

НОВАЯ КОНДО-РЕШЕТКА $CeSi_{2-x}Ga_x$

В.В.Моцалков, О.В.Петренко, М.К.Заялялюдинов,
И.Чирич

Замещение Si на Ga в $CeSi_{2-x}Ga_x$ приводит к подавлению магнитного основного состояния ионов Ce^{3+} и переходу при $x > 1$ к режиму немагнитной кондо-решетки с тяжелыми фермиевскими электронами, характеризующимся гигантским коэффициентом $\gamma \sim 1800$ мДж/(моль · К²).

Варьируя состав кондо-решеток (КР), можно менять соотношение между температурой Кондо T_K и температурой $T_{РККИ}$, характеризующей межцентровые взаимодействия спинов через осцилляции спиновой плотности, причем температуры T_K и $T_{РККИ}$ по-разному зависят от параметра обменного взаимодействия J : $T_K \sim E_F \exp(-1/(Jg(E_F)))$, где $g(E_F)$ – плотность электронных состояний на уровне Ферми; $T_{РККИ} \sim J^2/W$, W – ширина зоны. Эта возможность используется для прохода всего диапазона состояний между магнитной ($T_K \leq T_{РККИ}$) и немагнитной ($T_K \geq T_{РККИ}$) КР. Электронный вклад в теплоемкость γT для немагнитных кондо-решеток (НКР) тем выше, чем ближе данное соединение к критической области $J = J_c$, поскольку в НКР $\gamma \sim 1/T_K^{-1}$, а T_K уменьшается при подходе к $J = J_c$ справа (см. вставку на рис. 2).

Изложенный выше эмпирический принцип получения НКР с гигантским резонансом Абрикосова–Сула (РАС) $\gamma \sim g^R(E_F)$ положен в основу поиска новых систем с тяжелыми фермионами.

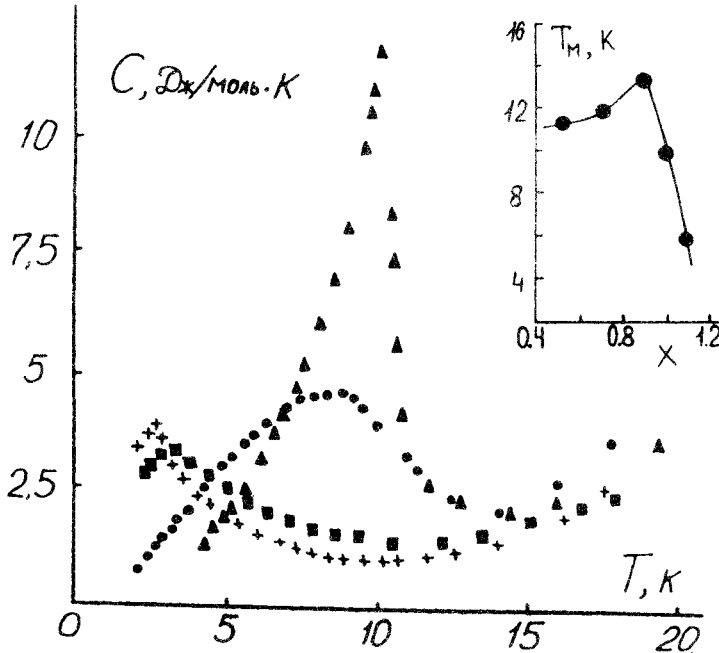


Рис. 1. Температурные зависимости удельной теплоемкости $C(T)$ для $CeSi_{2-x}Ga_x$ (Δ – $x=0,7$; \bullet – $x=1,0$; $+$ – $x=1,2$; \blacksquare – $x=1,3$). На вставке: концентрационная зависимость температуры магнитного упорядочения

В настоящей работе такой поиск осуществлен путем варьирования состава в системе $CeSi_{2-x}Ga_x$. На поликристаллических образцах с $x=0,7-1,3$ были проведены измерения температурных зависимостей удельной теплоемкости $C(T)$ и удельного сопротивления $\rho(T)$.

В системе $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ в однофазной области концентраций галлия $x > 0,5$ при $T \sim 10$ К происходит упорядочение ферромагнитного типа на редуцированных из-за эффекта Кондо локальных магнитных моментах Ce^{3+} . С увеличением концентрации галлия от $x = 0,9$ до $x = 1,3$ магнитный переход становится все более размытым, а температура магнитного перехода (вставка на рис. 1) и величина магнитного момента насыщения быстро уменьшаются.

Теплоемкость соединения $\text{CeSi}_{1,3}\text{Ga}_{0,7}$ (рис. 1) имеет при $T = 10,5$ К резкую аномалию, соответствующую ферромагнитному переходу. Пик $C(T)$ при $T = (8 \div 9)$ К для состава с $x = 1$ существенно уширен. Наличие магнитного перехода затрудняет корректное определение величины γ . Экстраполяция высокотемпературных участков $T > 10$ К в осях C/T от T^2 дает значение $\gamma_{extr} \sim 100$ мДж/(моль · К²), приблизительно одинаковое для всех составов с $x = (0,7 \div 1,3)$.

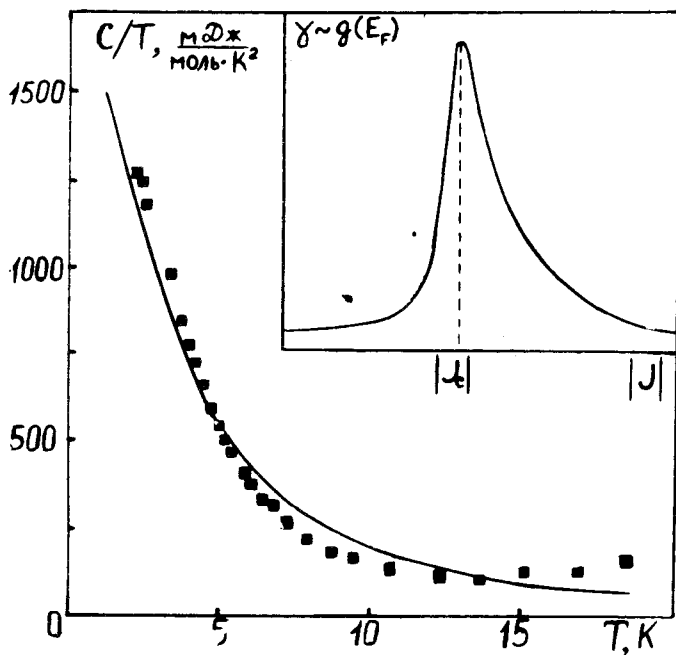


Рис. 2. Экспериментальная и рассчитанная по формуле 1 (сплошная линия) температурные зависимости C/T для НКР $\text{CeSi}_{0,7}\text{Ga}_{1,3}$. На вставке показана зависимость электронного коэффициента γ от параметра обменного взаимодействия J

Для $x = 1,2$ и $1,3$ зависимости $C(T)$ имеют вид, характерный для НКР с низкой температурой Кондо¹, в которых $T_K < \Delta_{CF}$, где Δ_{CF} величина расщепления f -уровня в кристаллическом поле. Если наимизшее, отщепленное кристаллическим полем состояние, является дублетом $j = 1/2$, то РАС располагается точно на уровне Ферми ($E^R = E_F$), поскольку степень заполнения резонанса при $T < T_K < \Delta_{CF}$ определяется кратностью вырождения наимизшего отщепленного состояния. Низкотемпературные максимумы на $C(T)$ не связаны с магнитным упорядочением, отсутствие которого показали измерения намагниченности до 1,5 К. Рассчитанная в модели Кокблина–Шриффера методом Вигмана–Эндрью теплоемкость⁴ по формуле:

$$C(T) = 2jk_B \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{g^R(E)(E/(2k_B T))^2}{\cosh^2(E/(2k_B T))} dE, \quad (1)$$

где форма РАС вблизи E_F $g^R(E)$ аппроксимируется лоренцианом, хорошо согласуется с экспериментальными кривыми $C(T)$ при $T_K^{теор} \approx 4$ К. На рис. 2 показаны расчетная и

экспериментальная для $x = 1,3$ зависимости в координатах $C/T(T)$. Значение параметра $\gamma(0)$, как видно из рисунка, составляет ~ 1800 мДж/(моль \cdot К²). Подставляя это значение $\gamma(0)$ в соотношение ⁵:

$$T_K^\gamma = \pi^2 R / (6\gamma) \quad (2),$$

получаем $T_K^\gamma \approx 3,3$ К, что почти совпадает с величиной $T_K^{\text{теор}}$, используемой в качестве параметра в формуле (1). Отметим также, что ранее для соединений с $x \geq 1$ была обнаружена зависимость коэффициента Холла $R_H(T)$, характерная для НКР ⁶.

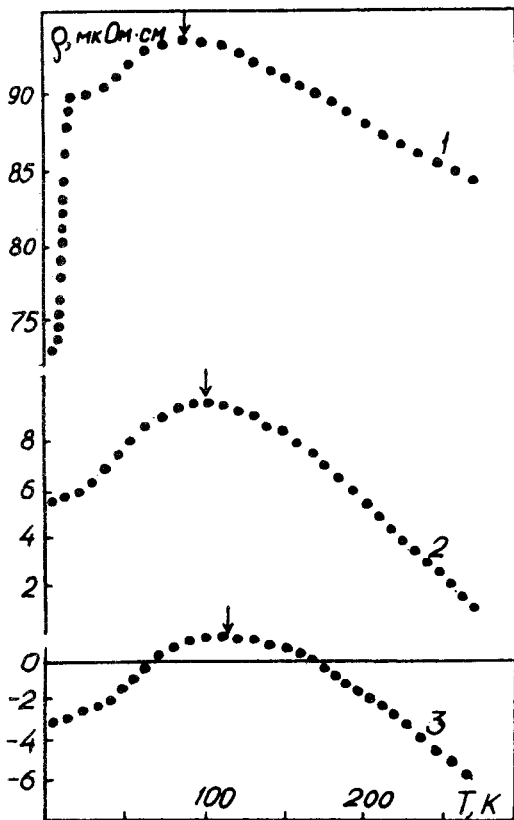


Рис. 3. Температурные зависимости магнитных вкладов в удельное сопротивление $\rho_M = \rho(\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x) - \rho(\text{LaSi}_{2-x}\text{Ga}_x)$ [1 - $x = 1$; 2 - $x = 1,2$; 3 - $x = 1,3$]. Температуры максимумов T_{max} указаны стрелками

Вычисление площади под кривой теплоемкости в осях $C/T(T)$ позволило дать оценку величины энтропии, связанной с низкотемпературной аномалией. Для всех исследованных составов приращение энтропии приблизительно одинаково и составляет $\Delta S \sim 4,69$ Дж/К $\approx R \ln 2$. Следовательно, магнитный уровень $j = 5/2$ ионов Ce^{3+} сильно расщеплен кристаллическим полем, причем наименее энергичным состоянием по энергии является дублет. Можно предположить, что общее расположение уровней аналогично расположению уровней в КР CeSi_x , имеющей такую же как и система $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ кристаллическую структуру, с $\Delta_{\text{CF1}} = 160$ К и $\Delta_{\text{CF2}} = 330$ К ⁷. В этом случае необходимо введение двух характерных температур Кондо: T_K^{high} и T_K^{low} ⁸:

$$T_K^h = (T_K^l \Delta_{\text{CF1}} \Delta_{\text{CF2}})^{1/3}. \quad (3)$$

Величину T_K^h можно оценить по положению максимумов на температурных зависимостях магнитного вклада $\rho_M(T)$, полученного при вычитании из удельного сопротивления $\text{CeSi}_{2-x}\text{Ga}_x$ удельного сопротивления лантанового соединения $\text{LaSi}_{2-x}\text{Ga}_x$. Значение температуры максимума T_{max} на кривых $\rho_M(T)$ увеличивается с возрастанием концентрации галлия (рис. 3), причем величина T_{max} согласуется с оценкой величины T_K^h , по-

лучаемой из γ_{extr} . Из формулы (3) находим, что $T_K^l \sim 10$ К, что близко к значениям T_K^u и $T_K^{теор}$. Таким образом, при увеличении концентрации галлия возрастает параметр обменного взаимодействия до J_c , и в ряду $CeSi_{2-x}Ga_x$ осуществляется переход в направлении от магнитной КР к НКР. Для магнитного состава с $x = 0,7$ $T_K^h \approx T_{R_{max}} \approx 93$ К, $T_K^l \approx 9$ К $< T_M$ и низкотемпературные кондовские флуктуации спина подавляются за счет магнитного упорядочения моментов Ce^{3+} . Для $CeSiGa$: $T_K^h \approx 106$ К, $T_K^l \approx 14$ К и наиболее точно выполняется соотношение $T_K^l \geq T_M$, что приводит к размытию магнитного перехода вследствие кондовских флуктуаций магнитного момента. Составы с $x = (1,2 \div 1,3)$ представляют собой НКР ($T_K^h \approx 119$ К, $T_K^l \approx 19$ К) с $\gamma \sim 1800$ мДж/(моль \cdot К²), в которых наличие тяжелых фермионов связано с образованием гигантского РАС с $E^R = E_F$.

Литература

1. Моцалков В.В., Брандт Н.Б. УФН, 1986, **149**, 585.
2. Mori H. et al. Sol. St. Comm., 1984, **49**, 955.
3. Моцалков В.В. и др. ФНТ, 1987, **13**, 1286.
4. Rajan V.T. Phys. Rev. Lett., 1983, **51**, 308.
5. Вигман П.Б. Письма в ЖЭТФ, 1980, **31**, 392.
6. Брандт Н.Б. и др. ФТТ, 1988, **30**, 336.
7. Sato N. et al. Sol. St. Comm., 1984, **51**, 139.
8. Hanzava K. et al. J. Magn. Magn. Mat. 1985, **47-48**, 357.

Московский государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
7 февраля 1990 г.