

АНОМАЛИИ ТЕРМОЭДС В СОЕДИНЕНИЯХ С ТЯЖЕЛЫМИ ФЕРМИОНАМИ CeB_6 , CeAl_3 И $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$

М. И. Игнатов^a, А. В. Богач^a, Г. С. Бурханов^b, В. В. Глушков^a, С. В. Демишиев^a,*

А. В. Кузнецов^c, О. Д. Чистяков^b, Н. Ю. Шицевалова^d, Н. Е. Случанко^a

^a Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^b Институт металлургии и материаловедения им. А. А. Байкова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^c Московский инженерно-физический институт (технический университет)
115409, Москва, Россия

^d Институт проблем материаловедения Национальной академии наук Украины
03680, Киев, Украина

В широком диапазоне температур (2–300 К) выполнены прецизионные измерения коэффициента термоэдс для соединений с тяжелыми фермионами CeB_6 , CeAl_3 , CeCu_6 и твердых растворов замещения $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($x = 0.1, 0.2$). Для всех исследованных соединений на основе церия обнаружена необычная логарифмическая асимптотика температурной зависимости коэффициента термоэдс $S \propto -\ln T$. В случае гексаборида церия показано, что такое поведение $S(T)$ сопровождается появлением асимптотики слабой локализации проводимости $\sigma(T) \propto T^{0.39}$ и изменением парамагнитной восприимчивости $\chi(T)$ и эффективной массы носителей заряда $m_{eff}(T)$ по степенному закону, $\chi(T)$, $m_{eff}(T) \propto T^{-0.8}$, в интервале температур 10–80 К и отвечает перенормировке плотности электронных состояний вблизи E_F . Отмеченное поведение коэффициента термоэдс в CeB_6 и других интерметаллидах на основе Ce связывается с формированием при низких температурах многочастичных состояний — тяжелых фермионов в металлической матрице исследуемых соединений.

PACS: 72.15.Jf, 75.20.Hr

1. ВВЕДЕНИЕ

Измерения термоэлектрических характеристик являются одним из эффективных методов исследования спектров квазичастичных возбуждений в металлических системах [1]. В то же время существуют реальные сложности при интерпретации результатов экспериментальных исследований коэффициента термоэдс в случае соединений с тяжелыми фермионами на основе Ce и Yb. Предсказания в рамках общепринятого подхода к описанию поведения транспортных характеристик, основанного на применении модели кондо-решетки [2, 3], в ряде случаев противоречат наблюдаемым в эксперименте тем-

пературным зависимостям сопротивления, коэффициентов Холла и термоэдс указанных соединений с сильными электронными корреляциями [4, 5].

В настоящей работе выполнены измерения коэффициента термоэдс $S(T)$ для ряда соединений с тяжелыми фермионами на основе церия в диапазоне температур 2–300 К. В качестве модельных объектов выбраны монокристаллические образцы высокого качества CeB_6 и поликристаллические образцы наиболее известных соединений с тяжелыми фермионами и квантовым критическим поведением CeAl_3 и $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($x = 0, 0.1, 0.2$). Для прецизионных измерений коэффициента термоэдс использовалась четырехконтактная схема с пошаговым изменением температурного градиента на образце [6].

*E-mail: ignatov@lt.gpi.ru

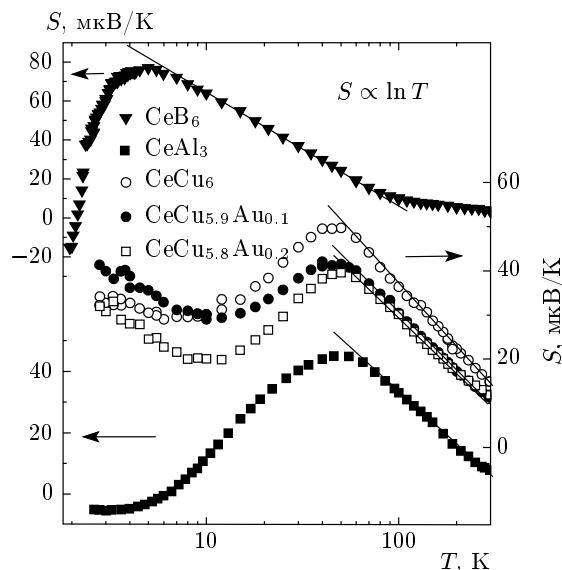


Рис. 1. Температурные зависимости коэффициента термоэдс в соединениях с тяжелыми фермионами CeB_6 , CeAl_3 и $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($x = 0, 0.1, 0.2$)

Температурные зависимости коэффициента термоэдс соединений с тяжелыми фермионами CeB_6 , CeAl_3 , CeCu_6 и твердых растворов замещения $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($x = 0.1, 0.2$) представлены на рис. 1. В области промежуточных температур термоэдс исследуемых соединений характеризуется широким положительным максимумом с амплитудой приблизительно от 40–50 мкВ/К для CeAl_3 и $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ до приблизительно 80 мкВ/К для CeB_6 . Положения отмеченной особенности коэффициента термоэдс (рис. 1) для магнитной тяжелофермионной системы CeB_6 ($T_{max} \approx 5$ К) и немагнитных соединений CeAl_3 и $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($T_{max} \approx 50$ К) существенно различаются. При этом во всех исследуемых соединениях в области температур $T > T_{max}$ обнаружено необычное логарифмическое поведение коэффициента термоэдс $S \propto -\ln T$ (рис. 1), которое не согласуется с предсказаниями модели кондо-решетки для термоэлектрических характеристик соединений на основе церия [2, 3].

Для выяснения природы необычного логарифмического роста при понижении температуры коэффициента термоэдс классической концентрированной кондо-системы CeB_6 [7, 8] в работе проведено сопоставление зависимости $S(T)$ с данными измерений удельного сопротивления $\rho(T)$ и магнитной восприимчивости $\chi(T)$ (рис. 2), а также коэффициента Холла $R_H(T)$ (рис. 3) во всем температурном диапазоне 2–300 К. Оказалось, что в интервале температур

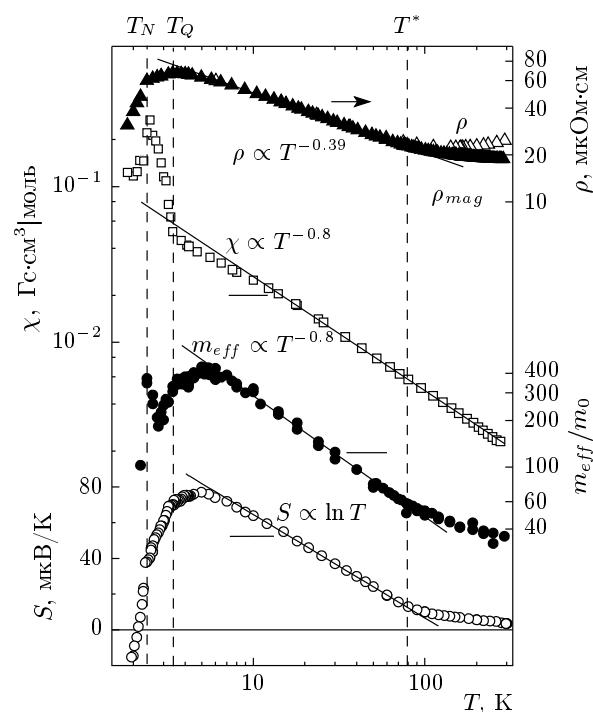


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления ρ , коэффициента термоэдс S , магнитной восприимчивости χ и эффективной массы носителей заряда m_{eff} [10] в CeB_6 . T_N и T_Q — температуры перехода соответственно в антиферромагнитное и антиферроквадрупольное состояния [7, 8]

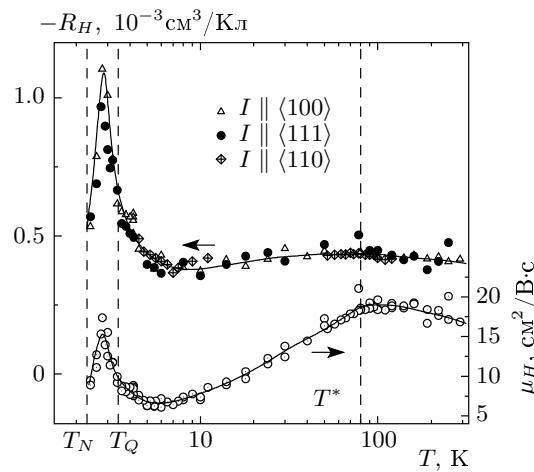


Рис. 3. Температурные зависимости коэффициента Холла R_H , измеренные для различных направлений измерительного тока I через образец, и холловской подвижности $\mu(T) = R_H(T)/\rho(T)$ в CeB_6

$7 \text{ K} < T < T^* \approx 80 \text{ K}$ удельное сопротивление также не описывается предсказываемой в рамках модели кондо-решетки логарифмической зависимостью вида $\rho \propto -\ln T$ [7]. При этом удельное сопротивление ρ и магнитный вклад

$$\rho_{mag} = \rho(\text{CeB}_6) - \rho(\text{LaB}_6)$$

(см. рис. 2) характеризуются степенным поведением $\rho \propto T^{-1/\eta}$, отвечающим режиму слабой локализации носителей заряда с критическим индексом $1/\eta = 0.39 \pm 0.02$ [9]. Наблюдаемое изменение режима зарядового транспорта при $T^* \approx 80 \text{ K}$ сопровождается существенным (примерно в 3 раза) уменьшением холловской подвижности носителей заряда

$$\mu_H(T) = \frac{R_H(T)}{\rho(T)},$$

отмеченным при понижении температуры в интервале $7 \text{ K} < T < T^*$ (рис. 3). Подчеркнем, что отклонение от степенной зависимости $\rho \propto T^{-1/\eta}$ (рис. 2) и увеличение холловской подвижности μ_H (рис. 3), наблюдавшиеся в CeB₆ при понижении температуры в интервале $T_Q < T < 7 \text{ K}$ ($T_Q = 3.3 \text{ K}$ — температура перехода в антиферроквадрупольное состояние [7]), по-видимому, следует связать с переходом к проводимости по полосе многочастичных состояний, формирующейся в окрестности энергии Ферми в редкоземельных соединениях с тяжелыми фермионами (см., например, [10, 11]).

В рамках подхода, предложенного в работах [10, 11], с учетом температурной зависимости полуширины квазиупругого пика в спектрах магнитного рассеяния нейтронов $\Gamma/2$ [12] по данным о холловской подвижности $\mu_H(T)$ была выполнена оценка эффективной массы носителей заряда

$$m_{eff}(T) = \frac{2e\hbar}{\Gamma\mu_H(T)}.$$

Анализ кривой $m_{eff}(T)$ (рис. 2) показывает, что уменьшение подвижности носителей заряда в области температур $7 \text{ K} < T < 80 \text{ K}$, отвечающее логарифмическому росту термоэдс, связано со степенным поведением $m_{eff} \propto T^{-\alpha}$ ($\alpha = 0.8$) (рис. 2). Наблюдавшийся рост эффективной массы до значений $m_{eff}(10 \text{ K}) \approx 400 m_0$ (m_0 — масса свободного электрона) сопровождается изменением паулиевской параметрической восприимчивости по аналогичному степенному закону $\chi(T) \propto T^{-\alpha}$ ($\alpha = 0.8$) (рис. 2) и, по-видимому, свидетельствует в пользу существенной перенормировки спектра квазичастичных возбуждений в CeB₆ в указанном температурном интервале. При этом сопоставление оценки радиуса локализации

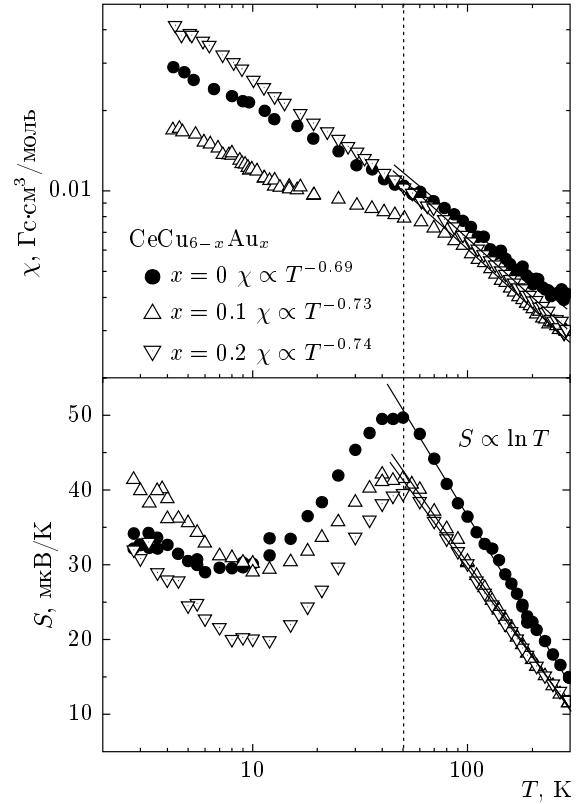


Рис. 4. Температурные зависимости коэффициента термоэдс S и магнитной восприимчивости χ в $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($x = 0, 0.1, 0.2$)

тяжелых фермионов $a^* \approx 5.5 \text{ \AA}$ [11] с параметром элементарной ячейки $a \approx 4.2 \text{ \AA}$ в CeB₆ позволяет сделать заключение о локальном характере многочастичных состояний (спиновых поляронов), формирующихся в режиме быстрых спиновых флуктуаций в окрестности Се-центров в матрице гексаборида церия.

Переходя к анализу термоэдс в немагнитных цериевых соединениях, отметим, что сопоставление термоэлектрических и магнитных свойств для твердых растворов CeCu_{6-x}Au_x также выявило корреляцию температурных интервалов логарифмического роста коэффициента термоэдс $S(T) \propto -\ln T$ и степенного изменения магнитной восприимчивости $\chi(T) \propto T^{-\alpha}$ (рис. 4). При этом значения показателя степени α ($\alpha = 0.69, 0.73$ и 0.74 для $x = 0, 0.1$ и 0.2 , соответственно) оказываются сравнимы с величиной аналогичного параметра для CeB₆, что, по-видимому, свидетельствует в пользу общей природы низкотемпературных аномалий транспортных и магнитных свойств в тяжелофермионных соединениях на основе церия.

В заключение отметим, что логарифмическая температурная зависимость коэффициента термоэдс

$$S(T) = - \left(\frac{3k_B}{2e} \right) \ln T + \text{const}$$

обычно используется для описания термоэлектрических свойств невырожденных полупроводников *p*- или *n*-типа [12]. В такой ситуации логарифмический рост термоэдс $S(T) \propto -\ln T$, обнаруженный в исследуемых соединениях на основе церия при $T > T_{max}$ (рис. 1), по-видимому, следует связать с формированием тяжелых носителей заряда (спиновых поляронов) вследствие перенормировки плотности состояний в окрестности энергии Ферми, которая, в свою очередь, определяет и степенную температурную зависимость паулиевской парамагнитной восприимчивости $N(\varepsilon_F) \sim \chi(T) \propto T^{-\alpha}$ (рис. 2, 3). При этом изменение логарифмической асимптотики $S(T) \propto -\ln T$ на характерное для металлов поведение коэффициента термоэдс, наблюдаемое при понижении температуры в диапазоне $T < T_{max}$ (рис. 1), может указывать на переход к когерентному режиму зарядового транспорта по сформировавшейся зоне тяжелофермионных состояний — спиновых поляронов ($m_{eff}(\text{CeB}_6) \approx 300\text{--}400m_0$ (рис. 2), $m_{eff}(\text{CeAl}_3) \approx 45m_0$ [13], $m_{eff}(\text{CeCu}_6) \approx 135\text{--}150m_0$ [14]). Следует также отметить, что значения коэффициентов, определяющих логарифмическое изменение термоэдс в CeB_6 , CeAl_3 и $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ ($\approx 40\text{--}60$ мкВ/К), оказываются существенно меньше значения параметра $3k_B/2e \approx 130$ мкВ/К для невырожденного полупроводника [12]. На наш взгляд, отмеченное несоответствие может отражать понижение эффективной размерности при переходе к зарядовому транспорту по зоне спин-поляронных комплексов малого радиуса ($a^*(\text{CeB}_6) \approx 5.4 \text{ \AA}$ [11], $a^*(\text{CeAl}_3) \approx 16 \text{ \AA}$ [13], $a^*(\text{CeCu}_6) \approx 14 \text{ \AA}$ [14]). Однако для окончательного выяснения природы аномальных свойств тяжелофермионных соединений на основе церия требуется проведение комплексных исследований транспорта

и магнитных свойств в температурном интервале, отвечающем логарифмическому поведению коэффициента термоэдс.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 04-02-16721) и INTAS (грант № 03-51-3036), а также программы ОФН РАН «Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах» и Российского Фонда содействия отечественной науке.

ЛИТЕРАТУРА

1. P. M. Chaikin, in *Organic Superconductivity*, Plenum Press, New York (1991), p. 101.
2. V. Zlatic et al., Phys. Rev. B **48**, 16152 (1993).
3. K. Fischer, Z. Phys. B **76**, 315 (1989).
4. Н. Е. Случанко и др., ЖЭТФ **125**, 906 (2004).
5. M. I. Ignatov et al., Physica B **363**, 252 (2005).
6. Н. Е. Случанко и др., ЖЭТФ **113**, 339 (1998).
7. N. Sato et al., J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 3967 (1984).
8. K. Hanzawa and T. Kasuya, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 1809 (1984).
9. W. L. McMillan, Phys. Rev. B **24**, 2739 (1981).
10. N. E. Sluchanko et al., Physica B **378**–**380**, 773 (2006).
11. D. N. Sluchanko et al., J. Magn. Magn. Mater. **300**, e288 (2006).
12. S. Horn, F. Steglich, M. Loewenhaupt et al., Z. Phys. B **42**, 125 (1981).
13. Н. Е. Случанко и др., ЖЭТФ **131**, 133 (2007).
14. Б. М. Аскеров, *Электронные явления в полупроводниках*, Наука, Москва (1985), с. 150.