

Эта работа поддерживается Российским фондом фундаментальных исследований (грант 940205713-а) и Международным научным фондом (грант M78000).

1. J.G.Sereni, *Low-Temperature Behavior of Cerium Compounds*, In: *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, Eds. K.A.Gschneider and L.Eyring, Elsevier Science Publishers B.V., ch.98 (1991) p.1.
2. A.V.Gribanov, Yu.D.Seropenin, and O.I.Bodak, *J. of Alloys and Compounds* **204**, L9-L11 (1994).
3. P.Villars and L.D.Calvert, *Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases*, ASM International, Material Park, OH, 1985, p.1509.
4. С.В.Вонсовский, *Магнетизм*. М.: Наука, 1971.
5. M.T.Hutchings, In: *Solid State Physics, Advances in Research and Applications*, Ed. F.Seitz and D.Turnbell, **16**, 227 (1964).

оценку для μ_{clast} при низких температурах:

$$\chi(T) \approx \frac{2N_A}{8} \frac{\mu_{clast}^2}{3k_B(T-\theta)}, \quad (2)$$

где N_A – число Авогадро, 8 – число ионов в кластере, μ_{clast} – эффективный магнитный момент кластера из ионов Ce2.

Из сопоставления с экспериментом получим $\mu_{clast} \approx 17\mu_B$ (при 10 K).

Можно предложить другую оценку максимальной величины μ_{clast} , полагая, что энергия обменного взаимодействия в кластере больше расщепления в кристаллическом поле. Максимальный эффективный момент (в μ_B) кластера из 8 ионов церия с $J = 5/2$ равен величине $\sqrt{J_{max}(J_{max} + 1)} \approx 20,5$, где $J_{max} = 8 \cdot 5/2 = 20$.

Таким образом, согласно нашему предположению, в соединении $Ce_3Pd_{20}Si_6$ ионы церия в позиции Ce2 образуют кластеры и определяют низкополевую особенность кривой $M(H)$, а ионы церия в позиции Ce1 отвечают за поведение $M(H)$ в высоких полях.

Для обоснования предлагаемой кластерной модели нами был проведен расчет расщепления уровней основного мультиплета ионов Ce^{3+} для позиций Ce1 и Ce2 в рамках теории кристаллического поля [5]. Данные расчета указывают на то, что в соединении $Ce_3Pd_{20}Si_6$ атомы Ce в позициях Ce1 и Ce2 обладают существенно различными магнитными свойствами. Хотя кристаллические структуры соединений $Ce_3Pd_{20}Si_6$ и $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ относятся к одному типу, локальное окружение Ce1 меняется при замене Ge на Si [2]. Ближайшим соседом Ce1 для $Ce_3Pd_{20}Si_6$ является Si, в то время как в $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ им будет Pd. Локальное окружение Ce2 одинаково в обоих соединениях.

Проведенный нами расчет показал, что магнитный момент Ce в позициях Ce2 заметно больше, чем в позициях Ce1 и их отношение (μ_2/μ_1) возрастает с уменьшением температуры (рис.4). Отсюда следует, что при низких температурах магнитные взаимодействия типа Ce2–Ce2 внутри кластера из 8 атомов Ce2 могут быть сильнее, чем взаимодействия типа Ce2–Ce1 и Ce1–Ce1. При условии ферромагнитного характера взаимодействий Ce2–Ce2, когда основное состояние кластера обладает максимальным магнитным моментом, модель "кластерного магнетизма" сможет объяснить наблюдаемый рост при низких температурах эффективного магнитного момента в расчете на один атом церия (см. формулу (2)). В предложенной модели, как видно из рис.4, рассматриваемый эффект должен проявиться в $Ce_3Pd_{20}Si_6$ при более высокой температуре, чем в $Ce_3Pd_{20}Ge_6$, что не противоречит наблюдениям. Отсутствие гистерезиса на кривых намагничивания также свидетельствует в пользу "кластерной" модели.

В заключение мы отметим, что соединение $Ce_3Pd_{20}Ge(Si)_6$ проявляет свойство, характерное для кондо-систем: логарифмический рост удельного электрического сопротивления при понижении температуры. Наличие двух неэквивалентных позиций Ce позволяет выдвинуть предположение, что в данном соединении можно рассматривать две цериевые подсистемы, одна из которых (Ce1) определяет кондо-свойства (логарифмический рост сопротивления), а другая (Ce2) – отвечает за необычный магнетизм при низких температурах.

Авторы выражают искреннюю благодарность Ю.Д.Серопегину, А.В.Грибанову и М.В.Рагульской за предоставленные образцы и полезное обсуждение полученных результатов.

где μ_{eff} в общем случае является функцией температуры, N – число парамагнитных центров, θ – парамагнитная температура Кюри. Из экспериментальных зависимостей, представленных на рис.2, следует, что при температурах 10–100К для $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ μ_{eff} близко к значению $2,5\mu_B$. Для соединения $Ce_3Pd_{20}Si_6$ величина $\mu_{eff}(T)$ растет с понижением температуры от $1,7\mu_B$ (100К) до $5\mu_B$ (10К). Этот рост нельзя объяснить ни "примешиванием" первого возбужденного мультиплета ($J = 7/2$), ни расщеплением в кристаллическом поле, так как для обоих механизмов характерно уменьшение $\mu_{eff}(T)$ с понижением температуры [4].

Низкополевую нелинейную особенность зависимости $M(H)$ для $Ce_3Pd_{20}Si_6$ можно объяснить наличием "кластерного магнетизма", обусловленного ионами Ce_2 , образующими куб (см. ниже). На вставке рис.3 представлен результат вычитания из зависимости $M(H)$ для $Ce_3Pd_{20}Si_6$ ее линейной части. Видно, что при $T = 5K$ имеет место насыщение в полях $H_{sat} \sim 1500 \div 2000$ Э. Оценка магнитного момента кластера с помощью соотношения $2\mu_{eff}H_{sat} \sim k_B T$ дает величину $\sim 24 \div 18\mu_B$.

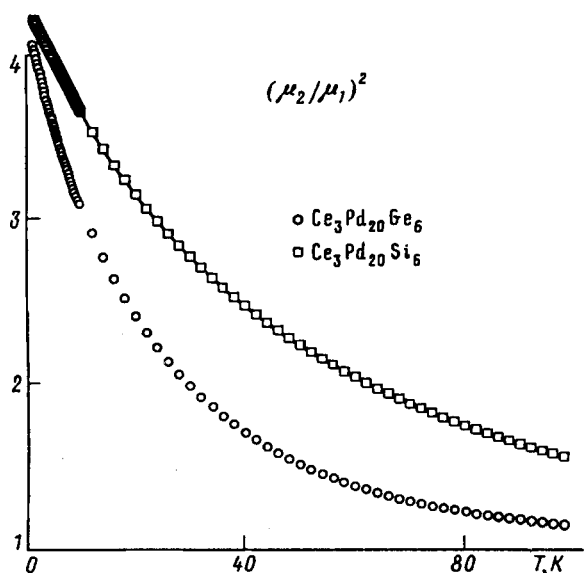


Рис.4. Температурные зависимости квадрата отношения эффективных магнитных моментов для двух неэквивалентных позиций Се в соединениях $Ce_3Pd_{20}Si_6$ (\square) и $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ (\circ). Расчет проведен в рамках теории кристаллического поля

В рамках предложенной модели изменение наклона кривой $\chi^{-1}(T)$ для $Ce_3Pd_{20}Si_6$ (рис.2) связано с увеличением эффективного магнитного момента кластера при понижении температуры. Как показал расчет в рамках модели кристаллического поля (см. ниже), при высоких температурах эффективные магнитные моменты $Ce1$ и $Ce2$ сравнимы (рис.4) и обе подсистемы дают сопоставимый вклад в магнитную восприимчивость. При низких температурах (ниже 50К) отношение μ_{Ce2}/μ_{Ce1} увеличивается (рис.4) и вследствие этого, по-видимому, $Ce2$ образуют магнитные кластеры. Поэтому при низких температурах доминирующий вклад в восприимчивость должны давать кластеры из Ce_2 : $\chi(T) \approx \chi_{clast}(T)$. Так как на элементарную ячейку приходится 3 атома церия [1] (один $Ce1$ и два $Ce2$), а кластеры состоят из 8 атомов Ce_2 , то считая вклад $Ce1$ в восприимчивость при низких температурах пренебрежимо малым по сравнению с вкладом кластеров из Ce_2 , можно получить следующую

и полевые зависимости магнитного момента в интервале температур 4–300 К и в магнитных полях до 5кЭ. Удельное электрическое сопротивление $\rho(T)$ образцов при понижении температуры от 300 К монотонно уменьшается вплоть до температуры T_{min} (которая равна 50 К и 10 К соответственно для $Ce_3Pd_{20}Si_6$ и $Ce_3Pd_{20}Ge_6$, рис.1). При температурах ниже T_{min} для обоих соединений наблюдается участок логарифмического роста, который в пределах точности эксперимента (3%) можно описать зависимостями

$$\begin{aligned} \rho(T) &= 130 - 18 \ln T, & Ce_3Pd_{20}Si_6, & T < 40 \text{ К}; \\ \rho(T) &= 38 - 0,5 \ln T, & Ce_3Pd_{20}Ge_6, & T < 8 \text{ К} \end{aligned}$$

(ρ имеет размерность $\mu\Omega$, T – температура).

Температурная зависимость обратной восприимчивости $\chi^{-1}(T)$ показана на рис.2. Видно, что $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ можно рассматривать как кюри–вейссовский парамагнетик, а нелинейная зависимость $\chi^{-1}(T)$ в $Ce_3Pd_{20}Si_6$ требует дополнительного рассмотрения и будет обсуждаться ниже.

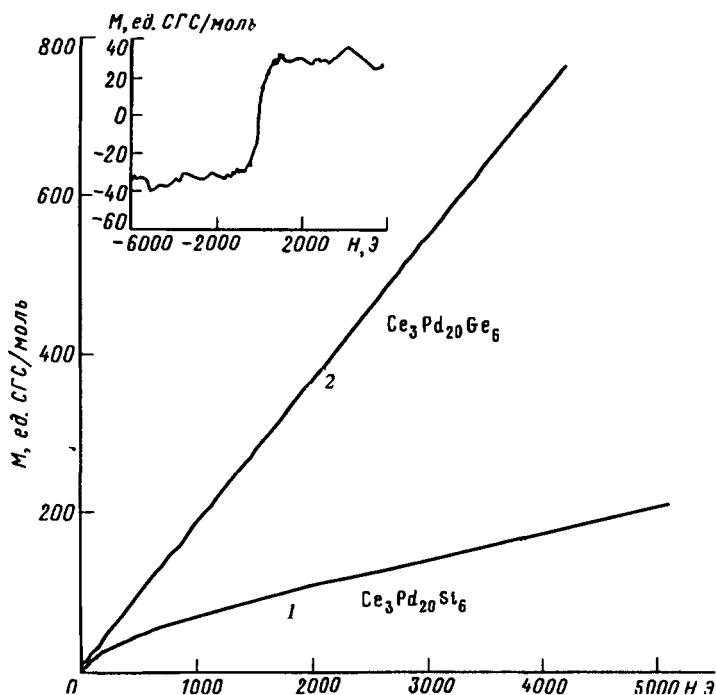


Рис.3. Кривые намагниченности поликристаллов 1 – $Ce_3Pd_{20}Si_6$, 2 – $Ce_3Pd_{20}Ge_6$. На вставке – нелинейная часть кривой намагниченности для $Ce_3Pd_{20}Si_6$

Зависимость магнитного момента от приложенного магнитного поля приведена на рис.3. Видна существенная разница в полевых зависимостях магнитного момента соединений $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ и $Ce_3Pd_{20}Si_6$: если в первом магнитный момент растет линейно с ростом поля, то во втором в малых полях (менее 1500 Э) наблюдается его нелинейный рост.

Для анализа экспериментальных температурных зависимостей $\chi^{-1}(T)$ мы использовали эффективный магнитный момент, получаемый из закона Кюри–Вейсса:

$$\chi^{-1}(T) = \frac{H}{M(T)} = \frac{3k_B(T - \theta)}{N\mu_{eff}^2}, \quad (1)$$

Ce₃Pd₂₀Ge(Si)₆ – НОВАЯ КОНДО-СИСТЕМА?

**Ю.П.Гайдуков, Ю.А.Кокшаров, Ю.В.Кочетков, Й.Миркович,
В.Н.Никифоров**

*Московский государственный университет им.М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 января 1995 г.

В работе исследовались недавно синтезированные новые соединения Ce₃Pd₂₀Ge₆, Ce₃Pd₂₀Si₆, обладающие неизвестным ранее типом кристаллической сверхструктуры. Измерялись температурные зависимости удельного электросопротивления, а также температурные и полевые зависимости магнитного момента в интервале температур 4–300 К и в магнитных полях до 5 кЭ. Обнаружен логарифмический рост электросопротивления при низких температурах, что указывает на возможность реализации кондо-эффекта в данной системе.

Интерметаллиды на основе церия обнаруживают большое разнообразие свойств, таких как сверхпроводимость, тяжелофермионные свойства, магнитное упорядочение [1]. Соединение Ce₃Pd₂₀Ge(Si)₆ было синтезировано в 1994 г. авторами работы [2]. Рентгеноструктурный анализ показал, что это интерметаллическое соединение имеет неизвестную ранее кристаллическую сверхструктуру [3] по отношению к кристаллической решетке типа C₁₂₃C₆ (пространственная группа *Fm3m*). Наличие в решетке Ce₃Pd₂₀Ge(Si)₆ двух неэквивалентных позиций [2] атомов Ce (Ce1 и Ce2) с различным локальным окружением, которое меняется при замене Ge на Si, существование в кристаллической структуре куба, образованного 8 атомами Ce2, внутри которого отсутствуют позиции Ce1, – все это позволяло надеяться на то, что исследуемое соединение может обладать нетривиальными физическими свойствами.

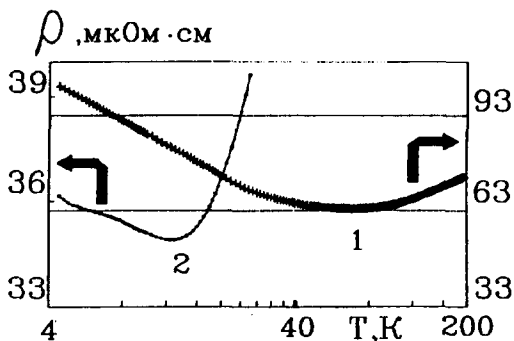


Рис.1

Рис.1. Температурные зависимости удельного электрического сопротивления поликристаллов 1 – Ce₃Pd₂₀Si₆, 2 – Ce₃Pd₂₀Ge₆ (2)

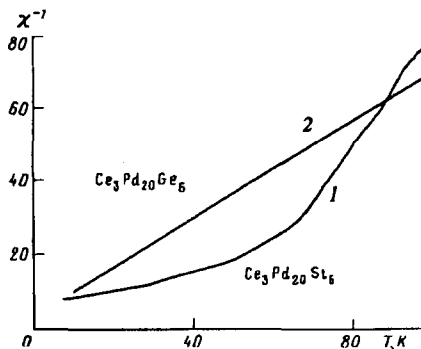


Рис.2

Рис.2. Температурные зависимости статической магнитной восприимчивости поликристаллов 1 – Ce₃Pd₂₀Si₆, 2 – Ce₃Pd₂₀Ge₆. Измерения проводились в поле 200 Э

В настоящей работе на поликристаллических образцах измерялись температурные зависимости удельного электросопротивления, а также температурные