

研究快讯

重费密子系统 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 的极低温电阻研究*

孟继宝¹⁾ 陈兆甲¹⁾ 雒建林¹⁾ 白海洋¹⁾ 汪卫华¹⁾ 郑 萍¹⁾ 张 杰²⁾ 苏少奎¹⁾ 王玉鹏¹⁾

¹⁾ 中国科学院物理研究所极端条件物理开放实验室 (北京 100080)

²⁾ 重庆大学应用物理系 (重庆 400044)

(2001年3月22日收到 2001年4月26日收到修改稿)

CeCu_6 是一种重费密子系统, 采用 Ni 替代 Cu 研究磁性原子掺杂的多晶样品 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ ($x = 0.00, 0.05, 0.10, 0.15, 0.20$) 在极低温下的电阻随温度的变化规律。实验结果表明, 随着 Ni 原子掺杂量的增加, 电阻的规律发生变化。在 500mK 以下, $x \approx 0.1$ 的样品电阻与温度呈线性关系, 表现出非费密液体行为, 而其他样品皆为典型的费密液体。 $x \approx 0.1$ 是其临界掺杂成分。对比用 Au 替代的情况, 临界掺杂成分也是 0.1, 但 Au 掺杂是靠体积膨胀来改变合金的基态性质, 而 Ni 掺杂则是因其磁性造成对合金基态性质的影响。

关键词: 重费密子, 临界掺杂, 非费密液体

PACC: 7127, 7128

1 引言

重电子金属(亦称为重费密子系统)是一些金属间化合物, 其中含有一种 f 轨道部分填充的稀土元素(特别是 Ce)或锕系元素(特别是 U)。自从第一个重电子金属 CeAl_3 被发现后^[1], 人们便对该种物质在低温下的奇特物性产生了浓厚兴趣, 从而, 一大批重电子金属被相继发现。重电子物质由于其电子间的相互作用相对粒子的平均动能很“强”, 成为强关联电子体系的一个热门分支, 因此就不能像通常金属那样可以用单电子模型来描述。重电子金属现已被观察到的基态有: 费密液体态、非费密液体态、超导态、磁有序或绝缘体等。重电子系统的这些基态被认为是近藤(Kondo)效应与 RKKY 相互作用竞争的结果^[2,3]。近藤效应是传导电子对 Ce(或 U)离子磁矩加以屏蔽的结果, 它可以导致顺磁性的费密液体(其极低温物理性质表现为 $C/T = \text{const}$, $R - R_0 \sim T^2$, $\chi \approx \text{const}$ 等)或非费密液体行为(其极低温物理性质表现, 如(C/T) $\sim -\ln T$, $R - R_0 \sim T$, $\chi \approx -\ln T$ 等), 而 RKKY 相互作用是两个相隔较远的 Ce(或 U)

离子的磁矩, 通过传导电子的间接交换相互作用, 可导致形成长程磁有序。通过元素替代可使基态在临界掺杂情况时发生改变, 出现非费密液体行为, 此临界成分称为量子临界点^[4]。目前, 以 Ce 元素为基的化合物 CeCu_6 , CeAl_3 等是人们研究较普遍的重费密子系统^[5], 已经有人通过在 CeCu_6 中用原子半径不同的金属 Au, Ag, Pd 等来代替其中的 Cu 元素, 作了大量的实验工作^[6-22]。由于 Au, Ag, Pd 的原子半径比 Cu 大, 从而改变晶格常量, 引起掺杂前后物性的差异, 观察到了这些系统的反铁磁有序、费密液体和非费密液体基态及临界行为。但我们注意到, 掺 Pd 引起的临界行为出现在 $x = 0.05$ 附近, 而 Au, Ag 引起的临界行为却分别在 $x = 0.1$ 和 $x = 0.09$ 附近。虽然 Au, Ag, Pd 代替 Cu 后都会产生尺寸效应, 但是, Au, Ag 没有磁性, 而 Pd 却是近铁磁性, 说明对 CeCu_6 的掺杂中, 除了尺寸效应外, 磁性原子的掺杂也可以改变其极低温物理性质。考虑到目前还未发现有关铁磁元素 Ni 原子在 CeCu_6 掺杂之后物性的详细报道, 本文研究由于磁性原子 Ni 的掺杂对 CeCu_6 低温物性和基态性质的影响, 从而更好地了解非费密液

* 国家自然科学基金(批准号: 19734001)资助的课题。

体行为产生的原因.

2 样品的制备与测量

实验中所用的样品 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 是由高纯度的 Ce(99.9%)Cu(99.999%)Ni(99.999%)金属元素按比例为 $1:(6-x):x$ 的摩尔数配备好, 将配备好的成分放入高真空电弧炉的水冷式铜底坩埚的圆槽

中, 真空度抽至 $2 \times 133.322 \times 10^{-5}$ Pa 后, 用高纯氩气冲洗三遍, 然后在流动氩气的保护下, 将每个样品反复熔炼, 使其均匀混合. 再把熔炼好的每个样品分别封入 5 个真空度好于 133.322×10^{-6} Pa 的石英玻璃管中, 放入箱式炉在 850℃ 下退火 150h 之后, 随炉冷却. 粉末 X 射线衍射分析表明, 各个样品均为正交结构的单相样品. 见图 1.

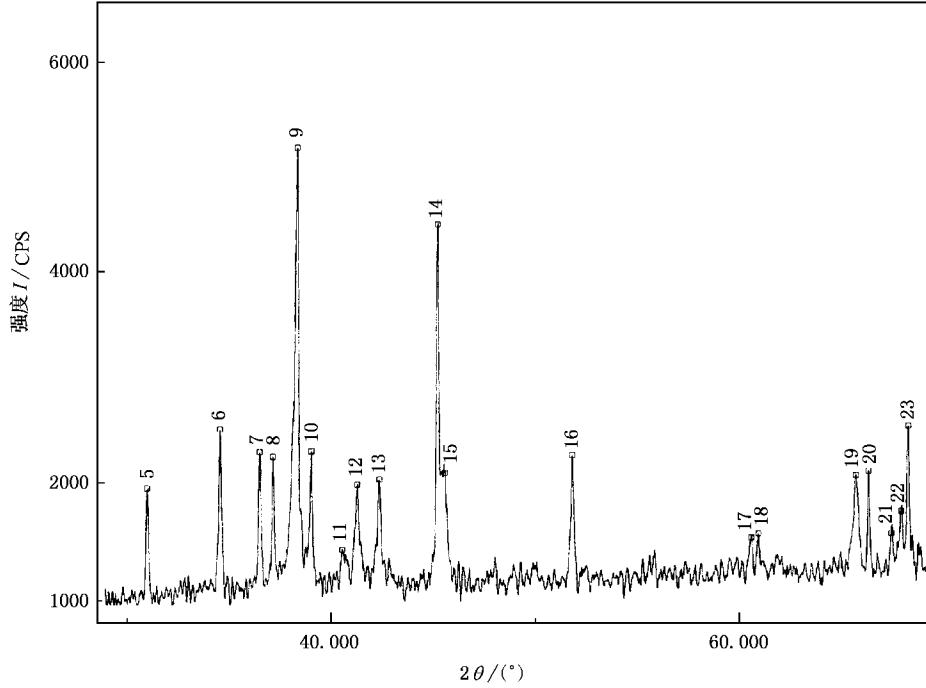


图 1 CeCu_6 的 X 射线衍射图

表 1 是各样品晶格参量的对照表, 表中的参量值是根据指标化方法求得, 在误差范围内我们认为晶格参量和单胞体积没有发生明显变化. 经过化学分析检测其中的成分比例, 表明制备好的样品中各成分的比例与初始的成分比例几乎一致, 表 2 是化学分析的具体结果(质量比).

表 1 各样品的晶格参量

$x = 0.0$	$x = 0.05$	$x = 0.1$	$x = 0.15$	$x = 0.2$
a	8.1214	8.1269	8.1269	8.1418
b	5.1025	5.0856	5.0856	5.1059
c	10.159	10.150	10.150	10.231
v	421.01	419.52	419.52	425.64
				424.43

表 2 样品掺杂 x 与各元素质量百分含量

	$x = 0.0$	$x = 0.05$	$x = 0.1$	$x = 0.15$	$x = 0.2$
Ce	26.9	26.8	26.8	26.8	26.8
Cu	73.1	72.6	72.2	71.4	71.0
Ni	0	0.58	1.14	1.71	2.28
$1:6-x:x$	1:6	1:5.95:0.05	1:5.9:0.1	1:5.85:0.15	1:5.8:0.2

将熔炼好的样品用线切割的方法获得截面积为 1mm^2 的待测样品, 考虑到线切割时待测样品的表面已氧化, 在具体测量之前先把样品表面的氧化层去掉, 然后用银胶接好引线, 采用标准的四引线法进行测量. 把样品和标准温度计固定在稀释制冷机的混合室上, 同时把混合室外的真空度用分子泵抽至 10^{-5} Pa 以上, 让样品和温度计在测量时能够取得相同的温度, 以确保测量数据的精确度. 实验数据是用交流电桥测量, 通过计算机采集, 测量温区在 0.1—1K 之间.

3 实验结果与数据分析

图 2 为 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 样品($x = 0.00, 0.05, 0.15, 0.20$)的($R/R(300)$)- T^2 曲线. 图 3 为 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 中 $x = 0.1$ 的($R/R(300)$)- T 曲线. 从图 2 可以清楚地

看到,在 $0.1 < T < 0.4\text{K}$ 的范围内,对 $x = 0.00, 0.05, 0.15, 0.20$ 的样品, R 是温度 T 的平方关系,符合费密液体的性质.而 $x = 0.1$ 的样品在此温度范围内电阻 R 满足 T 的线性关系,从而可以认为在极低温下 $x = 0.1$ 的样品表现非费密液行为.与 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ 的实验结果相对照, $x \approx 0.1$ 可能是系统 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 的临界掺杂或量子临界点.

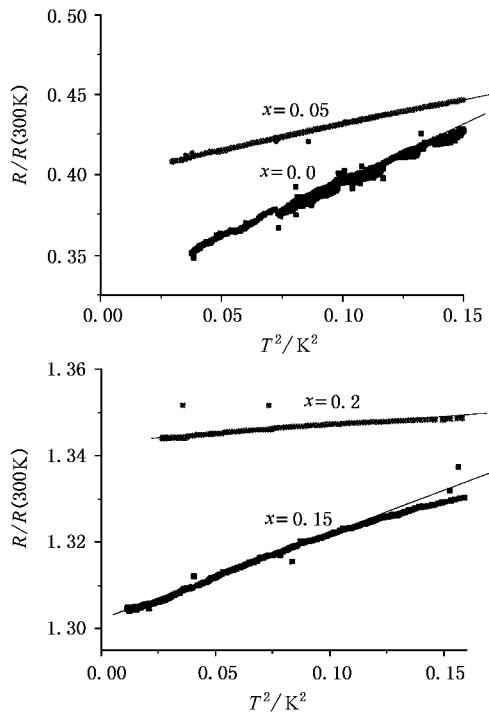


图 2 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 样品 ($x = 0.00, 0.05, 0.15, 0.20$) 的 $(R/R(300)) - T^2$ 曲线 $R(300)$ 是 300K 的电阻

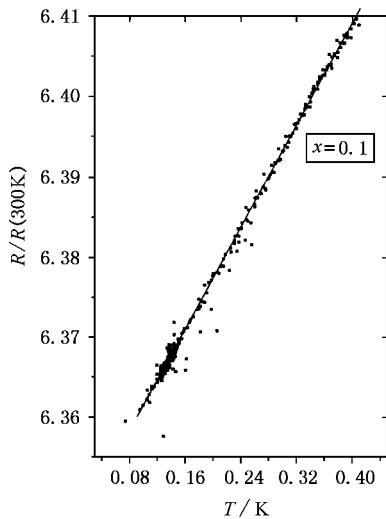


图 3 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 中 $x = 0.1$ 的 $(R/R(300)) - T$ 曲线 $R(300)$ 是 300K 的电阻

对于重电子金属 CeCu_6 自身, 文献[23]已经报道在 $T < 0.002\text{--}0.003\text{K}$ 时表现为微弱反铁磁性,而在该温度以上表现为费密液体态.当其中的 Cu 原子被 Au, Ag, Pd 所取代后,该系统的低温物性发生了变化,各自的掺杂量低于临界值时($x_{\text{Au}} = 0.1, x_{\text{Ag}} = 0.09, x_{\text{Pd}} = 0.05$)都表现为顺磁性的费密液体,掺杂量为临界成分时,呈现非费密液行为.若掺杂量高于它们的临界成分,当系统的温度低于 Néel 温度时,出现长程反铁磁有序.对 CeCu_6 系统掺杂 Au, Ag 的情况,由于 Au, Ag 没有磁性(其 Stoner 因子为 1),但是它们的原子半径比 Cu 的原子半径大,因此,系统性质的改变主要是由于它们的掺杂增大了样品的晶格常量,从而减小了传导电子与 4f 电子磁矩之间的相互作用常量 J ,使它们的杂化变弱,于是 Ce 在低温下具有一定的局域净磁矩.掺杂量低于临界值时主要是近藤效应起作用,导致了费密液体态,而在掺杂量高于临界值的情况下,温度高于 Néel 温度时, RKKY 相互作用被热运动破坏,该温区中近藤效应仍起主要作用,系统表现出顺磁性的费密液体行为,而当温度低于 Néel 温度时,热运动减弱,RKKY 起主要作用,从而形成了长程的反铁磁有序.对 Pd 掺杂的情况,尽管它的原子半径比 Au 小,但临界成分却只有后者的二分之一.我们认为,除了尺寸效应之外,因 Pd 的 Stoner 因子很大,低温下加强了 4f 电子的磁矩,从而改变相互作用常量 J ,影响了近藤效应和 RKKY 相互作用的竞争及其对临界掺杂 x_c 的影响.根据上面的分析,我们认为,对于 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 系统,由于 Ni 的掺杂对 CeCu_6 的晶格常量几乎没有引起变化(见表 1),因此,其物性的变化主要是归因于 Ni 的磁性.在低温下磁性 Ni 原子的 3d 电子与 Ce 的 4f 电子杂化加强了 Ce 的局域磁矩和巡游电子的磁性,当 $x \geq x_c$ 时系统的基态可能发生改变,出现长程磁有序.按照近藤点阵模型,由于传导电子和 f 电子的杂化及相干散射效应,在极低温下形成新的杂化能带,此时的重电子应表现费密液体行为.除临界掺杂样品外,电阻是温度的平方规律.从图 2 看出,平方项的系数 A (被 300K 电阻归一化)随着掺杂量的增加而减小,具体数据列于表 3.

表 3 掺 Ni 含量 x 与各样品电阻 T^2 项系数 A 的关系

x	0.00	0.05	0.15	0.20
A	0.707	0.304	0.198	0.033

按费密液体理论,系数 A 反映了电子-电子散射过程,与极低温下 f 电子杂化能带的态密度有关。关于临界掺杂 $x = 0.1$ 的样品表现非费密液体行为,其物理机理还需要进一步研究。

4 结 论

通过对一系列多晶样品 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ 的极低温电阻的测量和分析,我们观察到磁性 Ni 原子的掺入

使得重电子系统 $\text{CeCu}_{5.9}\text{Ni}_{0.1}$ 在极低温下出现了非费密液体行为,电阻与温度呈线性关系。这与用 $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$ 掺杂达到同样的效果。实验证明,除尺寸效应外,掺杂原子的磁性也可以改变重电子系统的基态。我们认为:由于 Ni 原子的 3d 电子与 Ce 原子的 4f 局域电子之间的杂化,4f 电子的局域磁矩和巡游电子的自旋极化都得到加强,当 Ni 含量增大时,系统的基态从费密液体态转变为磁有序态。在临界成分情况下,系统表现非费密液体行为。

- [1] K. Andres, J. E. Graebner, H. R. Ott, *Phys. Rev. Lett.*, **35** (1975), 1979.
- [2] D. Feng, G. J. Jin, *New Perspective on Condensed Matter Physics* (Shanghai Scientific & Technical Press, Shanghai, 1992) [in Chinese] 冯端、金国钧,凝聚态物理学新论(上海科学技术出版社,上海,1992)].
- [3] L. Z. Cao, Z. J. Chen, S. S. Yan, *Low Temperature Physics* (University of Science and Technology of China Press, Hefei, 1999) [in Chinese] 曹烈兆、陈兆甲、阎守胜,低温物理学(中国科技大学出版社,合肥,1999)].
- [4] X. H. Hu, Z. J. Chen, J. L. Luo, Y. P. Wang, H. Y. Bai, D. Jin, *Acta Phys. Sin.*, **A9** (2000), 2109 [in Chinese] 胡小华、陈兆甲、雒建林、王玉鹏、白海洋、金铎,物理学报, **49** (2000), 2109].
- [5] G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.*, **56** (1984), 779.
- [6] H. v. Löhneysen, A. Neubert, T. Pietrus, A. Schröder, O. Stockert, U. Tutsch, M. Loewenhaupt, A. Rosch, P. Wölfle, *Eur. Phys. J.*, **B5** (1998), 447.
- [7] H. von Löhneysen, *Phys. Condens. Matter*, **8** (1996), 9689.
- [8] A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert, H. von Löhneysen, *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997), 159.
- [9] A. Amato, D. Jaccard, *J. Low Temp. Phys.*, **68** (1987), 371.
- [10] H. von Löhneysen, F. Huster, S. Mock, A. Neubert, T. Pietrus, M. Sieck, O. Stockert, M. Waffenschmidt, *Physica*, **B230-232** (1997), 550.
- [11] J. Benz, C. Pfleiderer, O. Stockert, H. von Löhneysen, *Physica*, **B259-261** (1999), 380.
- [12] O. Stockert, A. Schröder, H. von Löhneysen, N. Pyka, E. Garcia-Matir, R. von der Kamp, S. Welzel, M. Loewenhaupt, *Physica*, **B259-261** (1999), 383.
- [13] A. Rosch, P. Wölfle, A. Neubert, A. Schröder, O. Stockert, U. Tutsch, H. von Löhneysen, *Physica*, **B259-261** (1999), 385.
- [14] E. W. Scheidt, T. Schreiner, K. Heuser, G. R. Stewart, *Physica*, **B259-261** (1999), 388.
- [15] H. von Löhneysen, M. Sieck, O. Stockert, M. Waffenschmidt, *Physica*, **B223-224** (1996), 471.
- [16] M. Sieck, F. Huster, H. von Löhneysen, *Physica*, **B230-232** (1997), 583.
- [17] A. Neubert, T. Pietrus, O. Stockert, H. von Löhneysen, A. Rosch, P. Wölfle, *Physica*, **B230-232** (1997), 587.
- [18] H. von Löhneysen, A. Schröder, T. Trappmann, M. Welsch, *J. Magn. Magn. Mater.*, **108** (1992), 45.
- [19] A. Schröder, H. G. Schlager, H. von Löhneysen, *J. Magn. Magn. Mater.*, **108** (1992), 47.
- [20] M. Sieck, C. Speck, M. Waffenschmidt, S. Mock, H. von Löhneysen, *Physica*, **B223-224** (1996), 325.
- [21] D. Finsterbusch, H. Willig, B. Wolf, M. Amara, G. Bruls, B. Lüthi, M. Waffenschmidt, O. Stockert, H. von Löhneysen, *Physica*, **B223-224** (1996), 329.
- [22] A. Schröder, G. Aepli, R. Coldea, O. Stockert, H. von Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, P. Coleman, *Nature*, **407** (2000), 351.
- [23] H. Tsujii, E. Tanaka, Y. Ode, T. Katoh, T. Mamiya, *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000), 5407.

STUDY OF THE ULTRA-LOW TEMPERATURE RESISTANCES OF HEAVY FERMION SYSTEM $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ ^{*}

MENG JI-BAO¹⁾ CHEN ZHAO-JIA¹⁾ LUO JIAN-LIN¹⁾ BAI HAI-YANG¹⁾ WANG WEI-HUA¹⁾ ZHENG PING¹⁾
ZHANG JIE²⁾ SU SHAO-KUI¹⁾ WANG YU-PENG¹⁾

¹⁾ *Laboratory of Extreme Condition Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

²⁾ *Department of Applied Physics, Chongqing University, Chongqing 400044, China*)

(Received 22 March 2001; revised manuscript received 26 April 2001)

ABSTRACT

CeCu_6 is one of heavy fermion materials. The effect of the partly substitution of Cu by Au, Ag, Pd and Pt on the low temperature properties has been intensively studied. In this paper, we study the temperature dependence of resistance of $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ni}_x$ ($x = 0.00, 0.05, 0.10, 0.15, 0.20$) at temperatures below 1K. Experimental result shows that the temperature dependence of resistance changes with increase of doping content x . Below 500mK, the resistance of sample with $x \approx 0.1$ has a linear temperature dependence, showing a typical non-Fermi liquid behavior, while other samples behave as Fermi liquid. This means $x \approx 0.1$ is the critical doping for this system. In the case of Au substitution of Cu, the critical doping of which is also $x = 0.1$, the ground state of the system is changed from Fermi-liquid to non-fermi liquid and antiferromagnetic ordering by volume expansion. But in the present case, the ground state of Ni doping systems changes from FL to NFL due to the magnetism of Ni.

Keywords : heavy fermion system, critical doping, non-Fermi liquid behavior

PACC : 7127, 7128

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19734001).