

УДК 543.737

ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА КОНДО-РЕШЕТОК $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$

Н. Б. Брандт, В. В. Моцалков, О. В. Петренко,
Ю. Н. Гринь, И. М. Грынив

В Кондо-решетках $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ ($X=0.5\div 1.3$) исследован эффект Холла и поперечное магнитосопротивление. Измерения проведены в интервале температур $T=1.7\div 150$ К и магнитных полей до 60 кЭ. Составы с $X=0.5\div 1$ являются магнитными Кондо-решетками, у которых температурный ход коэффициента Холла отслеживает температурную зависимость намагниченности, и при температуре перехода из парамагнитного состояния в ферромагнитное наблюдается острый минимум на кривых магнитосопротивления $\Delta\rho_{\perp}(T, H_0)/\rho(T, H=0)$. Соединения $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ с $X > 1$ представляют собой немагнитные Кондо-решетки, для которых аномальный рост коэффициента Холла при низких температурах хорошо описывается теорией Коулмана, Андерсона и Рамакришнана.

В работе изучается псевдобинарное соединение $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$, в котором в рамках одной и той же кристаллической структуры $\alpha\text{-ThSi}_2$ [1], варьируя концентрацию галлия X , удается сначала реализовать режим магнитной Кондо-решетки (МКР), а затем осуществить переход к немагнитному основному состоянию. У $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ при $X=0.2\div 0.1$ наблюдается электронный фазовый переход без изменения симметрии элементарной ячейки с увеличением объема $\Delta V/V \cong 3.1\%$ [1], подобный $\alpha\text{-}\gamma$ -переходу в металлическом церию. Соединения $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ ($X=0.1\div 1$) являются ферромагнитными ниже $T_M \cong 10$ К. Для составов $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ ($X=0.5\div 1.3$) магнитные свойства изменяются немонотонным образом. Вначале ($X=0.5\div 0.9$) T_M увеличивается до 12 К, а затем при $X \geq 0.9$ T_M резко уменьшается. Соединения с $X \geq 1.1$ являются немагнитными. Для выяснения природы перехода в немагнитный режим в настоящей работе были исследованы температурные и полевые зависимости сопротивления Холла $\rho_H(T, H)$ и поперечного магнитосопротивления $\Delta\rho_{\perp}(T, H_0)/\rho(T, H=0)$ в диапазоне концентраций $X=0.5\div 1.3$, температур $T=(1.7\div 150)$ К и магнитных полей до $H=60$ кЭ.

Составы $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ были синтезированы в Львовском государственном университете из компонентов следующей чистоты: Ce — 99.9, Si — 99.99, Ga — 99.99 %. Контроль состава проводился при помощи рентгенофазового анализа.

1. Эффект Холла в Кондо-решетках $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$

Полевые зависимости сопротивления Холла $\rho_H(H, T_0)$ при различных температурах T_0 у соединения $\text{CeSi}_{1.3}\text{Ga}_{0.7}$ представлены на рис. 1. Кривые $\rho_H(H, T_0)$ с почти линейных по магнитному полю при высоких температурах сменяются на существенно немонотонные зависимости при низких температурах. Ниже $T_M \cong 10$ К полевые зависимости $\rho_H(H, T_0 < T_M)$ (рис. 1) подобны кривым намагниченности $M(H)$ (см. вставку на рис. 2, кривая I). Сопротивление Холла в поле $H_0=40$ кЭ $\rho_H(T, H_0)$ для соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ ($X=0.7\div 1.3$) приведено на рис. 2. Отметим,

что величина $\rho_H(H_0, T)$ для соединения CeSi_2Ga принимает гигантское значение и в максимуме приблизительно равна $9.5 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$, что почти в 4 раза больше соответствующих значений для соединений с $X=0.7$ и 1.1 , в то время как величины намагниченностей $M(H)$ для тех же составов (см. вставку на рис. 2) в поле $H_0=40 \text{ кЭ}$ отличаются не более чем в 1.5 раза. Для полевых зависимостей сопротивления Холла $\rho_H(H, T_0)$ при $X \geq 1$ характерно слабое отклонение от линейных зависимостей. Такое изменение вида кривых $\rho_H(H, T_0)$ при варьировании состава X , а также уменьшение и затем исчезновение максимума на зависимостях $\rho_H(T, H_0=40 \text{ кЭ})$ при увеличении X (рис. 2) свидетельствует о существовании критической концентрации галлия $X_c \cong 1.1$, отделяющей режим МКР от режима, соответствующего случаю немагнитной Кондо-решетки. Анализ экспериментальных данных проведем отдельно для каждого режима.

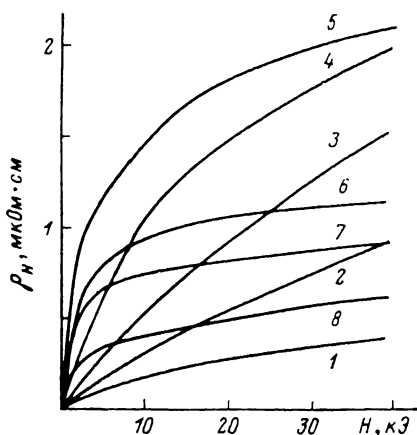


Рис. 1. Полевые зависимости сопротивления Холла $\rho_H(T_0, H)$ соединения $\text{CeSi}_{1.3}\text{Ga}_{0.7}$ при различных температурах.

$T_0, \text{ К}$: 1 — 81.8, 2 — 24.8, 3 — 17.3, 4 — 11.1, 5 — 9.6, 6 — 6.3, 7 — 4.2, 8 — 1.8.

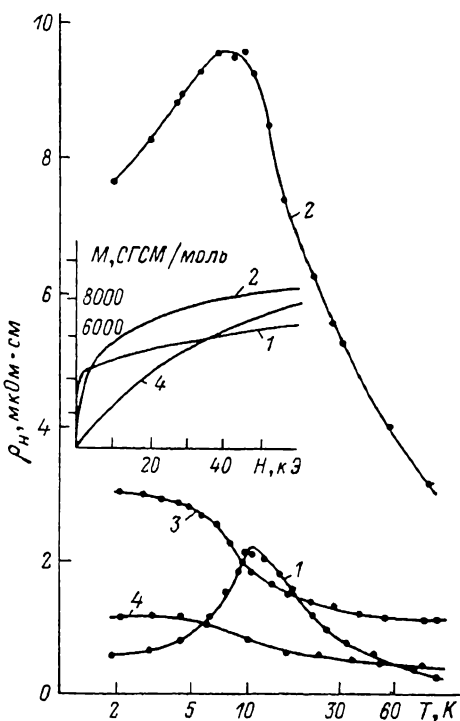


Рис. 2. Температурные зависимости сопротивления Холла $\rho_H(T, H_0)$ соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ в поле $H_0=40 \text{ кЭ}$ для различных X .

1 — 0.7, 2 — 1, 3 — 1.1, 4 — 1.3. На вставке представлены полевые зависимости намагниченности $M(H, T_0)$ составов $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ при температуре $T_0=4.2 \text{ К}$ для различных X : 1 — 0.7, 2 — 1, 4 — 1.3.

а) Выделение аномального и нормального вкладов в эффект Холла. Обратимся к обычным методам обработки сопротивления Холла в магнитных материалах [2]. В теории аномального эффекта Холла

$$\rho_H = \rho_0 + \rho_s = R_0(B + M(1 - N)) + R_s M, \quad (1)$$

где ρ_0 , R_0 — нормальные сопротивление и константа Холла, ρ_s и R_s — аномальные. Для исследуемых образцов в форме пластинок с толщиной $d \cong 0.2 \text{ мм}$ в перпендикулярном магнитном поле размагничивающий фактор $N \cong 1$ [3], и, следовательно, выражение (1) можно упростить.

В температурной области $T < T_M$ нормальная константа Холла определяется по тангенсу угла наклона кривой $\rho_H(H, T_0 < T_M)$, вышедшей на насыщение в больших полях. Такая оценка дала практически не изменяющиеся от температуры значения $R_0 \cong 1 \cdot 10^{-2}$ и $0.55 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3/\text{Кл}$ для соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ с $X=1$ и 0.7 соответственно. Однако такие

значения R_0 оказались много меньше констант Холла, определенных как $R_H(T) = \partial \rho_H(H, T) / \partial H$ при $H \rightarrow 0$.

Хорошее соответствие полевых зависимостей $\rho_H(H, T_0 > T_M)$ в парамагнитной области функции Бриллюэна

$$\rho_H = (\mu/V) R_s (\operatorname{ctgh} [\mu B / (k_B T)] - k_B T / (\mu B)) \quad (2)$$

(μ — эффективный магнитный момент атома Се, V — средний объем, приходящийся на атом, k_B — константа Больцмана) также указывает на то, что $\rho_0 \ll \rho_s \approx \rho_H$.

В парамагнитной области выражение (1) принимает следующий вид

$$R_H = R_0 + R_s C / (T + \Theta_p), \quad (3)$$

где C , Θ_p — константа и парамагнитная температура Кюри соответственно. С учетом того, что $\rho_0 \ll \rho_s$, были построены зависимости $1/R_H = f(T)$.

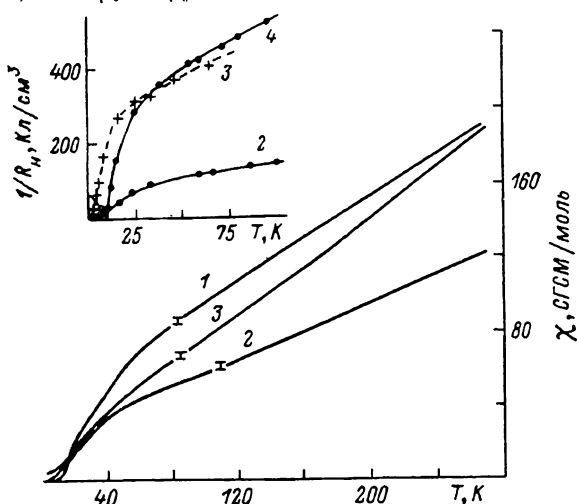


Рис. 3. Температурные зависимости обратной магнитной восприимчивости $\chi^{-1}(T)$ соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ для x .

1 — 0.5, 2 — 1, 3 — 1.1. На вставке — температурные зависимости обратной величины константы Холла $1/R_H(T)$ для x : 2 — 1, 3 — 1.1, 4 — 0.7.

Линейные участки в этих координатах наблюдались в температурном диапазоне выше 30 К (см. вставку на рис. 3). Оцененная по ним парамагнитная температура Кюри приблизительно совпадает со значениями $\Theta_p = (50 \div 70)$ К, полученным из кривых $\chi^{-1}(T)$ (рис. 3).

Такие значения Θ_p тем не менее отличаются от полученных в [1]. При $T \leq 20 \div 25$ К наблюдается существенное отклонение линейных участков на зависимостях $1/R_H(T)$. Экстраполяция $1/R_H(T)$ к нулю дает удовлетворительное согласие со значениями температур переходов в ферромагнитное состояние T_M , полученных из магнитных измерений.

б) Сравнение экспериментальных данных с теорией эффекта Холла в Кондо-решетках. Для немагнитных концентрированных Кондо-систем (CeCu_2Si_2 [4], CePd_3 [5] и др.) также характерно anomalous поведение константы Холла при низких температурах. К таким системам применима теоретическая модель Коулмана, Андерсона и Рамакришнана (КАР) несимметричного рассеяния (skew scattering) [6]. Представляет интерес использовать эту модель для интерпретации данных, полученных в настоящей работе. Прежде всего отметим, расчеты [6, 7] справедливы лишь для некогерентного режима $T > T_{\text{coh}}$, так как в модели несимметричного рассеяния рассматриваются невзаимодействующие магнитные моменты. Для цериевых систем получен следующий результат

$$R_H^i(T) = \varphi \bar{\chi} \rho, \quad (4)$$

где $R_H^i(T)$ — константа Холла несимметричного рассеяния. Ее можно получить на практике, вычитая остаточную величину несимметричного рассеяния на дефектах и примесях $R_H^{ост}(T)$. В формуле (4) $\bar{\chi}$ — нормированная восприимчивость: $\bar{\chi} = \chi/c$, $\rho = \rho_{аксн} - \rho_{ост} - \rho_{фош}$ — вклад в сопротивление от резонансного рассеяния по каналу с $l=3$. В отсутствие эффектов, связанных с влиянием кристаллического поля, фактор φ формулы (4) принимает следующие значения в различных температурных диапазонах [8]

$$1) T \gg T_K: \varphi = \varphi_1 = -16/7g\mu_B N_B^{-1} \cos \sigma_2 \sin \sigma_2, \quad (5)$$

$$2) T_{coh} < T \ll T_K: \varphi = \varphi_2 = -6/21\pi g\mu_B N_B^{-1} \frac{\sin(2\sigma_3 + \sigma_2) \sin \sigma_2}{\sin^2 \sigma_3}, \quad (6)$$

где T_K — температура Кондо, σ_2 и σ_3 — фазовые сдвиги в резонансном рассеянии по каналам с $l=2$ и 3. Сдвиг σ_3 определяется из правила сумм

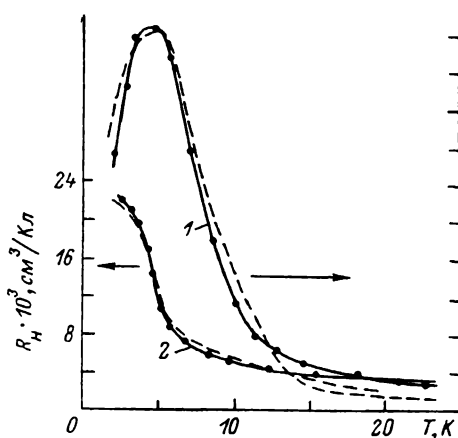


Рис. 4. Температурные зависимости констант Холла, полученных в эксперименте $R_H(T) = \partial \rho_H(H, T) / \partial H$ при $H \rightarrow 0$ и рассчитанных по теории КАР [8] для $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ для X.

1 — 1, 2 — 1.1. Штриховые кривые — теоретические.

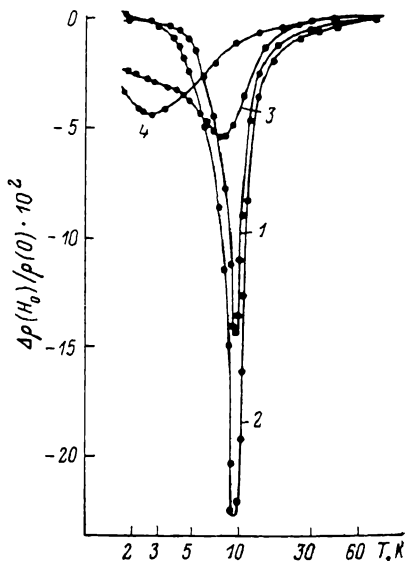


Рис. 5. Температурные зависимости магнитосопротивления $\Delta \rho_{\perp} \times (H_0, T) / \rho(H=0, T)$ в поле $H_0 = 40$ кЭ соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ для X.

1 — 0.5, 2 — 0.7, 3 — 1, 4 — 1.1.

Фриделя через число $4f$ -электронов, приходящихся на один ион церия, n_f , $\sigma_3 = \pi n_f / N$, ($N = 2J + 1$).

Прежде чем сравнивать экспериментальные данные $R_H(T)$ с расчетом по модели КАР, оценим температуру Кондо для исследуемых соединений.

В области температур $T = 1.7 \div 4.2$ К сопротивление соединений $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ с $X = 0.9 \div 1.2$ можно описать выражением: $\rho = \rho_0 + AT^2$, с коэффициентами $A \approx 0.26, 0.23, 0.18, 0.1$ (мкОм·см/К²) для $X = 0.9, 1, 1.1, 1.2$ соответственно. В свою очередь $T_K \sim A^{-1/2} \sim 35, 37, 41, 56$ К для $X = 0.9, 1, 1.1, 1.2$. Другой оценкой температуры T_K может быть величина $\Theta_n/2$ [9], где Θ_n — парамагнитная температура Кюри, полученная из измерений магнитной восприимчивости (рис. 3). Оцененная таким образом температура Кондо равна: $T_K \approx 28$ К ($X = 0.7$) и $T_K \approx 38$ К ($X = 1$). Приближенную величину T_K можно получить также из температуры минимума $T_{мин}$ на зависимости поперечного магнитосопротивления $\Delta \rho_{\perp}(T, H_0) / \rho(T, H=0)$ (рис. 5). Температура минимума $T_{мин} \sim T_{coh}$, T_{coh} в свою очередь пропорциональна T_K : $T_{coh} \sim T_K/10$ [4]. Необходимо

отметить, что такая оценка справедлива лишь в режиме НКР, поэтому дадим оценку только для состава $X=1.1$ $T_K \cong 50$ К.

Из приведенных выше оценок T_K можно сделать вывод об увеличении температуры Кондо с возрастанием концентрации галлия в диапазоне $X=0.9 \div 1.2$. Таким образом, для сравнения экспериментальных данных с расчетом по теории КАР в области температур до $20 \div 30$ К составов с $X=1$ и 1.1 можно воспользоваться выражением (6) для независимых Кондо-центров. Величины $R_H^{\text{от}}(T)$ слабо меняются с температурой и, согласно работам [5, 8], для большинства цериевых систем составляют $(0.2 \div 0.5) \cdot 10^{-3}$ см³/Кл. Справедливость неравенства $R_H^{\text{от}}(T) \ll R_H(T) = \partial \rho_H(T, H) / \partial H$ при $H \rightarrow 0$ подтверждается и оценкой, сделанной нами. Расчет по формуле (6) (рис. 4) неплохо согласуется с экспериментальными данными, полученными в настоящей работе. Совпадение расчетных и экспериментальных кривых существенно зависит от величины остаточного сопротивления $\rho_{\text{ост}}$. Наилучшее совпадение получается при $\rho_{\text{ост}}^{\text{теор}} \cong 50, 85, 18$ (мкОм·см) для составов с $X=0.7, 1, 1.1$ соответственно. Такие величины $\rho_{\text{ост}}^{\text{теор}}$ в пределах ошибки измерений совпадают со значениями $\rho_{\text{ост}}^{\text{эксп}}$, полученными экспериментально. Отклонение расчетной зависимости от экспериментальной при низких температурах связано с тем, что теория несимметричного рассеяния справедлива лишь в области температур $T > T_{\text{coh}}, T_M$. Расхождение в высокотемпературной области $T > 15$ К происходит, по-видимому, из-за влияния кристаллического поля, которое не учитывается в модели КАР [6].

Можно попытаться оценить фазовые сдвиги σ_2 и σ_3 из экспериментально полученных значений φ . Для соединений с $X=1$ и 1.1 величины φ_2 равны $0.84 \cdot 10^{-3}$ К/Т и $0.92 \cdot 10^{-2}$ К/Т соответственно. С понижением температуры от $T \gg T_K$ к $T_{\text{coh}} < T \ll T_K$ значение фазового сдвига σ_3 изменяется от величины $\pi/2$ к $\pi n_f/N$. Для дублетного основного состояния $N=2J+1=2$ (для Се: $J=5/2$) и, следовательно, $\sigma_3 = \pi/2$. Это означает, что во всем исследуемом температурном диапазоне знак $R_H^i(T)$ не изменяется и больше нуля. Если нет расщепления $(2J+1)$ -кратно вырожденного резонанса, то $\sigma_3 = \pi n_f/6$, и в этом случае возможна смена знака $R_H^i(T)$ при низких температурах. Как следует из экспериментальных данных, $R_H(T)$ всюду положительна (рис. 4), поэтому для вычисления σ_2 в формулу (6) подставим величину $\sigma_3 = \pi/2$. Зная значения φ_2 , получим $\sigma_2 \cong -0.15$ и -0.045 для $X=1.1$ и 1 соответственно. Такие малые значения σ_2 соответствуют изменению экранирования заряда $Z_2 \sim 0.46$ ($X=1.1$) и $Z_2 \sim 0.14$ ($X=1$). С учетом полученных значений σ_2 оценим φ_1 из формулы (5): φ_1 ($X=1.1$) $\cong 0.18$ К/Т и φ_1 ($X=1$) $\cong 0.054$ К/Т. Значения φ_1, σ_2, Z_2 близки к соответствующим величинам для соединений CeRu_2Si_2 и CeAl_3 [8]. Подставив значение φ_1 в формулу (4), получаем величину $R_H^i(T)$. Оценим $R_H^i(T)$, например, при температуре $T=100$ К. Наиболее подходящим для такой оценки является состав с $X=1$, для которого заведомо выполняется неравенство $T \gg T_K$. Для CeSiGa $R_H^{\text{теор}}(T=100 \text{ К}) \cong 17 \times 10^{-3}$ см³/Кл, что, учитывая значение $R_H^{\text{от}}(X=1) \cong 10 \cdot 10^{-3}$ см³/Кл, совпадает с величиной $R_H^{\text{всч}}(T=100 \text{ К}) \cong 7 \cdot 10^{-3}$ см³/Кл.

2. Отрицательное магнитосопротивление

Изменение вида зависимостей $\Delta \rho_{\perp}(H_0, T) / \rho(T, H=0)$ с увеличением X (рис. 5) соответствует изменению температуры T_M в исследуемой области концентраций и переходу к режиму НКР. С уменьшением температуры от $T \gg T_M$ к $T \leq T_M$ меняется вид полевых зависимостей $\Delta \rho_{\perp}(T_0, H)$ соединения $\text{CeSi}_{1.3}\text{Ga}_{0.7}$ (рис. 6) от почти линейных по полю к зависимостям, насыщающимся в больших полях, при $T \cong T_M$. В диапазоне $T < T_M$ на зависимостях $\Delta \rho_{\perp}(T_0 < T_M, H)$ появляется пологий минимум при $H=H_{\text{мин}}$. Величина $H_{\text{мин}}$ уменьшается с понижением температуры от $H_{\text{мин}} \cong 32$ кЭ при $T=4.2$ К до $H_{\text{мин}} \cong 18$ кЭ при $T=1.7$ К (см. вставку на рис. 6). Полевые зависимости магнитосопротивления для составов

с $X \geq 1.1$ во всем интервале исследуемых температур аналогичны кривым $\Delta \rho_{\perp}(T_0, H)$ для $X=0.7$ при $T_0 > T_M$. При $T < T_M$ устанавливается магнитный порядок, сильно подавляющий эффект Кондо, поэтому величины $|\Delta \rho_{\perp}(T_0 \leq T_M, H)|$ уменьшаются с понижением температуры. И, наконец, в области температур $T \ll T_M$ магнитные поля, достижимые в эксперименте, вместе с внутренним полем оказываются достаточными для существенного подавления эффекта Кондо и образования дальнего магнитного порядка, ведущего к появлению положительного вклада в магнитосопротивление. Вид зависимостей $\Delta \rho_{\perp}(H_0, T)/\rho(H=0, T)$ и $\Delta \rho_{\perp}(H, T_0)$ составов с $X \geq 1$ характерен для НКР с температурой установления когерентного режима $T_{\text{cob}} \cong T_{\text{MH}}$ на $\Delta \rho_{\perp}(H_0, T)/\rho(H=0, T)$.

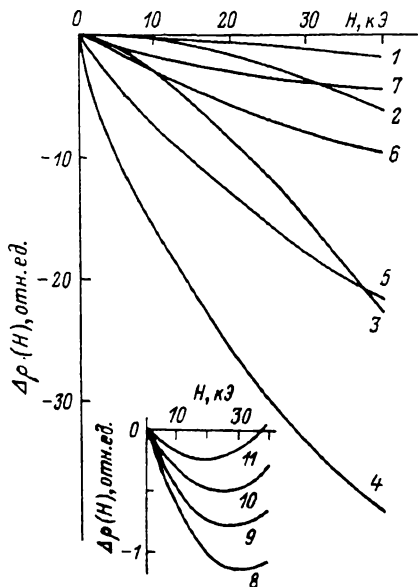


Рис. 6. Полевые зависимости магнитосопротивления $\Delta \rho_{\perp}(T_0, H)$ соединения $\text{CeSi}_{1.3}\text{Ga}_{0.7}$ при различных температурах.

T_0 , К: 1 — 24.5, 2 — 14.6, 3 — 11.1, 4 — 9.5, 5 — 8.7, 6 — 7.9, 7 — 6.2. На вставке показаны полевые зависимости магнитосопротивления при гелиевых температурах и T_0 , К: 8 — 4.2, 9 — 3.6, 10 — 3.1, 11 — 1.8.

Таким образом, при исследовании гальваномагнитных свойств в ряду $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ удалось не только проследить переход от режима МКР к режиму НКР при варьировании концентрации галлия, но также выявить ряд существенных особенностей переходной области, наиболее интересной из которых является гигантская величина сопротивления и константы Холла при $X=1$.

В заключение авторы выражают признательность С. А. Позигуну за помощь в эксперименте.

Л и т е р а т у р а

- [1] Mori H., Sato N., Satoh T. Sol. St. Commun., 1984, vol. 49, N 10, p. 955—958.
- [2] Вонсовский С. В. Магнетизм. М.: Наука, 1971. 570 с.
- [3] Ивановский В. И., Черникова Л. А. Физика магнитных явлений. М.: МГУ, 1981. 230 с.
- [4] Моцалков В. В., Брандт Н. Б. УФН, 1986, т. 149, № 4, с. 585—634.
- [5] Cattaneo E. J. Magn. Magn. Mat., 1985, vol. 47—48, p. 529—531.
- [6] Ramakrishnan T. V., Coleman P., Anderson P. W. J. Magn. Mat., 1985, vol. 47—48, p. 493—496.
- [7] Fert A., Pureur P., Hamzic A., Kappler J. P. Phys. Rev. B, 1985, vol. 32, N 10, p. 7003—7004.
- [8] Lapierre F., Haen P., Briggs A., Hamzic A., Fert A., Kappler J. P. J. Magn. Magn. Mat., 1987, vol. 63—64, p. 338—340.
- [9] Jashima H., Satoh T. Sol. St. Commun., 1982, vol. 43, N 3, p. 193—197.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова
Москва

Поступило в Редакцию
13 марта 1987 г.
В окончательной редакции
15 июня 1987 г.