

**ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИОНОВ  $\text{Pr}^{3+}$   
С КРИСТАЛЛИЧЕСКИМ ЭЛЕКТРИЧЕСКИМ ПОЛЕМ И ЭЛЕКТРОНАМИ  
ПРОВОДИМОСТИ В КОНДО-СИСТЕМЕ  $\text{CeAl}_3$**

*П.А.Алексеев, И.П.Садиков, В.П.Колядин, А.В.Мирмельштейн,  
Н.Б.Кольчугина, Е.М.Савицкий*

В экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов на кондо-решетке  $\text{Ce}_{0.97}\text{Pr}_{0.03}\text{Al}_3$  обнаружен четкий пик магнитного рассеяния от ионов Pr. Результаты согласуются с представлением о "залипании" на ионах Ce части электронов проводимости, отвечающих за аномальные свойства  $\text{CeAl}_3$ .

$\text{CeAl}_3$  выделяется среди соединений типа РЗМ  $\text{Al}_3$  (РЗМ = Ce, Pr, Nd) рядом аномальных физических свойств, в частности гигантской величиной электронного коэффициента в теплоемкости  $\gamma \cong 1600 \text{ мДж/моль} \cdot \text{К}^2$ , тогда как  $\gamma(\text{LaAl}_3) \cong \gamma(\text{PrAl}_3) \cong 5 \text{ мДж/моль} \cdot \text{К}^2$ . Полного понимания природы аномалий пока нет, однако недавние экспериментальные работы<sup>2,3</sup> позволяют предположить, что  $\text{CeAl}_3$  – концентрированная кондо-система (кондо-решетка).

С помощью неупругого рассеяния нейтронов (НРН) установлено качественное различие между  $\text{PrAl}_3$ <sup>4</sup> и  $\text{CeAl}_3$ <sup>5</sup>: если для  $\text{PrAl}_3$  ширины пиков, соответствующих переходам между расщепленными в кристаллическом электрическом поле (КЭП) уровнями иона  $\text{Pr}^{3+}$  невелики ( $5 \div 15 \text{ К}$ ), то для  $\text{CeAl}_3$  они больше, и сопоставимы с энергией переходов между расщепленными в КЭП уровнями иона  $\text{Ce}^{3+}$  (50 К). Ширина пика в спектре НРН, соответствующего магнитодипольному переходу между расщепленными в КЭП уровнями иона РЗМ в парамагнетике обусловлена, в основном, релаксационным взаимодействием  $f$ -электронов с электронами проводимости и существенно меньше 50 К. Характерным параметром, определяющим ширину пика при  $T \rightarrow 0$ <sup>6</sup>, служит произведение  $(N(0)J_{s-f})^2$ , здесь  $N(0)$  – плотность состояний  $s$ -электронов на поверхности Ферми,  $J_{s-f}$  – константа обменного взаимодействия между  $s$ - и  $f$ -электронами. Размытие пиков в  $\text{CeAl}_3$  указывает на наличие дополнительного канала взаимодействия ионов Ce с окружением, конкурирующего с КЭП.

Для понимания природы необычных свойств  $\text{CeAl}_3$ , в особенности огромной величины  $\gamma$ , которую обычно связывают с высокой плотностью состояний на поверхности Ферми, интересно исследовать влияние этого фактора на спектр НРН от ионов другого РЗМ, введенных в подрешетку Ce в качестве невзаимодействующих друг с другом примесей замещения. Эти ионы, демонстрирующие обычный релаксационный механизм уширения в изоструктурных  $\text{CeAl}_3$  соединениях, могут служить „индикаторами” особенностей электронного спектра в  $\text{CeAl}_3$ . В качестве таких „индикаторов” удобно выбрать ионы Pr, а концентрированная система  $\text{PrAl}_3$  и примесная  $\text{La}(\text{Pr})\text{Al}_3$  ( $\text{LaAl}_3$  – диамагнитная матрица) могут быть использованы как „опорные”, поскольку не обладают аномалиями электронных свойств.

Однородные (с точностью  $3 \div 5 \%$ ) образцы  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$ ,  $\text{La}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$ ,  $\text{LaAl}_3$ ,  $\text{PrAl}_3$ ,  $\text{CeAl}_3$  были выплавлены в дуговой печи с последующим гомогенизирующим отжигом. Измерения спектров НРН проводились на трехосном кристаллическом спектрометре ИФМУНЦ АН СССР методом „постоянного Q” с фиксированной начальной энергией нейтронов  $E_0 = 22,1 \text{ мэВ}$  ( $\Delta E_0 = 1,6 \text{ мэВ}$ ) и „сбросом” их энергии при рассеянии. Измерения на соединениях  $\text{LaAl}_3$  и  $\text{CeAl}_3$  при  $T = 5 \text{ К}$  и  $T = 80 \text{ К}$  показали отсутствие немоноктонностей в спектре НРН в диапазоне передач энергии  $0 < \epsilon < 5 \text{ мэВ}$ . Спектр соединения  $\text{PrAl}_3$  демонстрирует четко выраженный пик, имеющий наибольшую интенсивность при  $T = 5 \text{ К}$  с максимумом вблизи  $\epsilon = 4,5 \text{ мэВ}$ . В соответствии с результатами работы<sup>4</sup> этот пик отвечает переходу  $\Gamma_1 - \Gamma_6$  ( $\Gamma_1$  – основное состояние иона  $\text{Pr}^{3+}$  в КЭП  $\text{PrAl}_3$ ). Спектры образцов  $\text{La}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  и  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  содержат также по одному пику (рис.1, а, б) с энергиями максимумов  $\epsilon_1 = 3,3 \pm 0,1 \text{ мэВ}$  и  $\epsilon_2 = 4,3 \pm 0,1 \text{ мэВ}$  соответственно. Ширины обоих пиков примерно одинаковы ( $\sim 1,5 \text{ мэВ}$ ) и определяются функцией разрешения прибора, т.е. их собственная ширина  $< 0,3 \text{ мэВ}$ <sup>1)</sup>.

Рассмотрим взаимодействие иона  $\text{Pr}^{3+}$  с КЭП в этих соединениях. Параметры гексагональной решетки для них лежат в интервале значений, соответствующих  $\text{LaAl}_3$  и  $\text{PrAl}_3$ , причем для  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  постоянные решетки „а” и „с” близки к значениям изоструктурного интерметаллида из ряда  $\text{Pr}_x\text{La}_{1-x}\text{Al}_3$  с  $x = 0,80$ <sup>4</sup> (рис.2, а). В спектре НРН для систем  $\text{Pr}_x\text{La}_{1-x}\text{Al}_3$  при гелиевых температурах<sup>4</sup> может наблюдаться только один переход,  $\Gamma_1 - \Gamma_6$ , поэтому пики на рис.1, а, б, наиболее вероятно соответствуют именно этому переходу. На

1) Оценка релаксационной ширины перехода  $\Gamma_1 - \Gamma_6$ <sup>7</sup> дает величину  $\sim 30 \text{ мкэВ}$  при гелиевых температурах.

рис.2, б экспериментальные значения  $\epsilon_0, \epsilon_1, \epsilon_2$  (размещенные в соответствии со значениями параметров решетки исследуемых образцов) сопоставляются с концентрационной зависимостью  $\epsilon_{\Gamma_1-\Gamma_6}$  для систем  $\text{Pr}_x\text{La}_{1-x}\text{Al}_3$  (сплошная линия). Видно, что  $\epsilon_1$  согласуется с экстраполированными значениями для  $x=0,03$ , а  $\epsilon_2$  согласуется со значениями  $\epsilon_{\Gamma_1-\Gamma_6}$  для соединения  $\text{Pr}_{0,8}\text{La}_{0,2}\text{Al}_3$ .

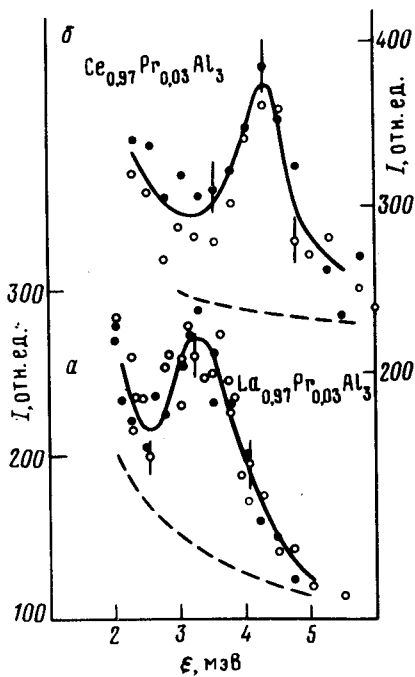


Рис. 1. Спектры неупругого рассеяния нейтронов на образцах  $\text{La}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  (а) и  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  (б) при температурах образца 5 К (кружки) и 12 К (точки). Переданный импульс нейтронов  $Q = 1,4 \text{ \AA}^{-1}$ . Пунктир — вклад в рассеяние от  $\text{LaAl}_3$  (а) и  $\text{CeAl}_3$  (б)

Совпадение эффектов КЭП для  $\text{Pr}^{3+}$  в  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  и в структурном аналоге  $\text{Pr}_{0,2}\text{La}_{0,8}\text{Al}_3$ , а также малые собственные ширины пиков НРН как в  $\text{La}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$ , так и в  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$ , казалось бы, означают, что между  $\text{Ce}(\text{Pr})\text{Al}_3$  и  $\text{La}(\text{Pr})\text{Al}_3$  нет существенных отличий в электронном строении. Но такой вывод находится в противоречии с данными по теплоемкости, магнитной восприимчивости для  $\text{CeAl}_3$ . Действительно, в соответствии с модельными представлениями <sup>6,7</sup> аномальная величина  $\gamma$  и, соответственно,  $N(0)$  должна, при исследовании НРН на примесных ионах  $\text{Pr}$  в  $\text{CeAl}_3$ , выразиться в сильном уширении ( $\approx 10$  мэВ) и заметном ( $\sim 1$  мэВ) сдвиге в сторону упругой линии положения пика в НРН от перехода  $\Gamma_1 - \Gamma_6$ ; т.е. практически этот пик в  $\text{Pr}_x\text{Ce}_{1-x}\text{Al}_3$  должен исчезнуть.

Это противоречие между фактическим и ожидаемым результатом можно снять, если предположить, что ионы  $\text{Pr}$  не взаимодействуют с электронами, ответственными за аномальную плотность состояний на поверхности Ферми в  $\text{CeAl}_3$ . Такое предположение согласуется с представлением о формировании узкого резонанса на  $\epsilon_F$  в кондо-решетках при  $T < T_K$  ( $T_K$  — температура Кондо), связанного с „запиранием” части электронов проводимости на рассеивающих центрах (ионах  $\text{Ce}$ ) <sup>8</sup>. Эти „тяжелые” фермионы с  $m^* \gg m_e$  определяют аномальные термодинамические, кинетические, магнитные свойства кондо-решетки, но будучи „связанными” вблизи ионов  $\text{Ce}$ , не взаимодействуют с примесными ионами  $\text{Pr}$  и, следовательно, не дают вклада ни в потенциал КЭП, ни в релаксационное уширение пиков спектра НРН на ионах  $\text{Pr}$ . Более того, если это так, то вызванное „запиранием” уменьшение кон-

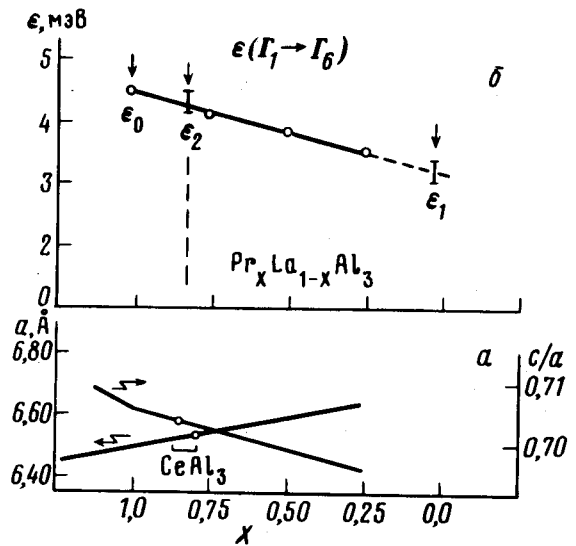


Рис. 2. Концентрационные зависимости параметров решетки (а) и энергии перехода  $\Gamma_1 - \Gamma_6$  (б) в соединениях  $\text{Pr}_x\text{La}_{1-x}\text{Al}_3$  <sup>4</sup>. Линии проведены по экспериментальным точкам. Стрелками выделены значения  $\epsilon_{\Gamma_1-\Gamma_6}$  для  $\text{PrAl}_3$  ( $\epsilon_0$ ),  $\text{La}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  ( $\epsilon_1$ ) и  $\text{Ce}_{0,97}\text{Pr}_{0,03}\text{Al}_3$  ( $\epsilon_2$ ), полученные в настоящей работе

центрации обычных „легких” электронов проводимости, в принципе, может приводить к сужению пика в НРН на  $\text{Pr}^{3+}$  в  $\text{Ce}(\text{Pr})\text{Al}_3$  по отношению к  $\text{La}(\text{Pr})\text{Al}_3$  при  $T < T_K$  ( $T_K$  для  $\text{CeAl}_3$   $25 \div 7$  К).

Однако, экспериментальное исследование этого вопроса требует существенного улучшения разрешения спектрометра.

Авторы искренне благодарны Н.А.Черношлекову и Б.Н.Гошицкому за поддержку работы, В.Н.Перегудову, В.И.Бобровскому за полезные обсуждения, О.Д.Чистякову, И.А.Сергеевой, В.П.Соменковой за помощь в изготовлении и анализе образцов.

#### Литература

1. *Andres K., Graebner J.E., Ott H.R.* Phys. Rev. Lett., 1975, 35, 1779.
2. *Murani A.P., Knorr K., Buschow K.H.J.* Solid State Comm., 1980, 36, 523.
3. *Loewenhaupt M., Holland-Moritz E.* J. Appl. Phys., 1979, 50, 7456.
4. *Alekseev P.A., Sadikov I.P., Shitikov Yu.L., Markova I.A., Chistyakov D.D., Savitsky E.M., Kjemis J.K.* Phys. Stat. Solidi (b), 1982, 114, 161.
5. *Алексеев П.А., Садиков И.П., Маркова И.А., Савицкий Е.М., Терехова В.Ф., Чистяков О.Д.* ФТТ, 1976, 18, 2509.
6. *Becker K.W., Fulde P., Keller J.* Z. Phys. B, 1977, 28, 9.
7. *Перегудов В.Н., Афанасьев А.М., Горбаченко В.Д.* ЖЭТФ, 1982, 83, 1831.
8. *Алиев Ф.Г., Брандт Н.Б., Мошалков В.В., Лутцев Р.В., Чудинов С.М.* ФТТ, 1983, 25, 2413.

Поступила в редакцию  
16 апреля 1984 г.