen der Selten-Erd-Ionen hervorgerufen.

<sup>3</sup> Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung.



**Abbildung 3.1:** Schematische Abhängigkeit der magnetischen Ordnungstemperatur  $T_N$  von der Austauschwechselwirkung  $|J|$  zwischen  $f$ -Elektronen und Leitungselektronen (nach [Doniach77]).

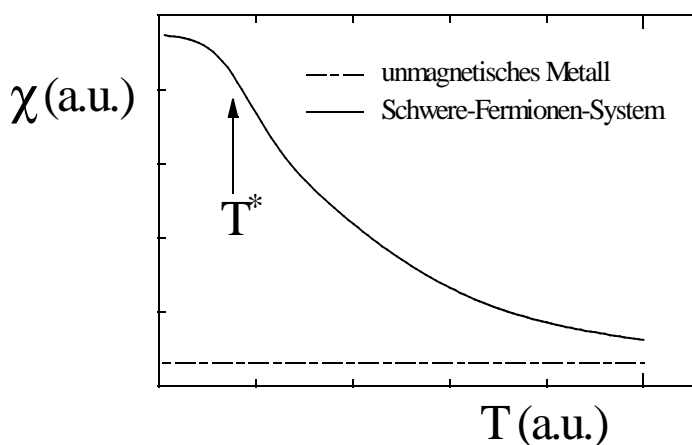


### 3.1.3 Experimentelles Verhalten

Die **magnetische Suszeptibilität**  $\chi(T)$  eines SFS zeigt oberhalb von  $T^*$  ein Curie-Weiß-artiges Verhalten, wie es für lokalisierte 4f- bzw. 5f-Momente erwartet wird (Abbildung 3.2). Dieses Verhalten gleicht dem magnetisch ordnender Systeme oberhalb der Ordnungstemperatur  $T_N$ , weicht dagegen deutlich von dem einfacher, unmagnetischer Metalle ab. Diese zeigen im selben Temperaturbereich die nahezu temperaturunabhängige Pauli-Suszeptibilität  $\chi = \mu_0 \cdot \mu_B^2 \cdot N(E_F)$  mit der als konstant angenommenen Zustandsdichte an der Fermi-Kante  $N(E_F)$ , der magnetischen Feldkonstante  $\mu_0$  und dem Bohr'schen Magneton  $\mu_B$ , welche aus der Sommerfeld-Entwicklung ( $T \ll T_F$ ) für unabhängige Elektronen hergeleitet wird. Aufgrund des Kondo-Abschirm-Mechanismus flacht  $\chi(T)$  für SFS unterhalb der charakteristischen Temperatur  $T^*$  ab. Deutlich unterhalb von  $T^*$  wird dann ein fast temperaturunabhängiger Wert erreicht. Diese gegenüber normalen Metallen stark erhöhte Suszeptibilität wird als Pauli-Suszeptibilität von „Leitungselektronen“ mit stark erhöhter Zustandsdichte an der Fermikante beschrieben. Im FF-Modell führt dies zur Bildung von effektiven Massen, welche um zwei bis drei Größenordnungen gegenüber der Ruhemasse des Elektrons erhöht sein können. Diese stark erhöhten effektiven Massen führten auch auf den Namen „Schwere-Fermionen“.

**Abbildung 3.2:**

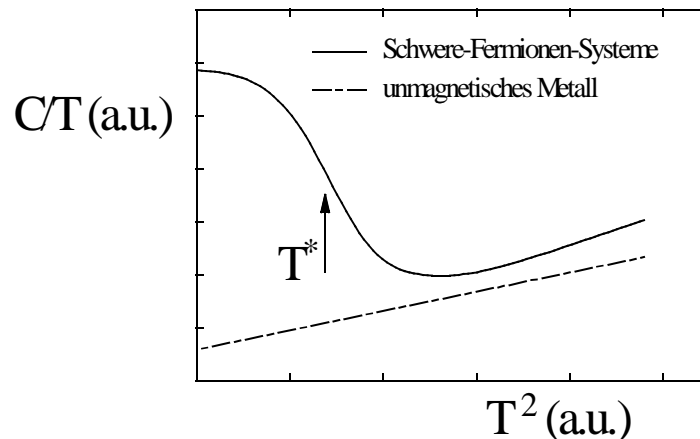
Schematischer Verlauf der Suszeptibilität eines unmagnetischen Metalls und eines Schwere-Fermionen-Systems in Abhängigkeit von der Temperatur. Der Pfeil markiert die charakteristische Kondo-Gitter-Temperatur  $T^*$ .



Auch die **spezifische Wärme** von SFS weicht oberhalb  $T^*$  vom Verhalten einfacher, unmagnetischer Metalle ab (Abbildung 3.3). Für tiefe Temperaturen ( $T \ll T_F$ ,  $T \ll \Theta_D$ ) wird dieses durch  $C(T) = \gamma \cdot T + \beta \cdot T^3$  beschrieben, was in einer Auftragung  $C/T$  über  $T^2$  zu linearem Verhalten führt. Ganz anders ist dagegen wiederum der Verlauf der spezifischen Wärme für SFS. Diese zeigen im Bereich von  $T^*$  einen starken Anstieg von  $C/T$ . Dieser mündet, wie auch schon die magnetische Suszeptibilität, weit unterhalb von  $T^*$  in einen sehr hohen, fast temperatur-unabhängigen, Wert ein. Ursache für dieses Verhalten ist ebenfalls der Kondo-Effekt. Bei sehr tiefen Temperaturen tritt dann ein Fermi-Flüssigkeits-artiges Verhalten (siehe hierzu Kapitel 3.2) mit einem nahezu konstanten, stark erhöhten Sommerfeldkoeffizienten  $\gamma = C(T) / T$  der Größenordnung  $\gamma \approx 1 \text{ J/molK}^2$  auf. (Im Vergleich:  $\gamma_{\text{Cu}} \approx 1 \text{ mJ/molK}^2$ ).

**Abbildung 3.3:**

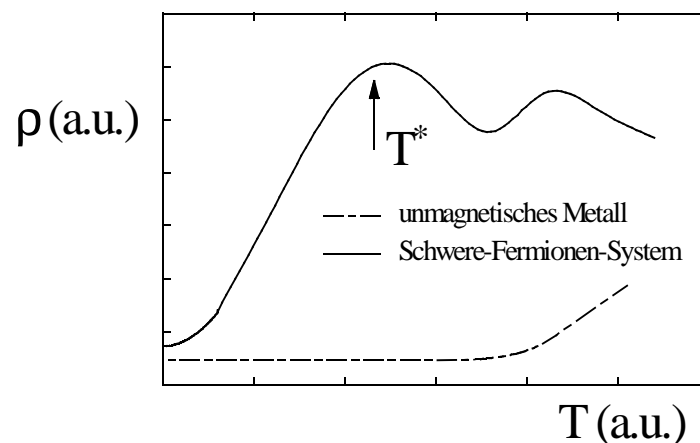
Schematischer Verlauf der spezifischen Wärme eines unmagnetischen Metalls und eines Schwere-Fermionen-Systems in Abhängigkeit von der Temperatur. Der Pfeil markiert die charakteristische Kondo-Gitter-Temperatur  $T^*$ .



Der Verlauf des **elektrischen Widerstandes** zeigt, dass das ungewöhnliche Verhalten von SFS auch in Transportgrößen zu beobachten ist (Abbildung 3.4). In einfachen Metallen dominiert die Elektron-Phonon-Streuung und  $\rho(T)$  ist in einem weiten Temperaturbereich proportional zur Temperatur  $T$ . Für tiefere Temperaturen gilt dann  $\rho(T) \sim T^5$ , bevor schließlich ein konstanter Wert erreicht wird. Dieser wird durch Streuung an Gitterdefekten hervorgerufen. In SFS ist  $\rho(T)$  im Bereich zwischen  $T^*$  und 300 K sehr hoch ( $\rho \approx 100 \mu\Omega\text{cm}$ ) und zeigt meist nur eine geringe Temperaturabhängigkeit. Die Steigung  $d\rho/dT$  kann dabei positiv oder negativ sein, Ursache hierfür ist der Einfluss mehrerer Beiträge auf das Verhalten von  $\rho(T)$ . Der Kondo-Effekt liefert einen logarithmischen Beitrag. Dies führt in einer halblogarithmischen Auftragung von  $\rho(T)$  über  $T$  zu einem linearen Anstieg mit sinkender Temperatur. Der Beitrag von Kristallfeldeffekten zu  $\rho(T)$  kann zu einem Maximum führen, verursacht durch einen Kondo-Effekt angeregter Zustände. Das Einsetzen kohärenter Streuung im Kondo-Gitter führt bei tieferer Temperatur im Bereich von  $T^*$  zu einem starken Abfall des Widerstands. Für sehr tiefe Temperaturen ( $T < 1 \text{ K}$ ) zeigt  $\rho(T)$  schließlich mit  $\rho(T) = \rho_0 + a \cdot T^2$  ein Fermi-Flüssigkeits-artiges Verhalten (siehe hierzu Kapitel 3.2). Hier deutet der  $T^2$ -Term in Analogie zur Elektron-Elektron-Streuung in normalen Metallen ( $\rho_{el-el} \sim (T/T_F)^2$ ) auf eine Streuung der schweren Quasiteilchen untereinander hin.

**Abbildung 3.4:**

Schematischer Verlauf des elektrischen Widerstands eines unmagnetischen Metalls und eines Schwere-Fermionen-Systems in Abhängigkeit von der Temperatur. Der Pfeil markiert die charakteristische Kondo-Gitter-Temperatur  $T^*$ .



## 3.2 Fermi-Flüssigkeits-Verhalten

Eine Berechnung thermodynamischer Größen für Systeme stark wechselwirkender Fermionen wird durch die Fermi-Flüssigkeitstheorie von L.D. Landau [Landau57, Nozieres64] möglich. Als Beispiel für eine Fermi-Flüssigkeit dient dabei häufig flüssiges He<sup>3</sup>, es können jedoch ebenso andere komplexe Vielteilchensysteme, wie es die SFS sind, damit beschrieben werden. Im Modell der Fermi-Flüssigkeit geht man von drei Voraussetzungen aus.

- Die Eigenzustände der Fermi-Flüssigkeit können durch adiabatisches „Einschalten“ der Wechselwirkung zwischen den einzelnen freien Fermionen aus den Eigenzuständen des Fermi-Gases abgeleitet werden.
- Die Gesamtenergie der Fermi-Flüssigkeit soll durch ein Funktional gegeben sein, welches ausschließlich von den Besetzungszahlen der Zustände in der Fermi-Flüssigkeit abhängen darf.
- Die Entropie der Fermi-Flüssigkeit ist weiterhin durch den schon vom Fermi-Gas bekannten Ausdruck gegeben.

Es wird nun ein Quasiteilchenkonzept eingeführt, bei dem zu dem idealen Grundzustand des Fermi-Gases ein weiteres Teilchen mit einem Wellenvektor  $k > k_F$  hinzugefügt wird. Der damit entstandene Eigenzustand des Systems nach Einschalten der adiabatischen Wechselwirkung entspricht dem Grundzustand mit einem hinzugefügten Quasiteilchen. Die effektive Masse  $m^*$  dieser Quasiteilchen beinhaltet dabei die gesamten Wechselwirkungen zwischen den Fermionen. Außerdem ist  $m^*$  proportional zur Zustandsdichte an der Fermi-Kante im Gleichgewicht (für  $T = 0$ ):

$$N(0) = \frac{k_F \cdot m^*}{\pi^2 \cdot \hbar^2}$$

Vor allem für SFS ist dieser Zusammenhang wichtig, da somit alle von der Zustandsdichte abhängigen Größen mit der effektiven Masse skalieren. Aus der Theorie der Fermi-Flüssigkeit ergeben sich folgende Ergebnisse für einige experimentell leicht zugängliche Messgrößen:

Die **elektronische spezifische Wärme**  $C$  verhält sich in erster Näherung wie ein freies Elektronengas mit Fermi-Wellenvektor  $k_F$  und effektiver Quasiteilchenmasse  $m^*$ .

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

Bei tiefen Temperaturen lässt sich der Gitterbeitrag zur spezifischen Wärme mit  $C_{ph} = \beta \cdot T^3$

beschreiben. Eine Auftragung der Form  $C/T$  vs  $T^2$  ermöglicht die Bestimmung der Parameter  $\beta$  und  $\gamma$  und somit der effektiven Masse  $m^*$  der Quasiteilchen.

Bei der Berechnung der paramagnetischen **Suszeptibilität** muss die Wechselwirkung zwischen den Quasiteilchen berücksichtigt werden. Dies geschieht durch die Einführung des dimensionslosen Landau-Parameters  $F$ . Damit ergibt sich das bekannte Ergebnis der temperaturunabhängigen Pauli-Suszeptibilität mit Landé-Faktor  $g$  und Bohr'schen Magneton  $\mu_B$ :

$$\chi_m = \frac{(g \cdot \mu_B)^2 \cdot m^* \cdot k_F}{4 \cdot \pi^2 (1 + F)}$$

Spezifische Wärme und magnetische Suszeptibilität sind über das sogenannte Wilson-Verhältnis

$$R = \frac{\chi}{\gamma} \cdot \left( \frac{\pi^2 \cdot k_B^2}{\mu_0 \cdot \mu_{eff}^2} \right)$$

miteinander verknüpft. Hier ist  $\mu_{eff}^2 = g^2 \cdot \mu_B^2 \cdot J(J+1)$  mit der Drehimpulsquantenzahl  $J$ . Für freie Elektronen ergibt sich  $R = 1$ . Eine Bestimmung des Wilson-Verhältnisses für SF-Systeme aus experimentellen Ergebnissen zeigt eine ähnliche Größenordnung für  $R$ . Dabei wird für einen Großteil der SF-Systeme eher  $2 \leq R \leq 5$  [Löhneysen95] beobachtet.

Die Berechnung des **elektrischen Widerstands** einer Fermi-Flüssigkeit mittels der FF-Theorie ist ohne zusätzliche Annahmen über Streuprozesse nicht möglich. Experimentell wird für tiefe Temperaturen  $T < 1$  K häufig folgendes Verhalten beobachtet:

$$\rho(T) = \rho_0 + a \cdot T^2$$

Dieses Verhalten ist ein Hinweis auf eine Streuung der schweren Quasiteilchen untereinander in Analogie zur Streuung zwischen Elektronen gemäß  $\rho_{el-el} \sim (T/T_F)^2$ . Einen Bezug zum Koeffizienten  $\gamma$  der elektronischen spezifischen Wärme liefert die von K. Kadowaki und S.B. Woods [Kadowaki86] empirisch gewonnene Beziehung

$$\frac{a}{\gamma^2} \approx 1 \cdot 10^{-5} \mu \Omega \text{cm} \left( \frac{\text{mol} \cdot \text{K}}{\text{mJ}} \right)^2$$

welche für die meisten bekannten Schwere-Fermionen-Systeme anwendbar ist. Eine theoretische Bestätigung für diese Beziehung wird von der Skalentheorie [Continentino94] erbracht.

### 3.3 Nicht-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten

Trotz vieler Erfolge der Fermi-Flüssigkeitstheorie bei der Beschreibung von Schwere-Fermionen-Verbindungen gibt es immer mehr Systeme, die ein davon abweichendes physikalisches Verhalten zeigen. Hieraus ergibt sich auch die Bezeichnung als „Nicht-Fermi-Flüssigkeits-Verhalten“ für solche Systeme. Im elektrischen Widerstand wird hier meist anstatt des nach der FF-Theorie erwarteten  $\Delta\rho \sim T^2$ -Verhaltens eine Abhängigkeit der Form  $\Delta\rho \sim T^\varepsilon$  mit Exponenten  $1 \leq \varepsilon \leq 1.5$  beobachtet. Für Messungen der spezifischen Wärme wird beim Abkühlen zu tiefen Temperaturen ein starker Anstieg von  $C/T$  gemäß  $\gamma(T) = \gamma_0 - c \cdot \sqrt{T}$  oder sogar eine Divergenz der Form  $\gamma(T) \sim \log(\frac{T_0}{T})$  beobachtet. Dieses Auftreten von NFF-Verhalten ist zur Zeit Gegenstand intensiver Untersuchungen. Einen Überblick hierzu bieten u.a. [Coleman01, Maple96, Löhneysen97].

Zur theoretischen Beschreibung des NFF-Verhaltens gibt es eine Reihe von Modellen, welche von zum Teil völlig unterschiedlichen Lösungsansätzen ausgehen. Das sind z.B. Einzelionen-Effekte wie die auf dem Kondo-Modell aufbauenden Modelle des Mehrkanal-Kondo-Effekts [Nozieres80], des Quadrupolaren Kondo-Effekts [Cox87] sowie einer Verteilung von Kondo-Temperaturen [Miranda97]. Dagegen basieren die im Folgenden beschriebenen Modelle auf kooperativen Effekten, die auf kritischen Fluktuationen nahe einer magnetischen Instabilität beruhen.

Ein Erklärungsansatz für das Auftreten von NFF-Verhalten geht vom Vorliegen eines Quantenkritischen Punktes aus. Dabei ist die magnetische Ordnungstemperatur  $T_M$  eines Systems gerade zu  $T = 0$  verschoben. Der Grundzustand eines Systems und damit die Nähe zu einem QKP (siehe Kapitel 3.1.) ist durch den Kopplungsparameter  $J$  zwischen lokalisierten f-Elektronen und itineranten Leitungselektronen gegeben. Experimentell kann  $J$  durch Anlegen von hydrostatischem Druck oder Dotierung variiert werden. Am QKP liegen stark ausgebildete, energetisch tief liegende Fluktuationen des lokalen magnetischen Ordnungsparameters (d.h. der lokalen Spin-Orientierung) vor. Diese Fluktuationen vermitteln die Wechselwirkungen zwischen den schweren Quasiteilchen und verursachen damit stark Energie abhängige Quasiteilchen-Massen sowie Quasiteilchen-Quasiteilchen-Streuquerschnitte. Dies führt zu den für NFF-Verhalten charakteristischen Temperaturabhängigkeiten der Koeffizienten der elektronischen spezifischen Wärme  $\gamma(T) = \Delta C(T)/T$  sowie des elektrischen Widerstandes  $a(T) = \Delta\rho(T)/T^2$ .

Im Zusammenhang mit dem Auftreten von NFF-Verhalten am QKP werden zwei unterschiedliche Szenarien diskutiert. Diese basieren auf dem Ansatz eines „lokalen QKP“ sowie einer „nearly antiferromagnetic Fermi liquid“. Der wesentliche Unterschied zwischen diesen beiden Theorien ist der Anteil der Fermifläche, auf der anomale Streuung stattfindet. Während für den Fall eines lokalen QKP, verbunden mit einem Zusammenbrechen der FF-Theorie, die

gesamte Fermifläche zur Streuung beiträgt, wird im anderen Fall nur der Anteil der Quasiteilchen entlang sogenannter „hot lines“ stark durch die kritischen Fluktuationen gestreut.

Für Systeme mit einem hohen Grad an Unordnung wird schließlich das Konzept der sogenannten „Griffiths-Phase“ diskutiert.

### 3.3.1 „Nearly antiferromagnetic Fermi liquid“

Im Modell der „Nearly antiferromagnetic (afm) Fermi liquid (FL)“ sind die lokalen Momente für Temperaturen unterhalb  $T_K$  auf beiden Seiten des QKP abgeschirmt (siehe Abbildung 3.5) und spielen daher am QKP keine Rolle. Am QKP liegt eine Spin-Dichte-Welle-Instabilität vor. Als Grundlage zur Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens dient dabei eine Verallgemeinerung der FF-Theorie von Landau. Das auch in diesem Fall vorhandene Vorliegen einer genau definierten Fermi-Fläche zeigt vor allem die Parallelen zu einer „gewöhnlichen“ Fermi-Flüssigkeit. Dagegen sind bei tiefen Temperaturen die Quasiteilchen-Masse sowie der Quasiteilchen-Quasiteilchen-Streuquerschnitt nicht konstant. Für ein System mit dreidimensionalen kritischen Spinfluktuationen ergeben sich nach der Skalentheorie [Millis93] und der phänomenologischen Spinfluktuationstheorie [Moriya95, Lonzarich97] der Verlauf des Koeffizienten der elektronischen spezifischen Wärme  $\gamma$  sowie des elektrischen Widerstandes  $\rho$  für tiefe Temperaturen  $T \rightarrow 0$  folgendermaßen:

$$\gamma(T) = \frac{C(T)}{T} = \gamma_0 - \alpha \cdot T^{1/2}$$

$$\rho(T) = \rho_0 + \varphi \cdot T^{3/2}$$

Im Anschluss daran wird ein „cross-over“-Verhalten (über maximal eine Dekade in  $T$ ) vorausgesagt:

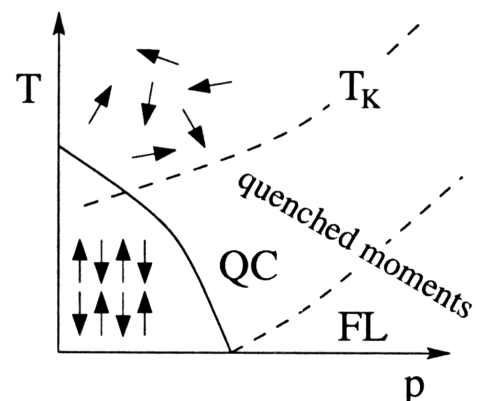
$$\gamma(T) = \frac{C(T)}{T} \sim \ln\left(\frac{T_0}{T}\right)$$

$$\rho(T) \sim T$$

$T_0$  ist eine charakteristische Temperatur und ein Maß für die Dispersion der niederenergetischen antiferromagnetischen Fluktuationen [Moriya95].

Abbildung 3.5:

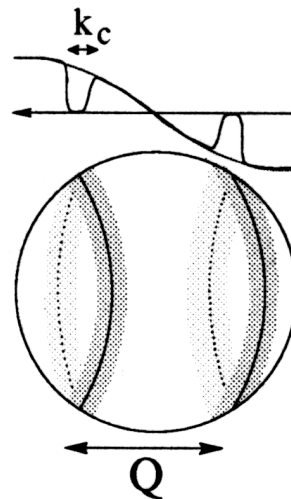
$T$ - $p$ -Phasendiagramm für den SDW-Übergang in eine Fermiflüssigkeit. Unterhalb von  $T_K$  werden die tief liegenden energetischen Anregungen der Fermiflüssigkeit durch die schweren Quasiteilchen beschrieben [Rosch00].



Im Modell der „Nearly afm FL“ sind die afm Spinfluktuationen für Wellenvektoren  $\vec{q}$  nahe des Wellenvektors  $\vec{Q}$ , bei dem sich die antiferromagnetische Ordnung entwickelt, am stärksten ausgebildet. Dies führt dazu, dass Elektronen der Energie  $\varepsilon \approx \mu$  von den Spinfluktuationen in der Nähe sogenannter „hot lines“ auf der Fermi-Fläche, wo  $\varepsilon \approx \varepsilon_{k+Q} \approx \mu$  gilt, am stärksten gestreut werden (Abbildung 3.6). Dies führt zu einer anomalen Temperaturabhängigkeit der Quasiteilchenstreuung. Die inelastische Streuung ist auf den übrigen Gebieten („cold regions“) dagegen nur schwach ausgebildet. Nach R. Hlubina und T.M. Rice [Hlubina95] wird der durch „hot lines“ verursachte zusätzliche Streubeitrag durch die normalen Quasiteilchen-Quasiteilchen-Streuprozesse auf der übrigen Fermifläche kurzgeschlossen. Daher sollte selbst direkt am QKP bei tiefen Temperaturen ein Übergang zu FF-Verhalten ( $\rho \sim T^2$ ) stattfinden. Wie von A. Rosch [Rosch00] gezeigt, gilt dies nicht mehr, wenn der (in realen Proben immer vorhandene) Einfluss von Verunreinigungs-Streuung berücksichtigt wird. Diese reduziert die Anisotropie der Quasiteilchen-Lebensdauer, welche zu einem komplizierten „cross-over“-Verhalten für  $\rho(T)$  führt, das im Folgenden diskutiert wird.

Abbildung 3.6:

Schematische Darstellung der Fermi-Fläche für das SDW-Szenario. Singuläre Streuung findet entlang sogenannter „hot lines“, verbunden durch den Wellenvektor  $\vec{Q}$  der nahen langreichweitigen Ordnung, statt (aus [Rosch00]).



Die theoretische Berechnung des elektrischen Widerstandes unter Berücksichtigung der beiden Streubeiträge erfolgt mit einer halb-klassischen Boltzmann-Gleichung, wobei auf die Berechnung im Detail hier jedoch nicht näher eingegangen wird. Für Systeme, die sich nicht im „clean limit“ befinden, ergibt sich aus dieser Rechnung der schon aus der Spinfluktuationstheorie bekannte Verlauf des elektrischen Widerstandes:

$$\rho \sim T^{1.5}$$

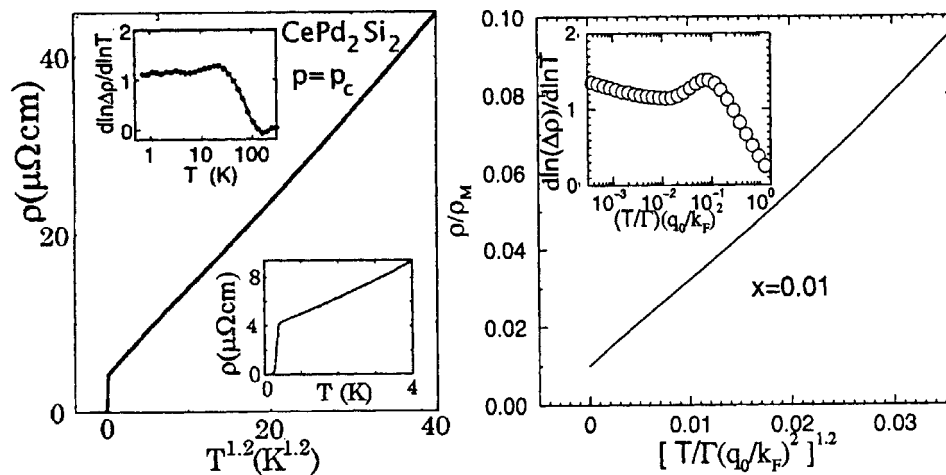
Dagegen ergibt sich für Systeme am „clean limit“ ein deutlich kleinerer Exponent:

$$\rho \sim T^\epsilon \quad \text{mit } 1 \leq \epsilon \leq 1.5$$



Die Berechnungen ergeben den in Abbildung 3.8 für unterschiedliche Werte des „impurity“-Parameters  $x$  dargestellten, temperaturabhängigen Verlauf des Exponenten  $\varepsilon(T)$ . Für ideal reine Systeme gilt  $x = 0$ . Nach [Rosch99] kann hierbei  $x$  näherungsweise mit dem Kehrwert des Restwiderstandsverhältnisses  $RRR$  identifiziert werden. Betrachtet wird in der logarithmischen Auftragung das charakteristische Moment  $q_0$ , die charakteristische Energieskala  $\Gamma$  und der Fermi-Wellenvektor  $k_F$ . Eine experimentelle Bestimmung von  $\varepsilon(T)$  ist durch Bildung der logarithmischen Ableitung  $d \log(\Delta\rho) / d \log T$  mit  $\Delta\rho = \rho(T) - \rho_0$  möglich.

Für eine Reihe von SF-Systemen erscheint eine Beschreibung der experimentell beobachteten Resultate im Modell der „nearly afm FL“ möglich. Nach [Rosch00] sind dies z.B.  $\text{CePd}_2\text{Si}_2$ ,  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$ ,  $\text{CeIn}_3$ ,  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  sowie  $\text{CeNiGa}_2$ . Das an  $\text{CePd}_2\text{Si}_2$  beobachtete  $\Delta\rho \sim T^{1.2}$ -Verhalten lässt sich nach Roschs Modell mit einem Parameter  $x = 0.01$  reproduzieren, wobei auch die Temperaturabhängigkeit des Exponenten  $\varepsilon(T)$  korrekt wiedergegeben wird (Abbildung 3.7).

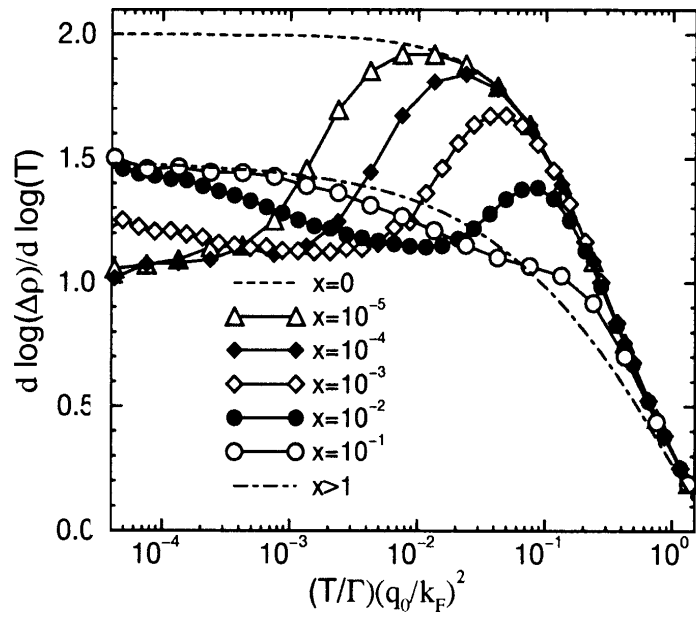


**Abbildung 3.7:** Vergleich zwischen gemessenem elektrischem Widerstand  $\rho(T)$  (links) und Berechnung von A. Rosch (rechts) für  $\text{CePd}_2\text{Si}_2$ . Im Inset ist jeweils die logarithmische Ableitung  $d \ln(\Delta\rho) / d \ln T$  gezeigt; die Messung des Widerstands zeigt Supraleitung für  $T \leq 0.4$  K (Inset links) [Rosch00].

Eine experimentelle Bestätigung für die Theorie von A. Rosch könnte eine Analyse mehrerer Proben mit unterschiedlichen Restwiderständen liefern, welche dennoch den selben Abstand zum QKP aufweisen. Erste Untersuchungen dazu an  $\text{Ce}_{1+x}\text{Ni}_{2+y}\text{Ge}_{2+z}$ -Polykristallen, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden (siehe Kapitel 4), können hierzu jedoch noch keine Anhaltspunkte liefern. Problematisch ist dabei vor allem die Tatsache, dass fast alle der untersuchten Proben eine unterschiedliche, leicht von der exakten Stöchiometrie abweichende Zusammensetzung und damit gerade nicht den erforderlichen identischen Abstand zum QKP aufweisen. Die wenigen Proben mit identischer Zusammensetzung haben Restwiderstandsverhältnisse ähnlicher Größenordnung, so dass auch hier keine aussagekräftigen Resultate gewonnen werden können.

**Abbildung 3.8:**

Berechnung des temperaturabhängigen Exponenten  $\epsilon(T)$ , definiert durch die logarithmische Ableitung  $d \log(\Delta\rho) / d \log T$ , für Proben mit unterschiedlichem „impurity“-Parameter [Rosch99].



### 3.3.2 Lokaler quantenkritischer Punkt

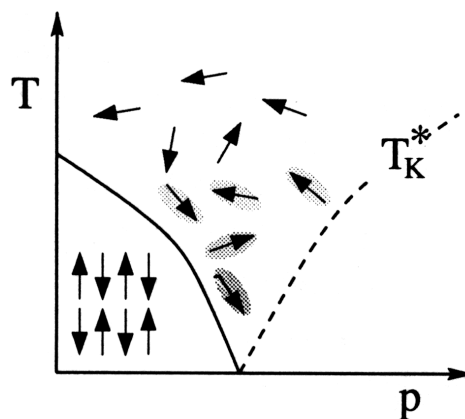
Während im Spin-Dichte-Wellen-Szenario die lokalen Momente keinen Einfluss auf die magnetische Ordnung am QKP haben, wurde ein neues Szenario vorgeschlagen, in welchem die Momente bis zu einer charakteristischen Energieskala  $T_K^*$  existieren, die am QKP verschwindet (siehe Abbildung 3.9) [Coleman01, Schröder00]. In diesem Modell spielen die lokalen Momente eine wichtige Rolle bei der Entwicklung von langreichweitiger Ordnung am QKP. Inelastische Neutronenstreuexperimente an  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  für die kritische Konzentration  $x_c = 0.1$  [Stockert98, Schröder98, 00] ergaben hierzu folgende Hinweise:

- i. Die kritischen Fluktuationen werden auf Linien im Q-Raum beobachtet. Im Ortsraum liegen daher quasi-zweidimensionale kritische Fluktuationen vor.
- ii. Ein  $E/T$ -Skalenverhalten der dynamischen Suszeptibilität  $\chi''(\omega, q)$  wird für alle  $\vec{q}$  in der Brillouin-Zone beobachtet. Insbesondere wird für  $\vec{q}=0$  (Magnetische Bulk-Suszeptibilität) eine anomale Temperaturabhängigkeit gemäß  $\chi^{-1}(T) = \chi_0^{-1} + c \cdot T^\alpha$  mit  $\alpha < 1$  (nicht Curie-Weiß Verhalten) beobachtet.

Diese Beobachtungen zeigen, dass die Dynamik am QKP auf atomarer Längenskala kritisch wird und somit die lokalen Momente am QKP eine aktive Rolle in den magnetischen Fluktuationen spielen. Einen ersten theoretischen Ansatz für die Physik am lokalen QKP bieten [Schröder00] und [Si00]. Eine abgeschlossene Theorie für das Szenario des lokalen QKP liegt jedoch noch nicht vor. In [Coleman01] werden Messungen der Hall-Konstanten am QKP zur Unterscheidung der beiden Szenarien vorgeschlagen: Während für das lokale Szenario die Hall-Konstante beim Übergang zu langreichweitiger Ordnung am QKP eine Unstetigkeit oder sogar einen Sprung zeigen soll, wird für das itinerante Szenario ein „glattes“ Verhalten erwartet.

**Abbildung 3.9:**

*Schematische Darstellung des  $T$ - $p$ -Phasendiagramms für das Modell des lokalen QKP. In der Nähe des QKP bricht der Kondo-Effekt zusammen, die Kondo-Temperatur  $T_K^*$  verschwindet und das physikalische Verhalten wird nur noch durch lokale magnetische Fluktuationen bestimmt [Rosch00].*



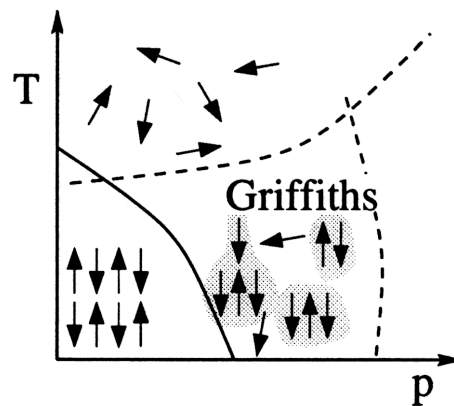
### 3.3.3 Griffith-Phase

Für Systeme mit einem hohen Grad an Unordnung wird mit der Bildung der sogenannten Griffith-Phase ein weiteres Szenario diskutiert. Dabei ist der Einfluß von Unordnung dann von Bedeutung, wenn die Größe von typischen Fluktuationen der effektiven Néel-Temperatur in Relation zur Distanz vom QKP groß ist. Somit kann schon in einem gewissen Abstand zum QKP im unmagnetischen Bereich die Bildung von einzelnen, magnetisch geordneten Clustern stattfinden (Abbildung 3.10). Eine Wechselwirkung zwischen den kurzreichweitig magnetisch geordneten Clustern kann dann zum Auftreten von NFF-artigem Verhalten führen. Nach [CastroNeto98] wird dabei für die spezifische Wärme und die magnetische Suszeptibilität ein divergierendes Verhalten der Form  $\gamma = \frac{C(T)}{T} = a \cdot T^{-1+\lambda}$  sowie  $\chi(T) = b \cdot T^{-1+\lambda}$  mit  $\lambda < 1$  vorhergesagt.

Für einige dotierte f-Elektronen-SF-Systeme wird die Möglichkeit der Bildung einer Griffith-Phase diskutiert. Für  $\text{UCu}_{5-y}\text{Pd}_y$  wird dies aufgrund eines stark divergierenden Verhaltens von spezifischer Wärme und magnetischer Suszeptibilität vermutet [CastroNeto98]. Nach [Andrade98] wird auch für  $\text{UCu}_{5-y}\text{Pt}_y$ ,  $\text{Th}_{1-x}\text{U}_x\text{Pd}_2\text{Al}_3$  und  $\text{Y}_{1-x}\text{U}_x\text{Pd}_3$  die Bildung einer Griffith-Phase diskutiert.

Abbildung 3.10:

Schematisches  $T$ - $p$ -Phasendiagramm der sogenannten „Griffith-Phase“. Hier bilden sich durch eine innerhalb der Probe variierende Néel-Temperatur auch in der paramagnetischen Phase lokale magnetische Domänen, welche untereinander wechselwirken können (siehe [CastroNeto98], Abb. aus [Rosch00]).



Bis heute existiert jedoch für SF-Systeme noch kein eindeutiger Nachweis, dass das Auftreten von NFF-Verhalten tatsächlich auf die Bildung einer Griffith-Phase zurückgeführt werden kann. Um den Einfluss von Unordnung zu minimieren, sind die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen zu NFF-Verhalten an geordneten Systemen ( $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  und  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$ ) mit sehr niedrigen Restwiderständen  $\rho_0$  durchgeführt worden. Systeme, die die Griffith-Phase zeigen, haben dagegen sehr große Restwiderstände  $\rho_0$ . Aus diesem Grund kann das NFF-Verhalten für die Systeme  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  und  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  nicht auf die Bildung einer Griffith-Phase zurückgeführt werden.