

Влияние индуцированного нейтронным облучением разупорядочения на свойства нормального и сверхпроводящего состояний в соединениях $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$

А. С. Кривошеков, А. Е. Карькин С. В. Наумов, Н. В. Костромитина, Б. Н. Гощицкий
Институт Физики металлов, 620219, Екатеринбург, ГСП-170

Считается, что основное состояние систем с тяжелыми фермионами (ТФ) возникает при непрерывном переходе от высокотемпературной фазы, в которой f -электроны выглядят как локализованные и имеют определенный магнитный момент, к низкотемпературной Ферми-жидкостной фазе, в которой f -электроны выглядят как делокализованные и имеют большую эффективную массу m^* . В низкотемпературной области электросопротивление имеет вид $\rho_l(T) = \rho_{0l} + AT^2$ с большим коэффициентом A , отвечающим за электрон-электронное рассеяние, в то время как в области высоких температур $\rho(T)$ обычно принимает вид $\rho_2(T) = \rho_{02} - B \ln(T)$, где последний член описывает магнитное рассеяние Кондо типа. На самом деле легкие носители также могут давать существенный вклад в проводимость при низких температурах. Для того чтобы выявить особенности электронных транспортных свойств ТФ соединений, мы изучили влияние атомного разупорядочения, индуцированного нейтронным облучением, на $\rho(T)$ и постоянную Холла R_H монокристаллов $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ с $m^* \sim 50m_e$, которое представляет интерес из-за сверхпроводимости, наблюдаемой при $T_C = 1.85$ К [1], и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$ с относительно более низкой массой и более высокой $T_C \approx 3.5$ К.

Монокристаллы $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$ выращивали из раствора расплавленной сурьмы [1]. Исходные компоненты были помещены в графитовый контейнер, который, в свою очередь, был помещен в откачанную кварцевую трубку. Трубка была медленно (~ 20 часов) нагрета до 950°C , выдержанна при этой температуре в течение 3-5 часов, а затем охлаждена до 640°C со скоростью $(2-5)^\circ\text{C}/\text{час}$. Кристаллы имели кубическую структуру [2] с параметрами решетки $a_0 = 9.301$ Å для $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $a_0 = 9.270$ Å для $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$, и относительно маленькими величинами $\rho_0 \sim 5$ мкОм*см. Сверхпроводимость наблюдали при $T_C = 1.8$ К в $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и 3.35 К в $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$. Кристаллы размерами $1.0 \cdot 0.6 \cdot 0.1$ мм³ были облучены быстрыми нейтронами (флюенс $\Phi = 2 \cdot 10^{19}$ см⁻² и $5 \cdot 10^{18}$ см⁻² для $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$, соответственно) при $T_{\text{irr}} = (330 \pm 10)$ К. Облученные образцы были изохронно (20 мин.) отожжены при температурах от 100 до 450°C .

Исходный образец $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ демонстрирует очень сложную температурную зависимость $\rho(T)$ (рис. 1). В области $T < 5$ К $\rho(T)$ имеет приблизительно линейную температурную зависимость вместо ожидаемой квадратичной, кроме того, $\rho(T)$ сильно меняется под действием магнитного поля. При $T = (10 - 50)$ К $\rho(T)$ демонстрирует квадратичную зависимость, в то время как при $T > 200$ К она

вновь линейна. Радиационное разупорядочение приводит к значительной модификации транспортных свойств как $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$, так и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$. В $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ наклон $\rho(T)$ в области высоких температур изменяется от $d\rho/dT > 0$ в исходном состоянии до $d\rho/dT < 0$ в облученном, и восстанавливается после высокотемпературного отжига при $T_{\text{ann}} = 200^\circ\text{C}$. В области низких температур происходит увеличение остаточного электросопротивления. Магнитное поле H приводит к качественным изменениям зависимости $\rho(T)$: от линейной в области низких температур при $H = 0$ к логарифмической при $H = 13.6$ Т (рис. 1).

Постоянная Холла $R_H(T)$ также демонстрирует существенные изменения при облучении (рис. 2), число Холла $n_H = 1/(R_H e)$ при низкой температуре уменьшается от 2.8 до $0.46 \cdot 10^{21}$ см⁻³.

Исходные значения $\rho(T)$ и $R_H(T)$ практически полностью восстанавливаются после отжига при температуре 450°C , однако, сверхпроводимость не появляется при $T > 1.45$ К.

Аналогичные эффекты мы наблюдали в монокристалле $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$.

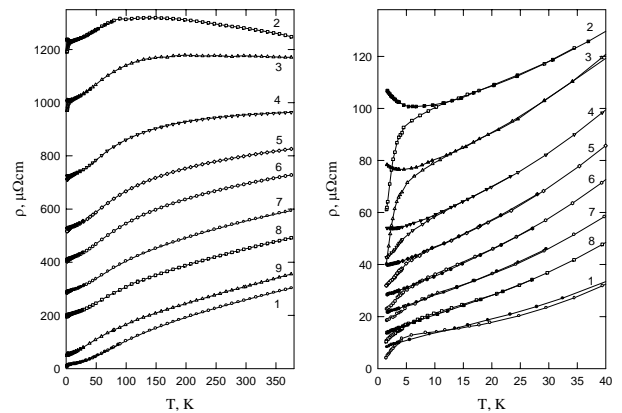


Рис. 1. Электросопротивление $\rho(T)$ для исходного (1), облученного и отожженного при $T_{\text{ann}} = 100^\circ\text{C}$ (2), 150°C (3), 200°C (4), 250°C (5), 300°C (6), 350°C (7), 400°C (8) и 450°C (9) монокристалла $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ в магнитном поле $H = 0$ (светлые символы) и $H = 13.6$ Т (темные символы).

Очевидно, сильная температурная зависимость $R_H(T)$ появляется из-за многозонной природы электронного транспорта с двумя, по крайней мере, типами свободных носителей зарядов (тяжелые и легкие дырки) с качественно различными температурными зависимостями электросопротивлений. Для описания температурной зависимости $R_H(T)$ в поле

$H = 13.6$ Т электросопротивление и R_H могут быть представлены в форме:

$$\rho_1 = \rho_{01} + A_1 T^2,$$

$$\rho_2 = \rho_{02} + A_2 T - B \ln(T),$$

$$R_H = (R_{H1}/(\rho_1)^2 + R_{H2}/(\rho_2)^2)/(1/\rho_1 + 1/\rho_2)^2,$$

где индексы 1 и 2 связаны с дырками двух типов (тяжелые и легкие).

Подгонка (сплошные линии на рис. 2) показывает, что величина R_{H2} остается приблизительно постоянной, в то время как R_{H1} возрастает, то есть концентрация тяжелых дырок $n_{H1} = 1/R_{H1}$ уменьшается при облучении.

Удовлетворительное описание $\rho(T)$ в поле $H = 13.6$ Т (рис. 1) может быть достигнуто при использовании для проводимости выражения $1/\rho = 1/\rho_1 + 1/\rho_2$. Кривые в нулевом поле не могут быть описаны моделью с двумя типами носителей заряда из-за особенностей электросопротивления в низкотемпературной области $T < 5$ К (рис. 1).

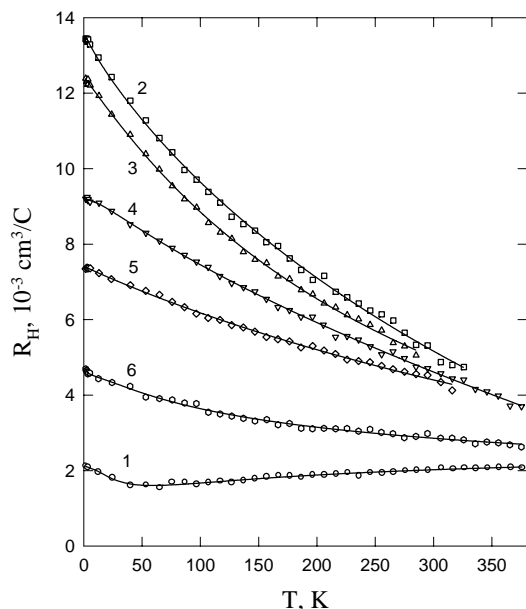


Рис. 2. Постоянная Холла $R_H(T)$ для исходного (1), облученного (2) и отожженного при $T_{\text{ann}} = 100^\circ\text{C}$ (3), 200°C (4), 300°C (5) и 400°C (6) монокристалла $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ в магнитном поле $H = 13.6$ Т.

Для объяснения большой величины положительного магнетосопротивления мы оценили величину обратной подвижности μ^{-1} , так как «обычное» магнетосопротивление (связанное с искажением электронных траекторий) определяется параметром $(H/\mu^{-1})^2$. Используя низкотемпературные значения $\rho \approx 1200$ мОм*см и $R_H \approx 14$ см³/С для облученного образца, мы получаем $\mu^{-1} \approx 10^3$ Т, поэтому этим эффектом можно пренебречь в полях до 13.6 Т. Природа влияния H на низкотемпературную область $\rho(T)$ (также называемой упорядочивающейся фазой, возникающей в больших полях), наблюдаемого на кривых с разным беспорядком (рис. 1), обусловлена

Зеемановским расщеплением уровней атомов Pr^{3+} $J=4$, возникающим из-за взаимодействия между $4-f$ электронами и электронами проводимости [3].

В заключение мы показали, что атомное упорядочение соединений $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$ приводит к существенной перестройке электронной структуры, при этом происходит подавление сверхпроводимости и уменьшение концентрации тяжелых носителей заряда. Положительное магнетосопротивление, наблюдаемое в кристаллах с различной степенью беспорядка только при низкой температуре – это свидетельство воздействия магнитного поля на зону электронов проводимости. Электронные транспортные свойства в соединениях $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ и $\text{LaRu}_4\text{Sb}_{12}$ могут быть описаны двухзонной моделью с двумя типами носителей зарядов: тяжелыми и легкими дырками.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минпромнауки РФ (Гос. Контракты № 40.012.1.1.1150, № 40.012.1.1.1356/Договор № 12/04), Программы государственной поддержки ведущих научных школ РФ (Проект № НШ-639.2003.2), РФФИ (Проект № 04-2-16053) и Программы фундаментальных исследований Президиума РАН «Квантовая макрофизика» (Гос. Контракт № 1000-251/П-03/040-348-11054-269, Проект № 3 УрО РАН).

1. E. D. Bauer et al., Phys. Rev. B **65** (2002) 100506(R).
2. W. Jeitscho et al., Acta Crystallogr. B **33** (1977) 3401.
3. P.-C. Ho et al., Phys. Rev. B **67** (2003) 180508(R).