

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА НОВОГО ТРОЙНОГО СОЕДИНЕНИЯ CeRuSi₂

В. Н. Никифоров, В. Ковачик, А. А. Велиховский, И. О. Грищенко,
Й. В. Миркович, Б. И. Шапиев, О. И. Бодак, Ю. Д. Серопегин

Получено и исследовано новое цериевое тройное соединение CeRuSi₂. Сообщаются данные исследований кристаллической структуры, удельного сопротивления, магнитной восприимчивости и теплоемкости при низких температурах. Обнаружено, что данное соединение демонстрирует тяжелофермионное поведение с коэффициентом электронной теплоемкости $\gamma \sim 100$ мДж/моль \cdot K². При температуре $T \sim 11$ К система претерпевает магнитный переход, который, по-видимому, является ферромагнитным.

Тройные интерметаллические соединения на основе церия представляют собой обширный класс веществ, демонстрирующих как магнитное, так и немагнитное поведение. Некоторые из этих соединений относятся к так называемым системам с тяжелыми фермионами (СТФ) [1, 2]. СТФ занимают промежуточное положение между магнетиками и нормальными металлами и отличаются от них целым рядом необычных свойств — прежде всего гигантским низкотемпературным коэффициентом электронной теплоемкости ($\gamma \sim 10^3$ мДж/моль \cdot K²) и отвечающей этому значению эффективной массой $m^* \sim 10^2 - 10^3 m_0$ (m_0 — масса свободного электрона). Такая величина m^* является результатом перенормировки плотности состояний и возникновения вследствие кондовских процессов рассеяния на уровне Ферми (E_F) резонанса Абрикосова—Сула (РАС) [1, 2].

Наиболее известным и исследованным типом тройных соединений с церием является CeT₂X₂, где Т — переходный металл, а X — Si, Ge. Соединения этого типа имеют тетрагональную кристаллическую структуру ThCr₂Si₂. В зависимости от состава в них реализуется как магнитное, так и немагнитное тяжелофермионное состояние. Самым известным представителем данной группы является тяжелофермионный сверхпроводник CeCu₂Si₂ [3] со значением коэффициента электронной теплоемкости $\gamma \sim 1000$ мДж/моль \cdot K² и температурой сверхпроводящего перехода $T_c = 0.7$ К.

Другие типы кристаллических структур данного класса соединений пока исследованы недостаточно, поэтому представляет большой интерес поиск и изучение свойств новых цериевых тройных соединений. Результатом исследования фазового треугольника Ce—Ru—Si явился синтез нового соединения CeRuSi₂, имеющего моноклинную кристаллическую структуру типа NdRuSi₂ [4]. Изучению свойств этого соединения и посвящена настоящая работа.

Методика эксперимента

Поликристаллические образцы CeRuSi₂ готовились сплавлением церия (99.0 мас.% Ce), рутения (99.99 мас.% Ru) и кремния (99.99 мас.% Si) в электроплавильной печи, в атмосфере очищенного аргона на медном водоохлаждаемом поду. В качестве геттера использовали металлический титан. Рентгеноструктур-

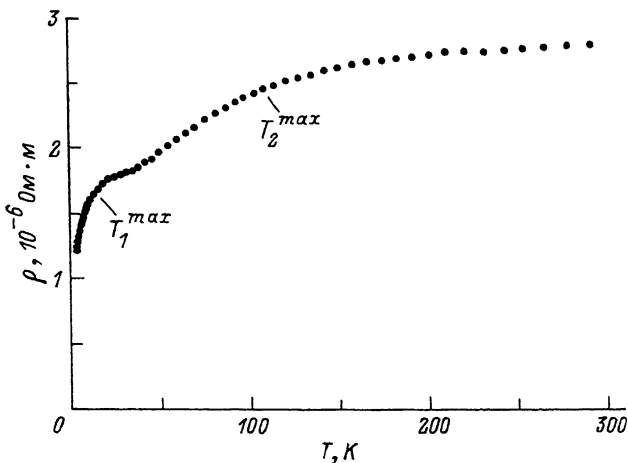


Рис. 1. Удельное сопротивление образца CeRuSi_2 в области температур 2.1—300 К.

ный анализ показал, что данное соединение имеет пространственную группу симметрии $P2_1/m$ моноклинной сингонии типа NdRuSi_2 [4] с характерными размерами: $a = 4.185(2) \text{ \AA}$, $b = 6.875(9) \text{ \AA}$, $c = 3.919(2) \text{ \AA}$, углом между направлениями a и b $112.58(9)^\circ$, объемом элементарной ячейки $V = 104.114 \text{ \AA}^3$ и рентгеновской плотностью $d = 9.485 \text{ г/см}^3$.

Измерения удельного сопротивления проводились стандартным четырехзондовым методом на постоянном токе 10 мА. Изменение температуры в исследуемой области температур достигалось перемещением вставки с образцом в парах над уровнем жидкого ^4He с последующей откачкой до температуры 2.1 К. В качестве термометра использовалась термопара с ошибкой измерения 0.05 К, а при откачке температура определялась путем измерения давления паров ^4He . Монтаж контактов к образцам осуществлялся при помощи медных проволоочек толщиной 0.05 мм, привариваемых электроискровым методом, обеспечивающим хороший электрический контакт.

Магнитные свойства изучались посредством стандартного вибрационного магнитометра фирмы PARC (США). Точность измерений магнитного момента составляла 10^{-5} ед.

Теплоемкость измерялась квазиadiaбатическим импульсным методом в калориметре по методике, описанной в работе [5].

Результаты эксперимента

В результате проведенных измерений образца CeRuSi_2 были получены зависимости удельного сопротивления $\rho(T)$, теплоемкости $C(T)$ и магнитных свойств от температуры. На зависимости $\rho(T)$ в области температур 2.1—300 К проявляются два максимума при $T_1^{\text{max}} \sim 11$ и $T_2^{\text{max}} \sim 120$ К, и после прохождения нижнего максимума T_1^{max} удельное сопротивление резко уменьшается $\Delta\rho(T)/\rho(T) \sim 50\%$ (рис. 1).

Измерения температурной зависимости удельной теплоемкости $C(T)$ (рис. 2) показали в районе $T_C \sim T_1^{\text{max}} \sim 11$ К наличие λ -пика на фоне достаточно высокой электронной теплоемкости с коэффициентом $\gamma \sim 100$ мДж/моль \cdot К². Оценочное значение коэффициента электронной теплоемкости γ получено путем экстраполяции зависимости $C(T)/T$ от T^2 в точку $T = 0$ К.

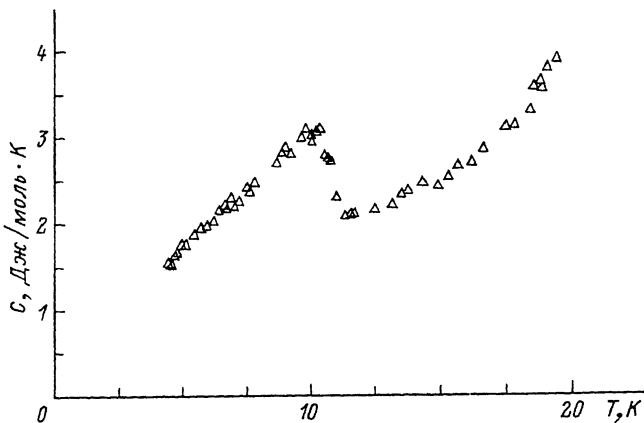


Рис. 2. Удельная теплоемкость образца CeRuSi_2 в районе $T_C \sim T_1^{\text{max}} \sim 11$ К.

На зависимостях магнитной восприимчивости от температуры $\chi(T)$ наблюдается магнитный переход при $T_C \sim 11$ К, выше которого образец демонстрирует парамагнитное (Кюри-вейсовское) поведение. На рис. 3 приведена температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости, на которой заметно резкое падение величины χ^{-1} (или рост χ) ниже T_C . На рис. 4 приводится кривая намагничивания при температуре 6 К. На полученной зависимости наблюдается гистерезис, который вместе с резким увеличением χ , по всей видимости, свидетельствует о ферромагнитной природе магнитного перехода при 11 К.

Обсуждение

Наличие максимумов на температурной зависимости удельного сопротивления и довольно высокое значение коэффициента электронной теплоемкости γ позволяют предположить, что мы имеем дело с Кондо-системой.

Температура Кондо T_K наряду с температурой косвенного взаимодействия спинов друг с другом через осцилляции спиновой плотности Рудермана—Киттеля—Касуи—Йосиды ($T_{\text{РККИ}}$) является характеристикой Кондо-системы, и

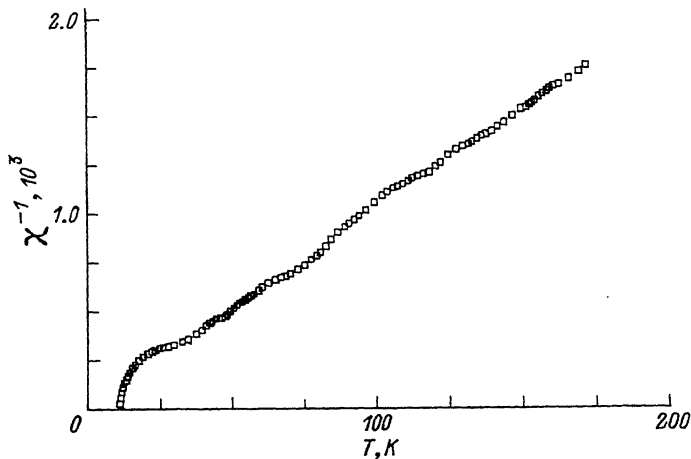


Рис. 3. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости для образца CeRuSi_2 .

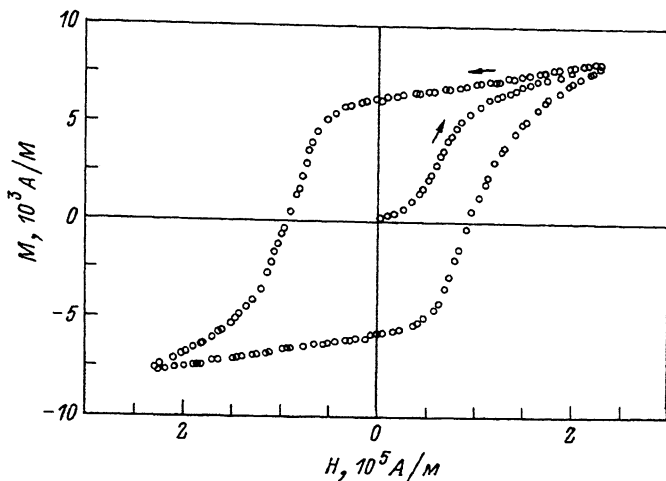


Рис. 4. Поведение намагничивания при температуре 4.2 К для образца CeRuSi_2 .

от соотношения этих температур зависит, будет ли система магнитной или немагнитной [6]. В свою очередь T_K и $T_{\text{РККИ}}$ зависят от параметра обменного взаимодействия J , который дается выражением

$$J \sim V_{sf} / (E_F - E_f),$$

где E_f — энергия f -уровня.

Как известно, кондовские флуктуации спина, приводящие к образованию тяжелофермионного состояния, не могут происходить в системе, в которой при магнитном переходе произошло «замораживание» спинов. Таким образом, СТФ может возникнуть только в случае $T_K > T_{\text{РККИ}}$ (большие значения J). Таким образом, в зависимости от параметра J реализуется либо магнетик, либо Кондо-система с экранированным магнитным моментом [7]. В последнем случае основное состояние системы должно быть немагнитным. При рассмотрении интерметаллических соединений на основе Ce ($4f$ -элемент) в большинстве случаев важную роль играет f -уровень, расположенный достаточно глубоко под уровнем Ферми E_F , что в свою очередь ведет к малому значению параметра обменного взаимодействия J . В таких условиях температура Кондо T_K мала по сравнению с $T_{\text{РККИ}}$ и с понижением температуры эффекты, связанные с образованием РАС, не успевают проявляться, так как имеющий место при $T < T_C$ магнитный переход делает кондовские процессы с переворотом спина невозможными.

С другой стороны, последние экспериментальные и теоретические работы свидетельствуют о том, что даже в тяжелофермионном состоянии может реализоваться магнитное упорядочение. Более полная фазовая диаграмма СТФ приведена в работе [6]. В большинстве СТФ при низких температурах действительно обнаружен «слабый» антиферромагнитный порядок с малым значением магнитного момента порядка 10^{-2} магнетона Бора. Ферромагнетизм как возможное основное состояние СТФ был обнаружен ранее в системах CeSi_{2-x} [8], CeSi_{2-x} [9] и $\text{URu}_{2-x}\text{Re}_x\text{Si}_2$ [10].

По всей видимости, соединение CeRuSi_2 тоже можно отнести к Кондо-системам, в которых происходит ферромагнитное упорядочение. Высокотемпературный максимум на кривой $\rho(T)$ и довольно высокое значение коэффициента электронной теплоемкости γ скорее всего обусловлены влиянием кондовских процессов рассеяния, в силу чего соединение CeRuSi_2 следует рассматривать как Кондо-систему с температурой Кондо $T_K \sim T_2^{\text{max}} \sim 100$ К. Высокое значение T_K находится

в соответствии с относительно небольшой величиной коэффициента γ [1, 2]. Подавление кондовских флуктуаций спина, обусловленное ферромагнитным упорядочением, вызывает существенное уменьшение сопротивления, наблюдаемое как аномалия при $T_1^{\text{max}} \sim 11$ К (рис. 1). Следовательно, можно сделать вывод о том, что экспериментально полученные температурные зависимости удельной теплоемкости $C(T)$, магнитного момента $M(T)$ и удельного сопротивления $\rho(T)$ могут быть объяснены в рамках модели Кондо-решетки с ферромагнитным основным состоянием.

Список литературы

- [1] Stewart G. R. // *Rev. Mod. Phys.* 1984. V. 56. P. 755.
- [2] Мошалоков В. В., Брандт Н. Б. // *УФН.* 1986. V. 149. P. 585.
- [3] Steglich F., Aarts J., Bredl C. D., Lieke W., Meschede D., Franz W., Schafer M. // *Phys. Rev. Lett.* 1972. V. 43. P. 1892.
- [4] Cenozal K., Gladyshevskii R. E., Parthe E. // *Acta Cryst.* 1992. V. C48. P. 225.
- [5] Самарин Н. С. // Автореф. канд. дис. М., МГУ. 1991.
- [6] Continentino M. A., Japaissu G. M., Troper A. // *Phys. Rev.* 1989. V. 39. P. 9734.
- [7] Doniach S. // *Phys. B.* 1977. V. 91. P. 231.
- [8] Yashima Y. et al. // *Solid St. Commun.* 1982. V. 43. P. 193.
- [9] Boni P. et al. // *J. Phys. Soc. Japan.* 1987. V. 56. P. 3801.
- [10] Dalichaouch Y. et al. // *Phys. Rev. B.* 1989. V. 39. P. 2423.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова

Поступило в Редакцию
29 сентября 1992 г.