

ЭФФЕКТЫ "АНТИЭКРАНИРОВКИ" f -ЭЛЕКТРОНОВ В ТЯЖЕЛОФЕРМИОННОЙ СИСТЕМЕ CeAl_3 С МАГНИТНОЙ ПРИМЕСЬЮ

П.А.Алексеев, В.Н.Лазуков, И.П.Садиков, М.Н.Хлопкин,
Г.С.Бурханов, О.Д.Чистяков, Н.Б.Кольчугина

При исследовании нейтронных спектров и теплоемкости в $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ установлено, что большая ширина переходов между уровнями КЭП f -электронов в CeAl_3 определяется кондовским рассеянием электронов проводимости. Обнаружен эффект антиэкранировки КЭП CeAl_3 при увеличении обменного взаимодействия f - и s -электронов

При рассмотрении систем с тяжелыми фермионами (СТФ) обычно предполагается взаимонезависимость взаимодействий локализованных $4f$ -электронов с электронами проводимости (ЭП) (s - f -взаимодействие) и с кристаллическим электрическим полем (КЭП)¹. Однако, экспериментальные ширины переходов между уровнями КЭП $4f$ -электронов в СТФ² характеризуются большими (\approx несколько мэВ) величинами, сравнимыми с расщеплением основного мультиплета в КЭП, что, возможно, отражает изменения в электронной подсистеме, связанные с кондовским рассеянием (КР) и формированием ТФ.

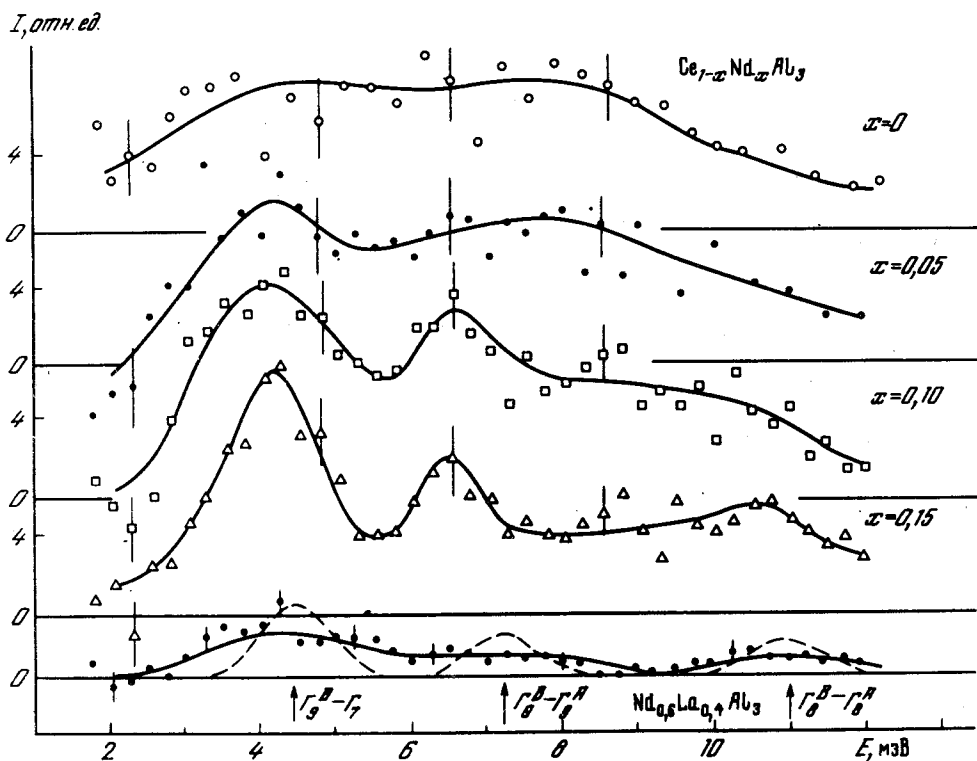


Рис. 1. Спектры НМРН при $T = 4,5 \text{ К}$ для $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ и $\text{Nd}_{0,6}\text{La}_{0,4}\text{Al}_3$ штриховая линия – ожидаемое сужение пиков Nd^{3+} из-за уменьшения степени беспорядка ближайшего окружения при уменьшении концентрации Nd

Экспериментальное исследование этого вопроса выполнено на СТФ CeAl_3 ($\gamma \approx 1,6 \frac{\text{Дж}}{\text{моль} \cdot \text{К}^2}$)

когда вводились магнитные ионы неодима для изменения s - f -взаимодействия. Ионы Nd в КЭП NdAl_3 ³ имеют ненулевую проекцию полного момента J_z при $T \rightarrow 0 \text{ К}$ (маг-

нитный момент основного состояния $\sim 1 \mu_B$). По известной технологии ² был приготовлен ряд практически однофазных образцов $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ ($x = 0; 0,05; 0,10; 0,15$) и образец $Nd_{0,6}La_{0,4}Al_3$ с постоянными решетки близкими к значениям для $x = 0,10$. Измерения неупругого магнитного рассеяния нейтронов (НМРН) на этих соединениях проводились на реакторе ИР-8 (ИАЭ им. И.В.Курчатова) методом " $Q = \text{const}$ " в интервале температур $T = 4, 5 \dots 40$ К. Также измерена теплоемкость $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ в магнитных полях до 8 Тл при $T = 2 \dots 20$ К.

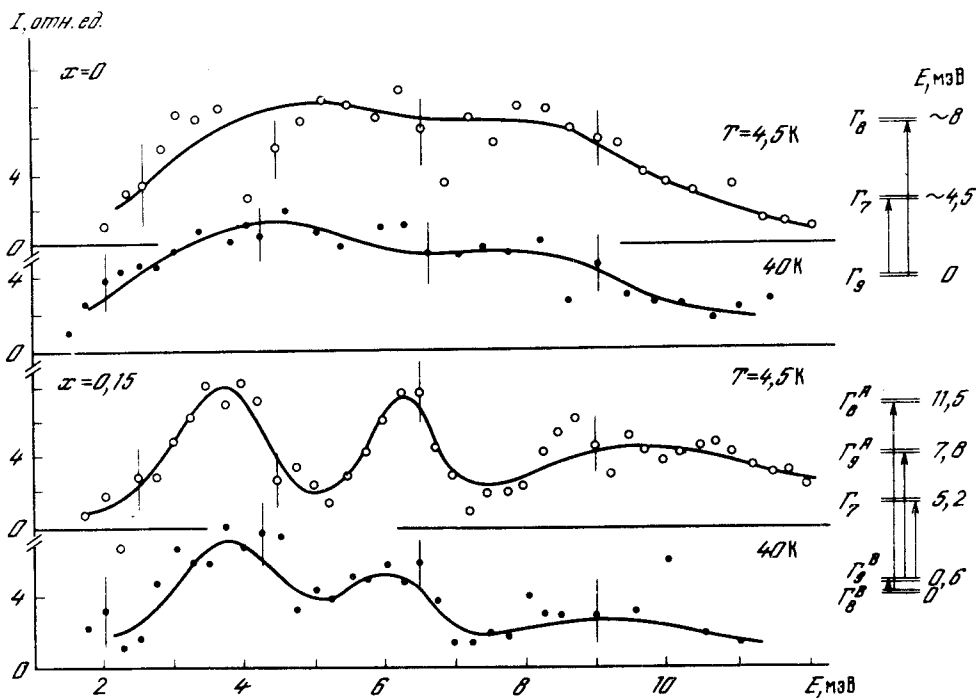


Рис. 2. Температурная зависимость спектров НМРН для $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ ($x = 0; 0,15$). Рассеяние на Nd исключено. Справа схемы уровней КЭП $4f$ -электронов: вверху Ce^{3+} в $CeAl_3$ ²; внизу Nd^{3+} в $Nd_{0,6}La_{0,4}Al_3$ (скейлинг по параметрам решетки от данных для $NdAl_3$ ³). Стрелками отмечены наблюдаемые переходы

Полученные спектры НМРН для $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ и магнитное рассеяние для $Nd_{0,6}La_{0,4}Al_3$, приведенное к рассеянию на образце с 10% содержанием неодима (с учетом зависимости поглощения нейтронов от концентрации неодима), представлены на рис. 1. Спектр $CeAl_3$ демонстрирует наличие двух широких пиков с энергиями $\approx 4,5$ и 8 мэВ, что согласуется с ². Примесь неодима приводит к сильной трансформации спектра, заключающейся в возникновении на фоне спектра типа $CeAl_3$ двух узких пиков с меньшими, чем в $CeAl_3$, энергиями. Интенсивность этих пиков увеличивается с ростом x и при $x = 0,15$ составляет основную часть ($\sim 80\%$) НМРН. Повышение температуры до 40 К приводит к некоторому уменьшению интенсивности переходов для всех образцов при всех x (рис. 2), что согласуется с характером изменения заселенности основного состояния Ce^{3+} ². Оценка сверху интенсивности пиков от рассеяния на неодиме дает величину, меньшую в несколько раз, чем наблюдаемая для $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ (рис. 1). Положение пиков от переходов между уровнями КЭП ^{3+}Nd ($E = 4,5$ мэВ, $E = 7,2$ мэВ) в $Nd_{0,6}La_{0,4}Al_3$ не совпадает с положением пиков в спектрах $Ce_{1-x}Nd_xAl_3$ ($x \neq 0$), но согласуется со скейлингом по параметрам решетки уровней КЭП $NdAl_3$ (рис. 2). Для ^{3+}Nd в $Nd_{0,6}La_{0,4}Al_3$ при повышении температуры до 40 К из-за увеличения заселенности уровня, с которого наблюдаются переходы (Γ_6^B на рис. 2), наблюдается увеличение интенсивности этих переходов. Эти особенности

позволяют сделать вывод о соответствии острых пиков в спектрах рассеянию нейтронов на ионах церия. Их возникновение на фоне широкого спектра CeAl_3 и увеличение интенсивности с ростом x можно рассматривать как результат суперпозиции двух видов спектральной функции для церия, что позволяет предположить наличие конечных областей влияния ионов неодима на церий. Поскольку такая трансформация НМРН не наблюдалась в экспериментах с замещением Ce на La в CeAl_3 , то можно предположить, что именно введение ионов с магнитным моментом, а не разбавление, обуславливает наблюдаемые эффекты перехода от спектра, характерного для СТФ, к спектру, характерному для обычной f -электронной системы.

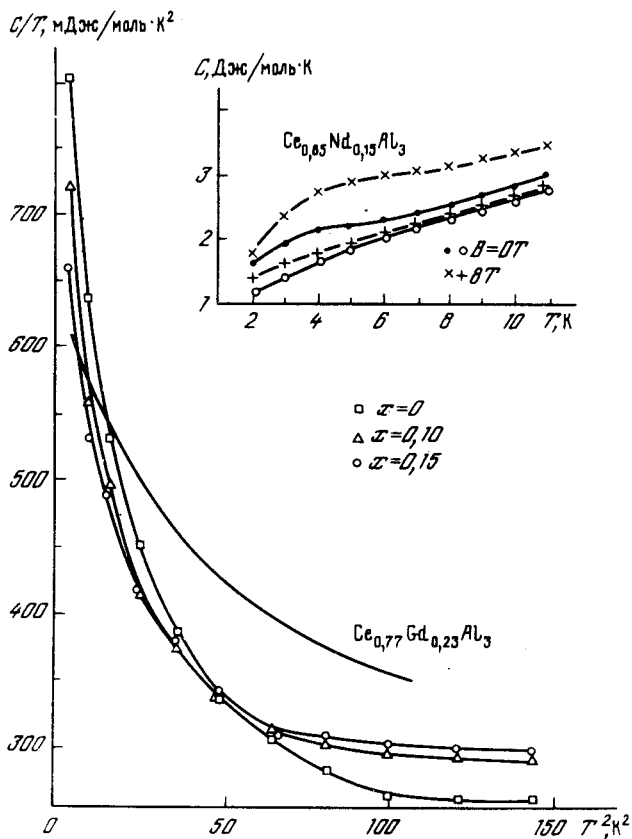


Рис. 3. Магнитная составляющая теплоемкости образцов $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ ($x=0; 0,10; 0,15$) и $\text{Ce}_{0,77}\text{Gd}_{0,23}\text{Al}_3$ ⁴. Вклады от Nd исключены. Результаты отнормированы на образец с $x=0$. Вверху представлена теплоемкость образцов до (●, ×) и после (○, +) учета вклада от уровней КЭП Nd^{3+} (см. рис. 2) в поле 0 Тл и 8 Тл

Измерения теплоемкости $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ (рис. 3) показали заметное уменьшение γ при $T < 7\text{ K}$ (до 20% при $T=2\text{ K}$). Влияние магнитного поля на теплоемкость при этих температурах в основном связано с расщеплением и сдвигом уровней 3^+Nd . На этом же рисунке представлены данные⁴ по теплоемкости $\text{Ce}_{0,77}\text{Gd}_{0,23}\text{Al}_3$. Авторы⁴, кроме радикального уменьшения γ обнаружили возникновение состояния типа спинового стекла, т. е. переход от кондо-режима к режиму магнитного иона. Исходя из подобия измеренных зависимостей теплоемкости с учетом оценки величин магнитных моментов, можно предположить, что воздействие Nd на CeAl_3 аналогично влиянию Gd. Таким образом уменьшение ширины

($\Gamma \sim 1/\tau$) неупругих пиков в НМРН на $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ можно рассматривать как увеличение времени релаксации (τ) f -электронов за счет уменьшения кондо-рассеяния. То есть изменения в теплоемкости и спектрах НМРН CeAl_3 при введении магнитного иона (Gd, Nd) указывают на возникновение "антиэкранировки" (декомпенсации) магнитного момента.

Другая характерная особенность НМРН на $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Al}_3$ заключается в уменьшении расщепления в КЭП уровней $4f$ -электронов ионов Ce одновременно с уменьшением Γ при введении Nd . (Впервые обратный эффект — рост ширины при увеличении энергии перехода, был экспериментально обнаружен в $\text{Ce}_{0,9-x}\text{La}_x\text{Th}_{0,1}$ ⁵ при переходе от кондо-режима к режиму промежуточной валентности, который связывают с увеличением $s-f$ -взаимодействия¹). Однако такой характер взаимосвязи ширины и энергии переходов не согласуется с представлениями релаксационной модели⁶, в которой уменьшение $s-f$ -взаимодействия приводит к сужению уровней и некоторому увеличению наблюдаемого расщепления КЭП. Возможным объяснением такого расхождения является то, что КЭП и обменное взаимодействие f -электронов с ЭП в модели⁶ рассматривались как независимые.

Авторы глубоко признательны А.Ю.Румянцеву, А.С.Иванову, Н.Л.Митрофанову за интерес к работе и содействие при подготовке и проведении экспериментов, В.Г.Орлову за сотрудничество и дискуссии.

Литература

1. Моцалков В.В., Брандт Н.Б. УФН, 1986, 149, 585.
2. Алексеев П.А., Садиков И.П. и др. ФТТ, 1976, 18, 2509.
3. Alekseev P.A., Goremychkin E.A. et al. Phys. Stat. Sol. (b), 1983, 119, 651.
4. Edelstein A.S., Holtz R.L. et al. JMMM, 1987, 63 — 64, 335.
5. Grier B.H., Parks R.D., Shapiro S.M. et al. Phys. Rev. B, 1981, 24, 6242.
6. Lopes L.C., Coqblin B. JMMM, 1985, 47 — 48, 133.

Институт атомной энергии им. И.В.Курчатова

Институт металлургии им. А.А.Байкова
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
17 октября 1988 г.