

УДК 543.737

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ТРОЙНЫХ ИНТЕРМЕТАЛЛИДОВ U—M—Si (M=Ru, Co, Fe, Mo, Re)

Ф. Г. Алиев, Л. Г. Аксельруд, В. В. Козырьков, В. В. Моцалков

Исследованы электрические и магнитные свойства тройных силицидов на основе урана. В соединениях $U_2Ru_3Si_5$ и $U_3Co_2Si_7$ обнаружен переход в магнитоупорядоченное состояние. Показано, что $U_6Co_{30}Si_{19}$ и $U_3Fe_2Si_7$ являются системами с тяжелыми фермионами.

Системы с тяжелыми фермионами (СТФ) представляют собой новый класс веществ, в которых за счет обменных взаимодействий между валентными электронами и магнитными ионами, расположенными в каждой элементарной ячейке, плотность электронных состояний вблизи энергии Ферми ε_F оказывается усиленной в сотни раз по сравнению с нормальными металлами [1]. Электронная часть теплоемкости СТФ γ составляет величину порядка 10^3 мДж/моль K^2 , причем большинство соединений, таких как $SeAl_3$, $SeCu_6$, не переходит в магнитоупорядоченное состояние вплоть до $T \approx 10$ мК [1]. Напротив, ряд СТФ (например $SeCu_2Si_2$, UPt_3 , UBe_{13}) испытывают переход в сверхпроводящее состояние, в котором за сверхпроводимость ответственны те же тяжелые носители, которые обуславливают большие значения γ . Гигантские значения γ в Кондорешетках ($SeCu_6$, $SeCu_2Si_2$, $SeAl_3$) обусловлены попаданием на ε_F многочастичного резонанса Абрикосова—Сула [1].

Одним из путей, позволяющих глубже понять природу аномальных свойств СТФ, является синтез и поиск новых систем с тяжелыми фермионами. Большинство известных в настоящее время СТФ являются бинарными соединениями Се и U. Это объясняется двумя обстоятельствами. Во-первых, двойные системы, как правило, легче получить в химически чистом виде. Во-вторых, атомы церия и урана являются первыми в ряду лантаноидов и актиноидов устойчивыми магнитными ионами, переходящими в немагнитное состояние при переходе 4f- или 5f-электрона в зону проводимости. В соединениях Eu и Yb (например, $EuCu_2Si_2$, $YbCu_2Si_2$ и др.), также имеющих магнитную и немагнитную конфигурацию редкоземельного атома, радиус 4f-оболочек существенно меньше, чем у Се и U, и кристаллическое поле слабее влияет на них, и в $EuCu_2Si_2$, $YbCu_2Si_2$ реализуется сильно вырожденное основное состояние с малым γ .

Таким образом, наиболее перспективными объектами для поиска новых систем с тяжелыми фермионами могут являться соединения Се и U. В настоящей работе проведены первые исследования электрических и магнитных свойств ряда тройных соединений урана. Выбор объектов был обусловлен, во-первых, отсутствием переходов в магнитоупорядоченное состояние по меньшей мере до азотных температур и, во-вторых, наличием кристаллической решетки не очень высокой симметрии.

Измерение электрических и магнитных свойств образцов проводилось на комплексе автоматизированных установок, объединенных в локальную вычислительную сеть.

Работа установки по измерению гальваномагнитных свойств подробно описана в [2]. Измерение магнитной восприимчивости проводилось при помощи вибромагнитометра PARC с криостатом, позволяющим варьировать температуру в диапазоне ($4.2 < T < 300$) К. Ввод информации в ЭВМ Электроника ДЗ-28 осуществляется с вольтметров типа Ф-30 (измерение температуры с помощью термопары) и Р-386 (сигнал магнитной восприимчивости) при помощи интерфейса, собранного на микросхемах К155КП1. В процессе эксперимента полученная установками информация запоминается и затем по специальной программе через оптическую развязку и линию типа «токовая петля» передается на расстояние до 20 метров в лабораторную ЭВМ типа ЕС 1840, в которой реализуется графическая обработка информации и ее накопление в банке данных о кристаллической структуре.

Основные данные исследованных образцов приведены в [3-5].

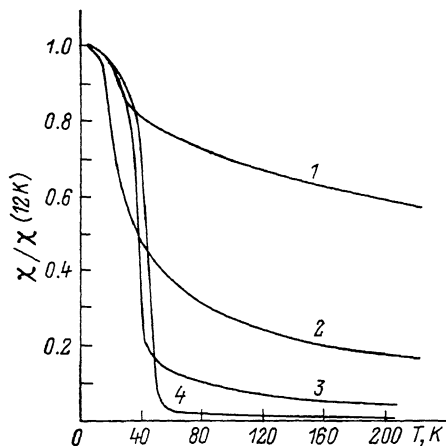


Рис. 1. Нормированные к $\chi(T=12\text{ К})$ температурные зависимости магнитной восприимчивости.

1 — $\text{U}_2\text{Mo}_3\text{Si}_4$, 2 — $\text{U}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$, 3 — $\text{U}_3\text{Co}_2\text{Si}_7$, 4 — $\text{U}_2\text{Ru}_3\text{Si}_5$.

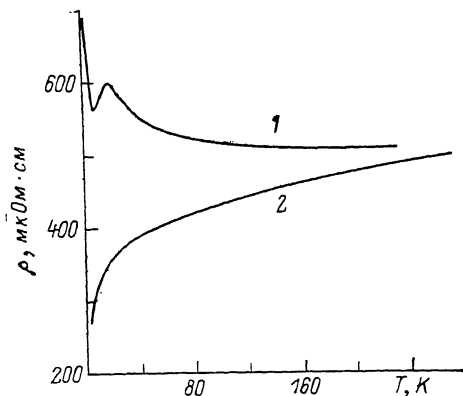


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления для $\text{U}_2\text{Ru}_3\text{Si}_5$ (1) и $\text{U}_3\text{Co}_2\text{Si}_7$ (2).

Нормированные к $\chi(T=12\text{ К})$ зависимости магнитной восприимчивости представлены на рис. 1. Анализ магнитных свойств исследуемых соединений позволяет разбить их на три группы: 1) паулевские парамагнетики, 2) магнитоупорядоченные системы, 3) соединения, в которых наблюдается переход от магнитного к немагнитному состоянию при понижении температуры.

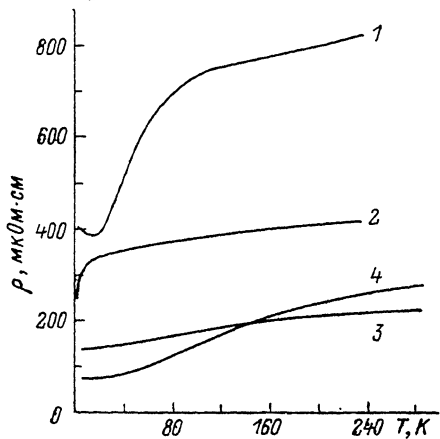
К соединениям типа 1 относятся $\text{U}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$ и $\text{U}_4\text{Re}_7\text{Si}_8$, в которых наблюдается температурно-независимый ход магнитной восприимчивости с $\chi_p = 0.77 \cdot 10^{-2}$ CGSM/моль и $0.57 \cdot 10^{-1}$ CGSM/моль соответственно.

Температурная зависимость магнитной восприимчивости систем $\text{U}_2\text{Ru}_3\text{Si}_5$ и $\text{U}_3\text{Co}_2\text{Si}_7$ в диапазоне ($150 < T < 250$) К характеризуется кюри-вейсовским ходом $\chi(T) \sim 1/(T-\Theta)$ с $\mu_{\text{эфф}} = 1.2$ и $1.7 \mu_B$ и $\Theta = -51.5$ и -94.5 К соответственно. Вблизи $T \approx 40-50$ К значения $\chi(T)$ этих соединений резко (примерно на порядок) возрастают и насыщаются при $T < 30$ К. Такой характер поведения магнитной восприимчивости указывает на то, что $\text{U}_2\text{Ru}_3\text{Si}_5$ и $\text{U}_3\text{Co}_2\text{Si}_7$ испытывают переход в магнитоупорядоченное состояние ферромагнитного типа (ФМ).

У системы $\text{U}_2\text{Mo}_3\text{Si}_4$ при ($100 < T < 250$) К наблюдается слабая температурная зависимость $\chi(T)$ с $\mu_{\text{эфф}} = 0.42 \mu_B$ и небольшой скачок χ в сторону увеличения вблизи $T \approx 40$ К, который, возможно, связан с наличием в образце примесных фаз (отметим, что на температурной зависимости $\rho(T)$ у $\text{U}_2\text{Mo}_3\text{Si}_4$ отсутствуют косвенные указания на переход в магнитоупорядоченное состояние с $T_m \approx 40$ К).

К системам, которые характеризуются наличием магнитных атомов в решетке при высоких температурах и не переходят в магнитоупорядоченное состояние вплоть до $T=4.2$ К, относятся соединения $U_6Co_{30}Si_{19}$ и $U_3Fe_2Si_7$ (рис. 1 и 4). Эффективный магнитный момент на один атом $\mu_{эфф}$, определенный из хода $\chi(T)$ в диапазоне ($150 < T < 250$) К, составляет 2.6 и 1.6 μ_B соответственно.

При расчете эффективного магнитного момента $\mu_{эфф}$ в настоящей работе предполагалось, что носителями магнитного момента являются



атомы урана. Эта гипотеза должна быть проверена посредством измерения зависимостей $\chi(T)$ у изоструктурных соединений La—M—Si, в которых атомы U замещены немагнитным La. Интересно, что значения $\mu_{эфф}$ большинства соединений оказались меньше, чем $\mu_{эфф}$ для атома урана в состояниях $5f^1-5f^4$. Это может быть связано с сильным влия-

Рис. 3. Зависимости удельного сопротивления от температуры для $U_2Fe_3Si_5$ (1), $U_3Fe_2Si_7$ (2), $U_4Re_7Si_6$ (3), $U_2Mo_3Si_4$ (4).

нием на $\mu_{эфф}$ кристаллического поля, расщепляющего $5f$ -уровень на энергии $\Delta > 150$ К.

Транспортные свойства исследуемых систем представлены на рис. 2—4. На температурной зависимости $\rho(T)$ соединения $U_2Ru_3Si_5$ наблюдается отчетливый максимум с $T_{max} \approx 30$ К, отражающий переход в ФМ фазу ниже $T=40$ К (рис. 1). На температурной зависимости $\rho(T)$ для $U_3Co_2Si_7$ наблюдается монотонное уменьшение $\rho(T)$ во всем диапазоне ($1.8 < T < < 300$) К (рис. 2), а в точке ферромагнитного перехода происходит лишь плавное изменение наклона производной $\rho(T)$.

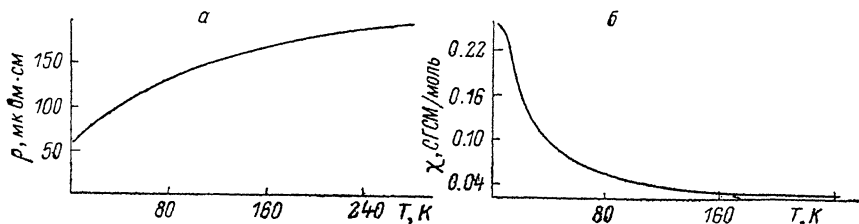


Рис. 4. Температурные зависимости удельного сопротивления (а) и магнитной восприимчивости (б) образцов $U_6Co_{30}Si_{19}$.

Зависимости $\rho(T)$ систем, не испытывающих объемного перехода в магнитоупорядоченную фазу, приведены на рис. 3, 4. Прежде всего отметим, что все эти соединения характеризуются металлическим ходом кривых $\rho(T)$, причем для паулевских парамагнетиков $U_4Re_7Si_6$ и $U_2Fe_3Si_5$ ρ испытывает насыщение при $T < 10$ К.

Крайне необычный тип зависимости $\rho(T)$ для систем, не испытывающих магнитного перехода, показывают $U_6Co_{30}Si_{19}$ и $U_3Fe_2Si_7$ (рис. 3, 4): во всем диапазоне $T < 4$ К $\rho(T)$ имеет отрицательную кривизну $d\rho/dT$, характерную для тяжелофермионных систем со спиновыми флуктуациями, как, например, у UPt_3 [1].

Известно, что системы с тяжелыми фермионами характеризуются аномально высокими значениями коэффициента Холла R_H . Исходя из этого в настоящей работе для соединения $U_6Co_{30}Si_{19}$ в диапазоне температур ($2 < T < 80$) К в магнитных полях до 40 кЭ была измерена температур-

ная зависимость $R_H(T)$. Абсолютные значения коэффициента Холла R_H у $U_6Co_{30}Si_{19}$ составляют величину порядка $(4-6) \cdot 10^{-3}$ см³/Кл, близкую к максимальным наблюдаемым значениям R_H для СТФ $CeCu_2Si_2$.

Соединения $U_6Co_{30}Si_{19}$ и $U_3Fe_2Si_7$ следует, по-видимому, рассматривать как новые системы с тяжелыми фермионами. Об этом свидетельствуют типичные для СТФ зависимости $\rho(T)$ и $\chi(T)$. Отметим, что значения усиленной паулевской восприимчивости $\chi_p(T \rightarrow 0)$ составляют в $U_3Fe_2Si_7$ и $U_6Co_{30}Si_{19}$ соответственно $0.38 \cdot 10^{-1}$ и 0.25 СГСМ/моль. Огромная величина χ_p свидетельствует о наличии у этих систем больших значений γ , так как $\gamma \sim \chi_p$. Количественно значения γ можно оценить из ферми-жидкостного хода $\rho = \rho_0 + AT^2$, так как $A = 10^{-5}$ мк·Ом·см·К²·моль²/(мДж)² γ . Такая оценка дает значение $\gamma \simeq 400$ мДж·моль·К² для $U_6Co_{30}Si_{19}$.

Температуру спиновых флуктуаций T_{sf} системы $U_6Co_{30}Si_{19}$ можно оценить из значения Θ в законе Кюри—Вейса: $T_{sf} \simeq \Theta/4 \simeq 20$ К. Поскольку $\gamma \sim 1/T_{sf}$, то отсюда можно получить другую оценку γ для $U_6Co_{30}Si_{19}$: $\gamma = 500$ мДж/моль·К².

Л и т е р а т у р а

- [1] Brandt N. B., Moshchalkov V. V. Adv. Phys., 1984, vol. 33, N 2, p. 373—468.
- [2] Алиев Ф. Г., Брандт Н. Б., Мозжалков В. В., Залялютдинов М. К., Ковачик В., Чудинов С. М., Ясницкий Р. И. ЖЭТФ, 1987, т. 92, N 3, с. 902—912.
- [3] Аксельруд Л. Г., Ярмолюк Я. П., Гладышевский Е. И. ДАН УССР, серия А, 1978, N 4, с. 360—363.
- [4] Аксельруд Л. Г., Ярмолюк Я. П., Рождественская И. В., Гладышевский Е. И. Кристаллография, 1981, т. 26, N 1, с. 186—188.
- [5] Ярмолюк Я. П., Аксельруд Л. Г., Фундаменский В. С., Гладышевский Е. И. Кристаллография, 1980, т. 25, N 1, с. 169—171.

Московский государственный
университет им. М. В. Ломоносова
Москва

Поступило в Редакцию
25 сентября 1987 г.