

©1994

## ОСОБЕННОСТИ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ ИНТЕРМЕТАЛЛИДОВ Yb-(Pt,Pd)-(GeSi)

*В.Н.Никифоров, М.В.Ковачикова, А.А.Велиховский,  
Ю.В.Кочетков, Й.Миркович, О.М.Борисенко, Ю.Д.Серопегин*

Получены и исследованы новые тройные соединения на основе иттербия: YbPd<sub>2</sub>Ge, YbPd<sub>2</sub>Si, YbPdGe, YbPdSi, YbPtGe, а также YbPd<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> и известное соединение YbPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. Приводятся экспериментальные результаты измерений удельного электрического сопротивления и магнитной восприимчивости в диапазоне температур 4.2–300 К. Рентгеноструктурный анализ соединений и расшифровка кристаллической структуры производились при  $T = 300$  К. Обнаружено, что германиевые соединения YbPdGe, YbPtGe, YbPd<sub>2</sub>Ge при низких температурах ( $T \sim 16, \sim 10, \sim 12$  К соответственно) имеют магнитные фазовые переходы, исследования которых свидетельствуют о доминирующем вкладе ферромагнитного упорядочения. Проведено сравнение гальваномагнитных свойств представленных серий тройных интерметаллидов при замене германия на кремний, а также платины на палладий. Результаты исследования свидетельствуют о значительном влиянии кристаллического окружения иттербия на физические свойства исследуемых соединений.

Тройные интерметаллические соединения на основе иттербия представляют собой обширный класс веществ, демонстрирующих как магнитное, так и немагнитное поведение. Некоторые из этих соединений относятся к так называемым системам с тяжелыми фермионами (СТФ) [1,2]. Интерес к данным системам обусловлен тем, что эффективная масса электронов достигает гигантского значения  $m^* \sim 10^2 \div 10^3 m_0$  ( $m_0$  — масса свободного электрона) и имеет место гибридизация  $4f$ -электронов иттербия и зонных электронов. В случае слабой гибридизации ионы иттербия являются трехвалентными парамагнитными ионами, в случае сильной гибридизации данные соединения обладают свойствами систем с промежуточной валентностью. Кроме того, исследование физических свойств соединений с иттербием продолжает изучение перспективных соединений на основе элементов лантаноидного ряда.

Наиболее известным и исследованным типом тройных соединений с иттербием является YbT<sub>2</sub>X<sub>2</sub>, где Т — переходный металл, а X — Si, Ge. Такие соединения имеют различную кристаллическую структуру. В зависимости от состава при низких температурах в них реализуется как магнитное, так и немагнитное основное состояние. Самым известным представителем данной группы является YbCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (тип структуры ThCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>). Известно [3], что валентное состояние иттербия в данном соединении при  $T = 300$  К составляет 2.8. Это характерно

Соединение	Период кристаллической решетки			Объем ячейки $V, 10^3 \text{ нм}^3$	Тип
	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>c</i>		
$\langle 122 \rangle$					
YbPd <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	0.4095		0.9844	165	14/ <i>mmm</i> CeCa <sub>2</sub> Al <sub>2</sub>
YbPd <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub>	0.42841		1.0001	183.5	CeCa <sub>2</sub> Al <sub>2</sub>
$\langle 121 \rangle$					
YbPd <sub>2</sub> Si	нет данных				
YbPd <sub>2</sub> Ge	нет данных				
$\langle 111 \rangle$					
YbPtGe	0.6897	0.4325	0.7542	224.9	<i>Pnma</i> TiNiSi
YbPdSi	0.68768	0.4435	0.6717	204.4	TiNiSi
					<i>Imma</i>
YbPdGe	0.4344	0.6839	0.7522	223.47	KHg <sub>2</sub>

для систем с промежуточной валентностью, к которым относятся и соединения на основе иттербия. Высокотемпературная магнитная восприимчивость следует закону Кюри-Вейсса с магнитным моментом, приходящимся на ион иттербия  $M_{эфф} = 4.19 M_b$  (для трехвалентного иона иттербия  $M = 4.536 M_B$ ). На температурной зависимости магнитной восприимчивости вплоть до температуры 0.4 К не обнаружено магнитных фазовых переходов. Исследование при температурах выше 1.8 К свойств соединения YbPt<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> показало отсутствие сверхпроводящих свойств и аномалий типа Кондо [4]. В соединении YbPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, являющемся Кондо-системой, магнитные переходы не наблюдались [5,6] при понижении температуры вплоть до  $T_{min} \sim 0.7$  К.

Другие соединения данного класса изучены недостаточно, поэтому представляет большой интерес поиск и изучение свойств новых тройных интерметаллидов на основе иттербия, в которых возможна реализация режима СТФ. Результаты сравнительных исследований физических свойств новых соединений из фазовых треугольников Yb-Pd-Si, Yb-Pd-Ge, Yb-Pt-Ge приведены в настоящей работе.

## 1. Методика эксперимента

Исследуемые поликристаллические образцы готовились сплавлением в электродуговой печи в атмосфере очищенного аргона на медном водоохлаждаемом поду. В качестве геттера использовался металлический титан.

Контроль полученных образцов проводился методами рентгенофазового, рентгеноструктурного (на приборах ДРОН-2, ДРОН-3), локального рентгеноструктурного анализа (САМЕВАХ). Проводились расшифровка кристаллической структуры, контроль состава для исключения многофазности образцов. Данные по структуре каждого соединения приведены в таблице.

Удельное сопротивление определялось стандартным четырехзондовым методом на переменном (lock-in nanovoltmeter UNIPAN) и постоян-

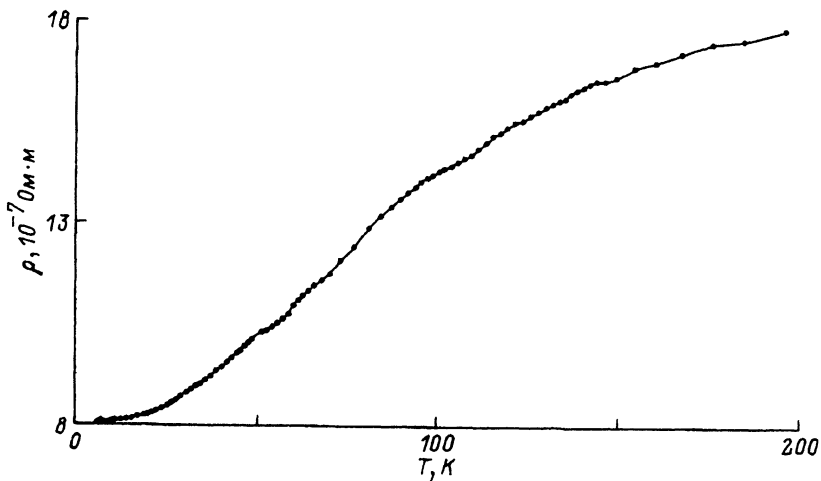


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPd}_2\text{Si}_2$ .

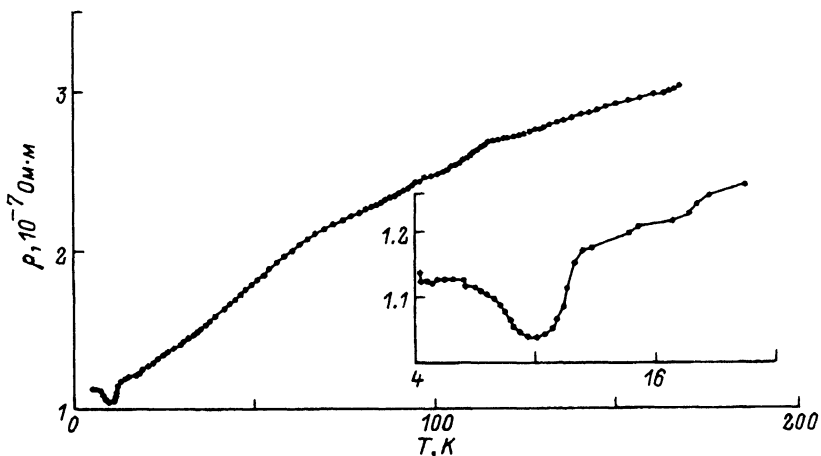


Рис. 2. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPd}_2\text{Ge}_2$ . На вставке — низкотемпературный участок.

ном токе (precision voltmeter SOLARTRON). Относительная ошибка измерений сопротивления составляла 1–2%. Изменение температуры в интервале 4.2–300 К проводилось путем перемещения образца в вертикальном градиенте температур в парах  $^4\text{He}$ . В качестве термометра использовался германиевый терморезистор с ошибкой измерения 0.05 К.

Магнитные свойства изучались посредством стандартного вибрационного магнитометра фирмы PARC (США). Точность измерений магнитного момента составляла  $10^{-5}$  emu (ед. СГС).

## 2. Результаты эксперимента

1)  $\text{YbPd}_2\text{Si}_2$ ,  $\text{YbPd}_2\text{Ge}_2$ . В результате измерений образцов  $\text{YbPd}_2\text{Si}_2$  были получены зависимости удельного сопротивления  $\rho(T)$  и магнитной восприимчивости от температуры  $\chi(T)$  (рис. 1). На зависимости

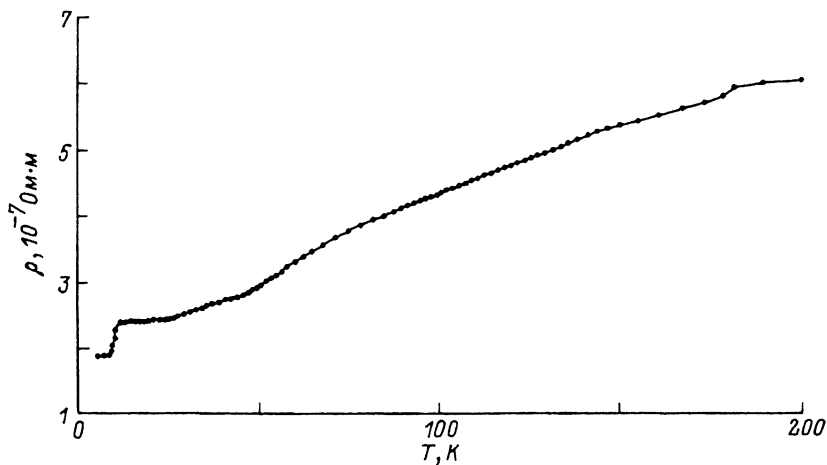


Рис. 3. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPd}_2\text{Ge}$ .

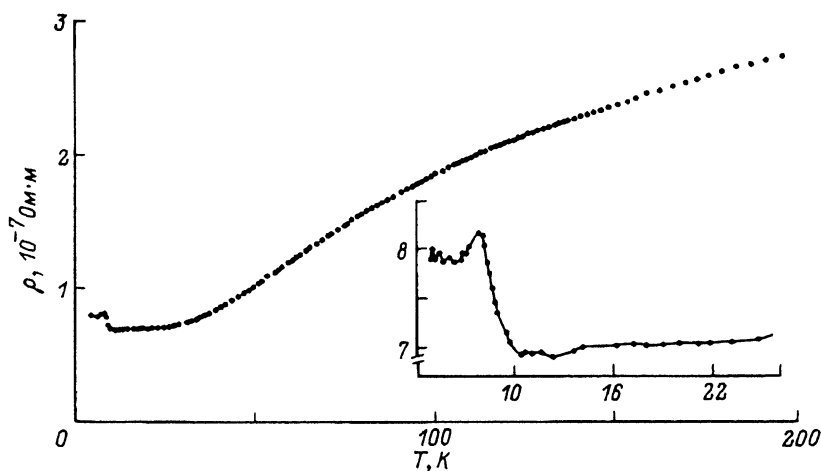


Рис. 4. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPd}_2\text{Si}$ .

$\rho(T)$  в области температур 4.2–200 К аномалий не обнаружено. Температурная зависимость магнитной восприимчивости хорошо соответствует закону Кюри–Вейсса (при  $T \sim 100 \div 300$  К) и не имеет особенностей в исследованном температурном диапазоне, связанных с магнитным упорядочением, что согласуется с данными более ранних работ [5,6].

На температурной зависимости удельного сопротивления для  $\text{YbPd}_2\text{Ge}_2$  (рис. 2) проявляются две особенности. Во-первых, при  $T_1 \sim 12$  К происходит некоторое уменьшение значения величины сопротивления (примерно на 10%), не сопровождающееся изменениями на  $\chi(T)$ . Во-вторых, при температурах ниже  $T \sim 9$  К наблюдается аномальный рост сопротивления. Отсутствие особенностей на температурной зависимости магнитной восприимчивости в области  $T \sim 9$  К

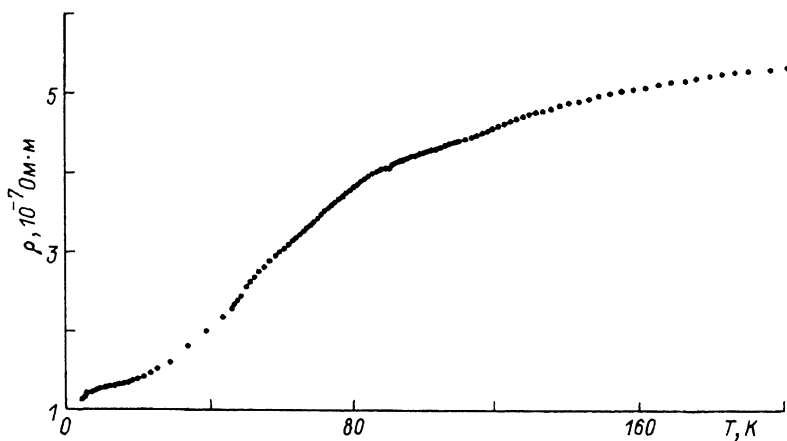


Рис. 5. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPdSi}$ .

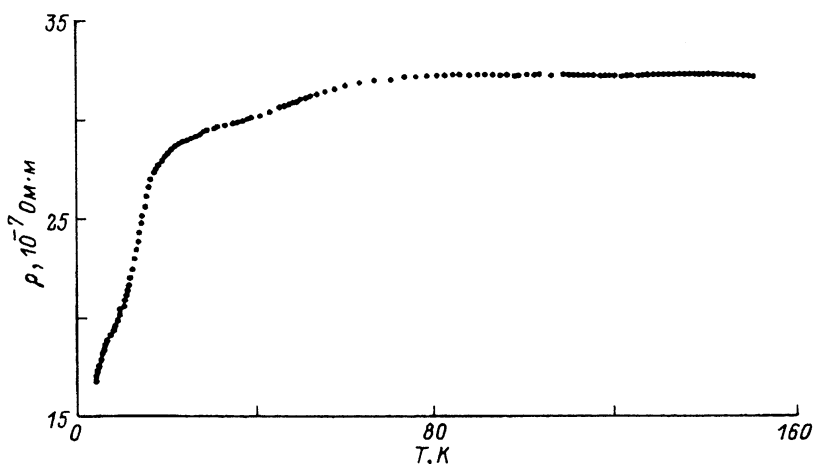


Рис. 6. Температурная зависимость удельного сопротивления  $\text{YbPdGe}$ .

делает особенно интересными поиски объяснения обнаруженной аномалии.

Оба изученных соединения ( $\text{YbPd}_2\text{Si}_2$  и  $\text{YbPd}_2\text{Ge}_2$ ) обладают одинаковой структурой типа  $\text{CeCa}_2\text{Al}_2$ . Замена кремния германием приводит к увеличению периодов кристаллической решетки и объема  $V$  элементарной ячейки (см. таблицу). Увеличение объема  $V$  этой ячейки при замещении германия кремнием вызывает уменьшение интеграла перекрытия, что может привести к изменению характера основного состояния  $\text{Yb}$ .

2)  $\text{YbPd}_2\text{Si}$ ,  $\text{YbPd}_2\text{Ge}$ . В результате исследований образца  $\text{YbPd}_2\text{Ge}$  были получены зависимости удельного сопротивления  $\rho$ , а также магнитной восприимчивости от температуры. На зависимости  $\rho(T)$  (рис. 3) при температуре  $T_1 \sim 12$  К выявлена значительная аномалия (уменьшение значения удельного сопротивления составляет примерно 20%). При более высоких температурах  $\rho(T)$  не имеет особенностей. Температурная зависимость магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  следу-

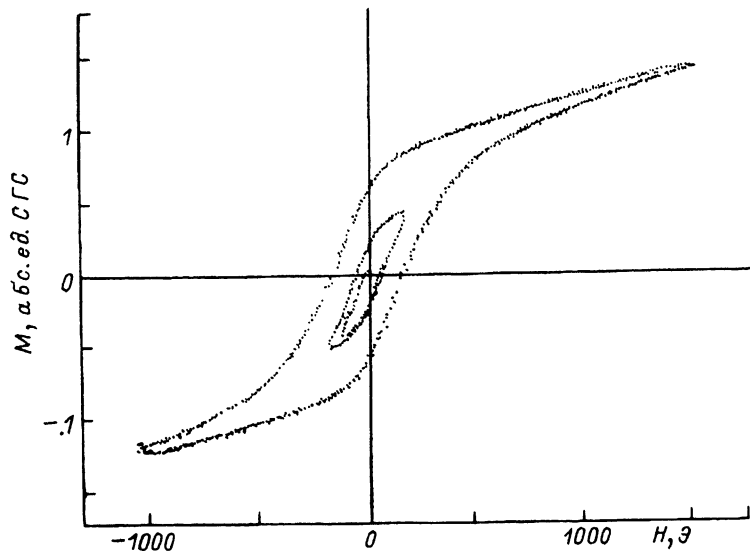


Рис. 7. Полевая зависимость магнитного момента YbPdGe при  $T = 5$  К.

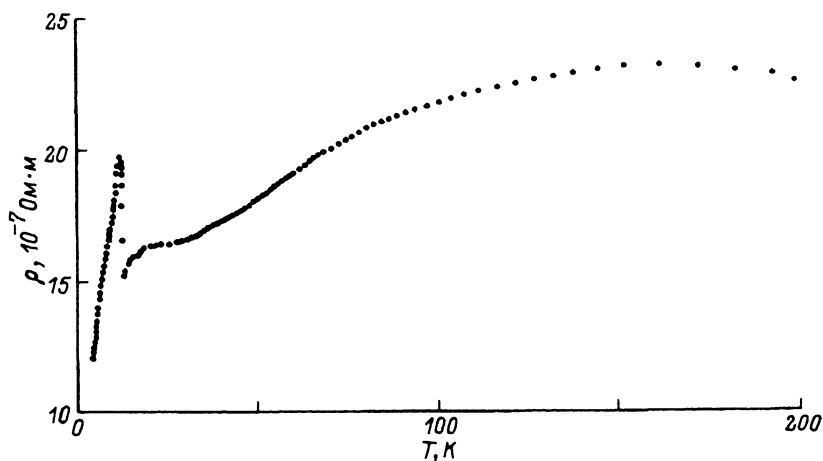


Рис. 8. Температурная зависимость удельного сопротивления YbPtGe.

ет закону Кюри-Вейсса при высоких температурах ( $T \sim 100 \div 300$  К). При температуре  $T_1 \sim 12$  К на кривой  $\chi(T)$  наблюдается особенность, что дает основание предполагать существование магнитного фазового перехода. Выяснение характера этого перехода требует дополнительного исследования.

Температурная зависимость удельного сопротивления для соединения YbPd<sub>2</sub>Si имеет особенность (рис. 4): при  $T_1 \sim 10$  К наблюдается резкий рост значения удельного сопротивления, что коррелирует с особенностью на температурной зависимости магнитной восприимчивости. Магнитные измерения для данного соединения при температурах ниже  $T_1 \sim 10$  К доказывают существование слабого магнитно-

по упорядочения с доминирующим ферромагнитным вкладом (зависимость магнитного момента от магнитного поля имеет гистерезис).

Проводя аналогию с п. 1 и п. 3 (соединения 1-2-2 и 1-1-1 соответственно (см. таблицу)), можно предположить, что замена кремния на германий (при неизменности симметрии решетки) и для соединений 1-2-1 приводит к тому, что в условиях конкуренции с Кондо-процессами более вероятно реализация магнитного фазового перехода.

3)  $\text{YbPdSi}$ ,  $\text{YbPdGe}$ ,  $\text{YbPtGe}$ . Температурная зависимость удельного сопротивления соединения  $\text{YbPdSi}$  (рис. 5) показывает наличие при температуре  $T_2 \sim 100$  К размытого максимума, что можно интерпретировать как проявление Кондо-процессов при высоких температурах.

На зависимости удельного сопротивления от температуры для соединения  $\text{YbPdGe}$  обнаружены (рис. 6) размытый Кондо-максимум при высоких температурах ( $T_2 \sim 80$  К) и резкое уменьшение удельного сопротивления при  $T_1 \sim 16$  К. Как показывают измерения зависимости магнитного момента от температуры и от магнитного поля, указанная аномалия при  $T_1 \sim 16$  К, по-видимому, связана с ферромагнитным фазовым переходом (рис. 7). При температурах выше 100 К на кривой  $\rho(T)$  (рис. 6) наблюдается участок с аномальной отрицательной температурной зависимостью, что требует дополнительного исследования.

Резкий пик на зависимости удельного сопротивления от температуры для соединения  $\text{YbPtGe}$  (рис. 8), который наблюдается при  $T_1 \sim 10$  К, по всей видимости, связан с происходящим при этой температуре магнитным фазовым переходом. На основании полученной нами полевой зависимости магнитного момента от температуры этот переход может быть интерпретирован как ферромагнитный.

Итак, в данной работе представлены новые тройные соединения на основе иттербия:  $\text{YbPd}_2\text{Ge}$ ,  $\text{YbPd}_2\text{Si}$ ,  $\text{YbPdGe}$ ,  $\text{YbPdSi}$ ,  $\text{YbPtGe}$  и уже известные  $\text{YbPd}_2\text{Ge}_2$ ,  $\text{YbPd}_2\text{Si}_2$ , обладающие рядом интересных свойств, связанных с сосуществованием в этих соединениях конкурирующих процессов, определяемых эффектами Кондо-рассеяния, с одной стороны, и магнитным упорядочением — с другой. Следует отметить, что проявление Кондо-процессов в соединениях на основе иттербия представляет самостоятельный интерес. Дело в том, что существование магнитных моментов иттербия, ответственных за процессы Кондо-рассеяния в СТФ, является следствием участия  $4f$ -электрона Yb в химической связи с окружением. Это дает возможность исследовать, как влияют микрофизические изменения окружения атома иттербия на макроскопические характеристики соединения на его основе.

#### Список литературы

- [1] Мошалков В.В., Брандт Н.Б. // УФН. 1986. Т. 149. С. 585.
- [2] Grewe N., Steglich F. Handbook / Ed. K.A.Gschneidner, Jr. and L.Eyring. Elsevier Science Publishers B. V., 1991. Heavy fermions. P. 343-473.
- [3] Sales B.C., Viswanathan R. // J. Low. Temp. Phys. 1976. V. 23. P. 449.
- [4] Riebl K., Roge R. // JMMM. 1985. V. 50. N 1. P. 39-48.
- [5] Bonville P., Hodges J.A., Hulliger F. et al. // JMMM. 1988. V. 76-77. P. 473-474.
- [6] Sampathkumaran E.V., Frank K.H., Kalkowski G. et al. // Phys. B. 1984. V. 29. P. 5702.
- [7] Gangopadhyay A.K., Lemah K., Lettau C. et al. // JMMM. 1992. V. 103. N 3. P. 267-273.

- [8] Yashima Y. et al. // Solid St. Commun. 1982. V. 43. P. 193.
- [9] Boni P. et al. // J. Phys. Soc. Japan. 1986. V. 56. P. 3801.
- [10] Dalichaouch Y. et al. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. P. 2423.

Московский государственный  
университет  
им. М.В. Ломоносова

Поступило в Редакцию  
27 сентября 1993 г.

