

磁场对重电子金属材料 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Cd}_x$ 电阻的影响*

姜黎霞¹⁾ 孟继宝²⁾ 陈兆甲²⁾ 雒建林²⁾

¹⁾ 北京联合大学基础部, 北京 100101)

²⁾ 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2004 年 12 月 28 日收到 2005 年 2 月 14 日收到修改稿)

介绍了重电子金属 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Cd}_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$) 在 1.8—300 K 温度范围内, 在磁场 ($\mu_0 H = 0.5, 10 \text{ T}$) 下电阻随温度的变化规律及低温 (1.9, 15 K) 下的磁电阻 ($\mu_0 H = 0—10 \text{ T}$). 实验表明所有样品在零场下的 T_{max} (对应于电阻极大值的温度) 都低于 1.8 K. 加磁场后, T_{max} 随磁场和掺杂量 x 的增加明显向高温方向变化. 此外, 各样品的磁电阻在 1.9 K 全是负值, 温度升高到 15 K 以后, 磁电阻有变为正值的趋势. 从近藤散射和相干散射的角度对这一现象的物理机制进行了分析.

关键词: 重电子系统, 低温电阻, 近藤散射, 相干散射

PACC: 7127, 7128

1. 引 言

CeCu_6 是一个典型的强关联重费米子系统, 也称为重电子金属. 由于低温下重电子材料中存在着近藤 (Kondo) 相互作用和 RKKY 相互作用的竞争, 使得重电子材料在低温下有多种基态: 费米液体、非费米液体、反铁磁、超导和绝缘体等^[1,2]. 大量的实验表明, 低温下重电子的基态与元素的替代、外磁场的影响及外加压力有关. 由于实验条件的限制, 目前多半是采用元素替代 (掺杂) 法和加外磁场的方法来实现基态性质的改变. 我们知道, 重电子材料 CeCu_6 在 3 mK 以上的低温区域呈现费米液体行为^[3]. 在实验上费米液体的表现是: 电子比热系数 $\gamma = C/T$ 、磁化率 χ 均为常数, 电阻率 ρ 与热力学温度 T 的平方成线性关系等. 随着 Cu 原子被原子半径较大或兼有弱磁性的其他元素 (如 Au, Ag, Pt, Pd 等) 替代, 重电子材料 $\text{CeCu}_{6-x}M_x$ ($M = \text{Au}, \text{Ag}, \text{Pd}$) 低温下零场的基态从费米液体 (掺杂量 x 小于临界掺杂量 x_c 时) 向反铁磁长程序基态 ($x > x_c$) 变化. 当掺杂量 x 在 x_c 附近时, 样品呈现非费米液体行为, 其物性在实验上的表现为: 电子比热系数 $\gamma = C/T$ 、磁化率 χ 与热力学温度 T 的负自然对数 ($-\ln T$) 成线性关系, 而电

阻率 ρ 与热力学温度 T 成线性关系等. 在重电子金属材料 $\text{CeCu}_{6-x}M_x$ 中, 对应于 $M = \text{Au}, \text{Ag}, \text{Pd}$, 其 x_c 分别为 0.10, 0.09, 0.05. 当掺杂量 x 的数值超过临界掺杂量 x_c , 并且温度降低到 T_N 以下时, 重电子材料表现出反铁磁有序. 根据实验报道, 在 $x > x_c$ 的反铁磁区域中, T_N 与 x 满足一定的关系, 如对 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ 二者满足线性关系, 对 $\text{CeCu}_{6-x}\text{Pd}_x$ 二者是类抛物线关系^[4]. 与掺杂情况等效, 加磁场同样也会改变重电子金属的基态. 适量掺杂 ($x > x_c$) 的样品无外磁场时的反铁磁基态, 在外场的影响下遭到抑制和破坏, 因而随着磁场的增强, 零场下处于非费米液体态的临界掺杂样品逐渐变成了费米液体态. 反映在 $T-x$ (即温度-掺杂量) 的相图中, 随外场的增强, 临界掺杂量 x_c 的值随之提高. 加压力的情况与加磁场的情况类似, x_c 数值随外加压力的增加而提高. 目前关于以 CeCu_6 为基的重电子金属的研究, 主要还是集中在利用大原子尺寸无磁性的同族原子 (例如 Au, Ag) 大尺寸弱磁性的非同族原子 (例如 Pd, Pt) 与 Cu 的原子尺寸相近的强磁性原子 (例如 Ni) 或与 Cu 等尺寸的无磁性原子 (例如 Zn) 来替代 Cu 原子的方法^[5-11], 目的是通过掺杂来改变晶格常数, 或利用磁性杂质的自身磁性来影响基体中与杂质邻近的 Ce 离子, 从而影响 Ce 离子磁矩与传导电

* 国家自然科学基金 (批准号: 10074080) 资助的课题.

子的近藤相互作用,进而使低温性质发生改变.

至今,我们还未见关于大尺寸、无磁性且与 Cu 非同族(即价电子数不同)的 Cd 掺杂研究的报道.鉴于这种情况,我们利用非常规的方法制备了 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 样品,并且研究了该样品在恒定磁场($\mu_0 H = 0.5, 10 T$)下,在 1.8—300 K 温区的电阻随温度的变化规律以及在恒定温度下($T = 1.9, 15 K$)的磁电阻.

2. 样品的制备

实验中所用的样品 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)用常规电弧炉熔炼法难以实现,这是因为 Cd 元素的熔点较低(321℃),汽化点只有 767℃.用常规电弧炉熔炼时,Cd 元素在高温电弧(约 4000℃)情况下早已汽化成气体状态,由于电弧炉腔壁与铜底样品圆槽均是水冷式,汽化后的 Cd 遇冷降温从而早已凝结在腔壁上.对于少量掺杂下的 Cd 元素,样品中难以留下 Cd 的成分(因为 Cd 的配比量很小).为了得到 Cd 含量准确的样品,我们利用饱和蒸汽压的方法经过计算和实验摸索了一种非常规配比法.样品的具体制作过程如下(1)首先将高纯度的 Ce(99.9%),Cu(99.999%)原料按

1:(6-x) ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)的摩尔比称量配置,将称量配置好的原料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 $2.66 \times 10^{-3} Pa$ 后,用高纯氩气冲洗多遍,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,得到 $CeCu_{6-x}$.(2)把熔炼好的 5 个样品分别封入 5 个真空度优于 $10^{-4} Pa$ 的石英玻璃管中,放入箱式炉在 850℃ 下退火 150 h,然后随炉冷却.(3)将退火后的样品破碎成粉末(使其颗粒尽量细小),再与适当过量(过量数与石英管的有效容积及扩散温度有关)的高纯块状 Cd(99.999%)按配比 $CeCu_{6-x}Cd_{x+\delta}$ (其中 δ 是根据计算和实验得到 Cd 的过量数)充分混合后在压片机上压成饼状并封入高真空石英管中,之后放入箱式炉在 850℃ 下退火 150 h,使 Cd 元素与熔炼好的 $CeCu_{6-x}$ 达到充分扩散混合.此时样品中的 $CeCu_{6-x}$ 未熔化,内部不够致密.(4)将温度进一步升高到 920℃ 保温 20 h,使样品中 $CeCu_{6-x}$ 部分充分熔化并与溶在其中的 Cd 充分混合,制成较好的样品.化学分析证实 Cd 达到预期的配比,x 射线衍射分析表明(与标准谱相比)这些样品是较好的单相,具有与 $CeCu_6$ 一样的正交结构(见图 1,以最大掺杂量 $x = 0.50$ 为例).

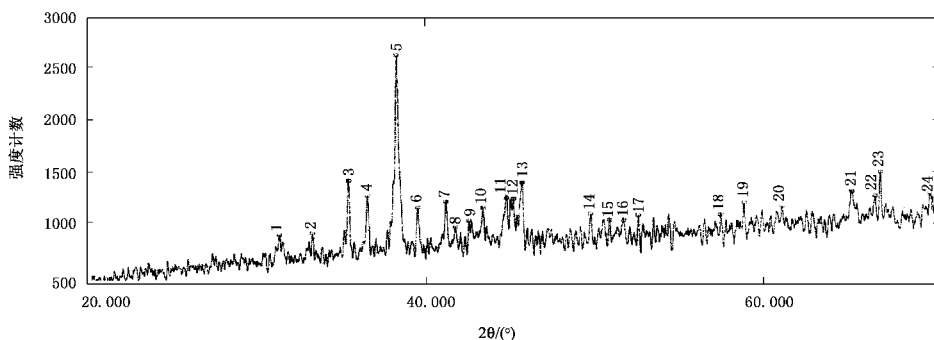


图 1 $CeCu_{5.5}Cd_{0.5}$ 样品的 x 射线粉末衍射谱

把圆饼状样品的一半切成截面为 $1 mm^2$ 的长条,作为测量输运性质的样品.该样品的电阻及磁电阻的测量是在 PPMS 仪器上进行的.电阻测量的温度范围是 1.8—300 K,采用标准的四引线方法.

3. 实 验

低温下,重电子金属 $CeCu_6$ 在零掺杂下的电阻-温度曲线由于近藤散射和相干散射的竞争,在 14 K 出现电阻极大值.在 14 K 以下,电阻由于相干散射

而急剧减小^[12].对 $CeCu_{6-x}M_x$ ($M = Ni, Zn$)的情况,已有的实验数据表明(1)电阻极大对应的温度 T_{max} 随掺杂量的增加而降低(2) M 为强磁性的 Ni 元素与无磁性的 Zn 元素(二者均与 Cu 等原子半径且外层电子构型不同)的情况,掺杂对基体 $CeCu_6$ 产生的效果不同,等量的 Ni 掺杂要比 Zn 掺杂对 T_{max} 的影响更明显,说明磁性杂质 Ni 比无磁性杂质 Zn 更增强了近藤散射^[13-18].

实验表明,重电子金属 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 电阻随温度的变化关系表现出对 Cd 掺杂的敏感性比 Ni, Zn 的掺杂

情况更强. 本文重点研究重电子系统 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$) 的低温电阻随温度的变化规律以及 Cd 含量和磁场的影响. 图 2 是零场下 5 个不同 Cd 含量样品的电阻-温度曲线. 从图 2 可以清楚地看到, 在 1.8—300 K 的温度范围内, 零场下电阻未见其极大值, 而掺杂为 Ni, Zn 的多数样品, 其电阻极大值对应的温度 T_{max} 都高于 1.8 K^[14-18]. 图 2 还反映了近藤散射项 $-c \ln T$ 的系数 c 随掺杂量的增加而增大的趋势.

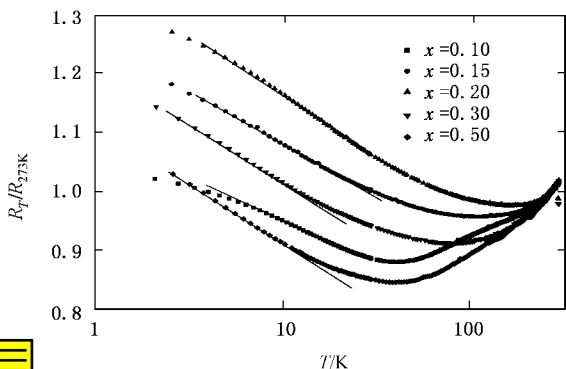
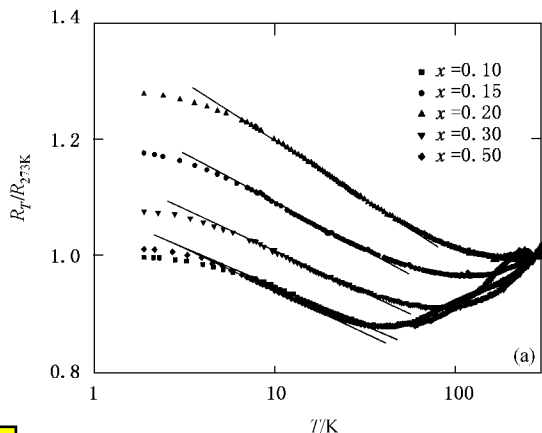


图 2 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$) 的电阻-温度变化曲线 R_T 和 R_{273K} 分别表示温度为 T 和 273 K 时样品的电阻

图 3(a) 是 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 5 个样品在 $\mu_0 H = 5$ T 的外场下电阻-温度关系. 从图 3(a) 可看出, 在温度高



于 1.8 K 的温区没有出现电阻极大值. 然而, 电阻随 $\ln T$ 的变化却说明, 在低温区曲线的斜率 c 减小(与零场情况相比), 说明磁场减弱近藤散射 ($-c \ln T$) 项.

图 3(b) 是 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 5 个样品在 $\mu_0 H = 10$ T 的外场下电阻-温度关系. 从图 3(b) 可看出, 除了 $x = 0.10$ 的样品外, 其他样品的电阻极大已经明显表现出来. 与 5 T 下类似, 在低温区曲线的斜率 c 进一步减小(与零场情况相比), 说明随磁场的增强近藤散射项 ($-c \ln T$) 进一步减弱.

重电子金属基体 $CeCu_6$ 在无外场的低温下电阻极大值对应的温度 T_{max} 是 14 K, 通过掺杂 Cd 元素后, 零场下掺杂样品的 T_{max} 均低于 1.8 K. 说明基体 $CeCu_6$ 掺 Cd 后, 样品的 T_{max} 急剧降低, 与 $CeCu_6$ 掺 Ni, Zn 情况相比较, 表明 Cd 掺杂样品的 T_{max} 的降低应与掺杂元素及掺杂量密切相关. 根据样品测量结果分析可知 (1) 零场情况下, Cd 掺杂量越大 T_{max} 越低. (2) 对某一固定掺杂的样品, T_{max} 随外磁场的加大移向高温方向. (3) 对不同掺杂量的样品, 在外场同等改变量(10 T) 的情况下, T_{max} 的改变量随掺杂量 x 的增加而增大. 此外, 从电阻-温度曲线随外场的变化关系可以看出, 随外场的增强 5 个样品的近藤散射项的系数都在减小.

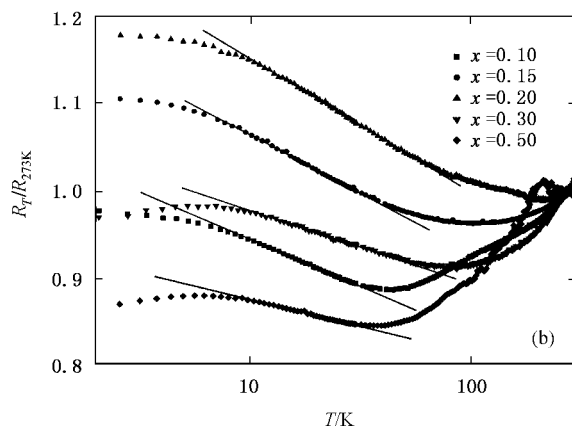


图 3 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 5 个样品在外场下电阻-温度关系曲线 (a) 为 5 T 外场下电阻-温度关系曲线 (b) 为 10 T 外场下电阻-温度关系曲线

图 4(a) (b) 分别是温度 $T = 1.9, 15$ K 时, 重电子金属 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$) 的磁电阻随外场的变化关系. 在温度为 1.9 K 处, 随着外场的增加, 5 个样品的磁电阻都表现出负磁电阻现象. 在温度为 15 K 时, $x = 0.15,$

0.20, 0.30, 0.50 的 4 个样品仍然为负磁电阻, 但比 1.9 K 的负磁电阻明显地减小, 而 $x = 0.10$ 的样品随外场的增加却表现出微弱的正磁电阻现象. 与 1.9 K 的情况类似, 磁电阻随掺杂量 x 的增加而变大.

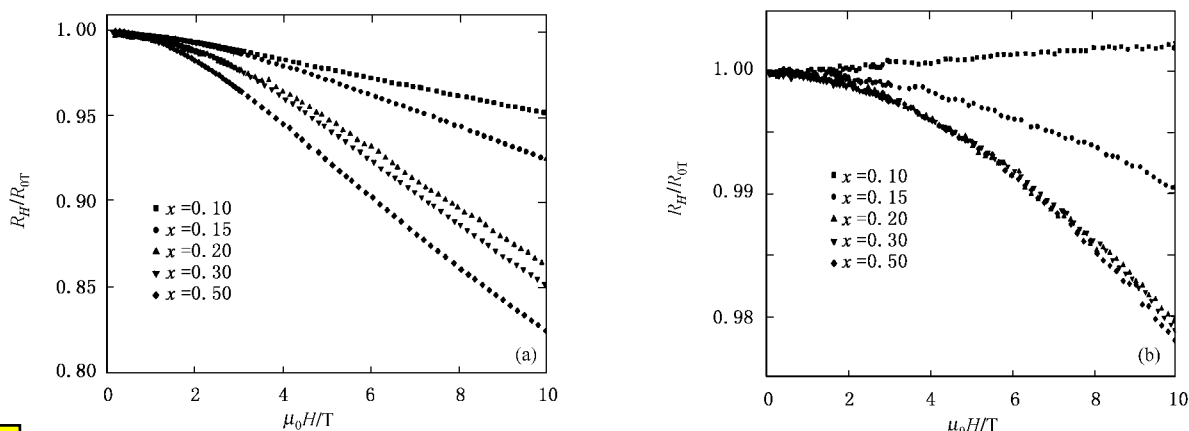


图4 5个样品的磁电阻-外场关系曲线 R_{0T} 和 R_H 分别是零场和加外场下样品的磁电阻。(a)为 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)在温度 $T = 1.9$ K的磁电阻-外场关系曲线 (b)为 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)在温度 $T = 15$ K的磁电阻-外场关系曲线

4. 分析和讨论

重电子系统 $CeCu_{6-x}M_x$ (M 为杂质原子)属于正交结构,其中 Ce 离子在晶格中周期的分布,高温下理论上每个 Ce 离子具有 $2.54\mu_B$ 大小的局域磁矩^[1].在掺杂样品中,杂质原子替代了少数 Cu 原子,同时改变了杂质附近的环境.例如:比 Cu 大的 Au 杂质原子,使其相邻的 Ce-Ce 间距加大,从而减弱这些 Ce 离子局域磁矩与传导电子的交换相互作用(即近藤交换作用),使它们的近藤温度 T_K 下降.作者在已发表的文章中,报道了掺 Ni 和 Zn 的 $CeCu_6$ 样品低温物性的研究结果^[13-18],认为 Ni 和 Zn 与 Cu 的原子尺寸基本相等,不存在类似掺 Au 引起的“尺寸效应”,但由于 Ni 是磁性元素,替代 Cu 位后会与杂质相邻的 Ce 离子的磁矩增强,而 Zn 是无磁性元素,比 Cu 多一个价电子,因此使邻近 Ce 离子的局部电子态密度发生变化.总之,杂质的原子尺寸、磁性、价电子等都会对样品的低温物性及基态产生影响.本文讨论的系统 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)中,杂质 Cd 同时具有比 Cu 原子尺寸大和价电子多这两个因素,无疑应对样品的低温物性有更大的影响.

在重电子金属 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 中,Ce 离子的磁矩来源于较内层的 4f 电子,室温下 Ce 离子之间的相互作用可以忽略.当温度降低时,Ce 离子对传导电子的自旋反转散射过程(即近藤散射)导致电阻中的 $-c \ln T$ 项贡献.随着温度的降低,热运动减弱,近藤交换作用使局域的 Ce 离子磁矩逐渐被传导电子自

旋所屏蔽,同时传导电子和局域的 f 电子杂化使电子的有效质量增大,即成为所谓“重电子”.Ce 磁矩开始被屏蔽的温度叫做近藤温度 T_K ,理论上 $T_K \approx \exp(-1/J\rho)$.这里 J 为近藤交换常数, ρ 为局域的电子态密度.

从近藤点阵模型可知,当温度降低到一定的时候,周期排列的 Ce 磁矩对传导电子的相干散射,逐渐形成了以传导电子为中介的、对应于 f 电子的杂化能带,因此电阻开始降低.在更低的温度下,对应杂化能带的重电子表现费米液体行为,电阻开始减小的温度 T_{max} 可定义为相干温度,实际上相干散射过程在较高的温度已经开始.

根据已有的报道^[12], $CeCu_6$ 在低温下电阻极大值 T_{max} 的温度为 14 K,掺 Au ($x = 0.10$)和 Zn ($x = 0.10$)样品的 T_{max} 分别为 9 和 7 K.但本文的实验结果表明,掺 Cd ($x = 0.10$)样品的 T_{max} 却低于测量时的最低温度 1.8 K.我们认为,掺 Cd 一方面使与杂质相邻的 Ce 离子的 J 减小,导致局部近藤温度降低;另一方面尺寸较大而价电子又多一个的 Cd 替代了一部分 Cu 以后,增加了局部的电子密度,严重地破坏了 Ce 离子的周期性,从而大大减弱了对传导电子的相干散射,因而电阻要在更低的温度下开始下降.

加磁场对所有样品低温电阻影响的趋势都一样,即 T_{max} 都明显上升. $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$)的实验结果表明, $x = 0.10$ 和 0.50 样品的 T_{max} 从低于 1.8 K 分别上升到 2.05 和 6.89 K.根据上述分析,近藤散射的减弱(即近藤温度降低)或相干作用的增强都会引起 T_{max} 上升.我们认为,外磁场不对 Ce 离子的周期性有影响,即外磁场基本上不影

响相干散射,但会大大抑制 Ce 离子磁矩的自旋反转过程,即大大减弱近藤散射,使各样品电阻中的近藤散射项明显变小,这是使 T_{max} 上升的主要原因。

对 $CeCu_{6-x}Cd_x$ 各样品磁电阻的测量结果,使我们进一步认识到在不同温度范围各种散射机制对电阻的贡献大小不同。除了晶格缺陷和无磁杂质引起的电阻常数项以外,低温下产生电阻的机制主要有磁性杂质的近藤散射和声子散射两种。前者随着温度的上升而减弱,后者随着温度的上升而增强。在 1.9 K 时, $CeCu_{6-x}Cd_x$ 各样品都呈现负磁电阻,这说明近藤散射占绝对优势。而在 15 K 时, $x = 0.10$ 样品的磁电阻已经开始呈现正值,意味着传导电子被声子的散射已经不可忽略。相信在更高的温度下,所有样品的磁电阻都会出现正值。

5. 结 论

本文报道了对重电子金属 $CeCu_{6-x}Cd_x$ ($x =$

0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50) 低温电阻及磁电阻的测量结果,分析了样品在低温下各种散射机制受掺杂浓度和外磁场的影响情况。为了克服低熔点金属掺杂时容易挥发的困难,我们摸索了一套特定工艺过程,获得很好的单相样品。实验中电阻极大值温度 T_{max} 的变化趋势表明,掺 Cd 比掺 Au, Zn, Ni 等对样品的低温输运性质的影响都要大得多。其原因是 Cd 杂质同时具有原子尺寸大和价电子多的特点,前者使杂质附近 Ce 离子磁矩的近藤温度下降,而两个因素共同的影响是使 Ce 离子的周期性严重破坏,从而减弱相干散射。外磁场使所有样品的 T_{max} 都上升,是因为磁场抑制了 Ce 离子磁矩对传导电子的自旋反转散射过程,即减小电阻中的 $-c \ln T$ 项。在 1.9 K 时, $CeCu_{6-x}Cd_x$ 各样品都呈现负磁电阻,这说明在此温度近藤散射占绝对优势。而当温度高于 15 K 时,样品出现正磁电阻的趋势,意味着此时晶格散射已经不可忽略。

- [1] Feng D, Jin G J 1992 *New Perspective on Condensed Matter Physics* (Shanghai: Shanghai Scientific and Technical Press) p78 (in Chinese)
[冯端、金国钧 1992 凝聚态物理学新论(上海:上海科学技术出版社)第 78 页]
- [2] Cao L Z, Chen Z J, Yan S S 1999 *Low Temperature Physics* (Hefei: University of Science and Technology of China Press) p343 (in Chinese)
[曹烈兆、陈兆甲、阎守胜 1999 低温物理学(合肥:中国科学技术大学出版社)第 343 页]
- [3] Tsujii H, Tanaka E, Ode Y *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5407
- [4] Stewart G R 1984 *Rev. Mod. Phys.* **56** 779
- [5] von Löhneysen H, Neubert A, Pietrus T *et al* 1998 *Eur. Phys. J. B* **447—455** 147
- [6] von Löhneysen H 1996 *Phys. Condens. Matter* **8** 9689
- [7] Rosch Δ , Schröder Δ , Stockert O *et al* 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 159
- [8] Amato Δ , Jaccard D 1987 *J. Low Temp. Phys.* **68** 371
- [9] von Löhneysen H, Huster F, Mock S *et al* 1997 *Physica B* **230—232** 550
- [10] Benz J, Pfeleiderer C, Stockert O *et al* 1999 *Physica B* **259—261** 380

- [11] Stockert O, Schröder A, von Löhneysen H *et al* 1999 *Physica B* **259—261** 383
- [12] von Löhneysen H, Schröder Δ , Trappmann T *et al* 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **108** 45
- [13] Meng J B, Chen Z J, Luo J L *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1632 (in Chinese)
[孟继宝、陈兆甲、雒建林等 2001 物理学报 **50** 1632]
- [14] Meng J B, Chen Z J, Luo J L *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 129 (in Chinese)
[孟继宝、陈兆甲、雒建林等 2002 物理学报 **51** 129]
- [15] Meng J B, Chen Z J, Luo J L *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2812 (in Chinese)
[孟继宝、陈兆甲、雒建林等 2002 物理学报 **51** 2812]
- [16] Meng J B, Chen Z J, Luo J L *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1177 (in Chinese)
[孟继宝、陈兆甲、雒建林等 2004 物理学报 **53** 1177]
- [17] Meng J B, Chen Z J, Luo J L *et al* 2003 *Chin. Jow Low Temp. Phys.* **25** 1 (in Chinese)
[孟继宝、陈兆甲、雒建林等 2003 低温物理学报 **25** 1]
- [18] Jiang L X, Meng J B, Xia Z Y *et al* 2004 *Chin. Phys.* **13** 2130

Effect of magnetic field on the transport properties of heavy electron compounds $\text{CeCu}_{6-x}\text{Cd}_x$ *

Jiang Li-Xia¹⁾ Meng Ji-Bao²⁾ Chen Zhao-Jia²⁾ Luo Jian-Lin²⁾

¹⁾*Department of Basic Science, Beijing Union University, Beijing 100101, China*

²⁾*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

(Received 28 December 2004; revised manuscript received 14 February 2005)

Abstract

We report the low-temperature resistance under a magnetic field ($\mu_0 H = 0, 5$ and 10 T) within the temperature range from 1.8 to 300 K and low temperature ($T = 1.9$ and 15 K) magneto-resistance ($\mu_0 H = 0-10$ T) of heavy electron compounds $\text{CeCu}_{6-x}\text{Cd}_x$ ($x = 0.10, 0.15, 0.20, 0.30, 0.50$). The experiments show that the T_{\max} (corresponding to the maximal resistance) of all samples are not observed over 1.8 K under zero magnetic field. When a magnetic field is applied, the T_{\max} increases with increasing magnetic field and doping content x . Meanwhile, the magneto-resistances are all negative at 1.9 K and the positive magneto-resistance of part of samples is observed at 15 K. This phenomenon can be explained by Kondo scattering and coherent scattering.

Keywords : heavy electron system, low-temperature resistance, Kondo scattering, coherent scattering

PACC : 7127, 7128

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10074080).