

ОСОБЕННОСТИ ЭФФЕКТОВ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ПОЛЯ В ТЯЖЕЛОФЕРМИОННЫХ СОЕДИНЕНИЯХ НА ОСНОВЕ CeInCu_2

В. Н. Лазуков*, П. А. Алексеев, Е. С. Клементьев, И. П. Садиков

Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

Н. Б. Кольчугина, О. Д. Чистяков

Институт металлургии им. А. А. Байкова
117911, Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 ноября 1998 г.

Изучена эволюция спектров неупругого магнитного рассеяния нейтронов соединения с кубической симметрией CeInCu_2 в интервале температур 10–130 К, а также их трансформация при изменении температуры Кондо T_K за счет замещения ионов церия в системах $\text{Ce}_{1-x}(\text{La}, \text{Y})_x\text{InCu}_2$ при $T = 10$ К. Оказалось, что энергия перехода между основным и возбужденным состояниями $4f$ -электронов (Δ_{CF}) в кристаллическом электрическом поле в CeInCu_2 увеличивается при возрастании заселенности основного состояния с понижением температуры, а его интенсивность изменяется слабо. Такое поведение противоречит представлениям о классических одноионных эффектах кристаллического электрического поля. Установлено, что масштаб наблюдаемых изменений в спектрах возбуждений $4f$ -электронов зависит от величины T_K и нечувствителен к разупорядочению в редкоземельной подрешетке. Таким образом, несмотря на выполнение условия $T_K \ll \Delta_{CF}$, гибридизация с состояниями в зоне проводимости существенно влияет на все параметры спектра возбуждений основного мультиплета $4f$ -электронов при низких температурах.

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из основных взаимодействий, формирующих физические свойства соединений на основе редкоземельных (РЗ) элементов при низких температурах, является взаимодействие $4f$ -электронов с потенциалом кристаллического электрического поля, которое снимает вырождение основного мультиплета РЗ-ионов. В тяжелофермионных соединениях кроме этого взаимодействия важную роль в формировании основного состояния играет также гибридизация состояний $4f$ -электронов с состояниями электронов в зоне проводимости, что обычно описывается через кондо-взаимодействие. Характерная энергия (Δ_{CF}) взаимодействия $4f$ -электронов с потенциалом кристаллического электрического поля, как правило, существенно превышает энергетический масштаб кондовского взаимодействия (T_K). Этот факт, по-видимому, и обусловил учет только снятия вырождения мультиплета J за счет кристаллического поля при определении исходной волновой функции основного состояния в различных модельных представлениях о тяжелофермионных системах. Влияние же кондовского взаимодействия на спектр возбуждений $4f$ -электронов сводилось к перенормировке основного состояния

*E-mail: paval@sftt.kiae.su, lvn@issph.kiae.ru

и к заметному уширению переходов между уровнями кристаллического электрического поля (см. [1, 2] и ссылки в них). Между тем, взаимодействие с кристаллическим электрическим полем определяет для основного и возбужденных состояний $4f$ -мультиплета не только величину расщепления, кратность вырождения, но и симметрию волновых функций состояний, которые гибридизуются с состояниями в зоне проводимости, что может проявляться в определенных температурных эффектах. Первые экспериментальные указания на возможный механизм влияния гибридизации на формирование спектра возбуждений $4f$ -электронов в классическом тяжелофермионном соединении с гексагональной симметрией CeAl_3 были обнаружены в работе [3]. В частности, в этой работе наблюдалась сильная модификация спектров неупругого магнитного рассеяния нейтронов (изменение положения и интенсивности неупругих переходов, связанных с энергией и волновыми функциями состояний f -электронов) при понижении температуры. В недавней работе [4] для $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ (соединение с более низкой, орторомбической, кристаллической симметрией), в котором ионы Ce находятся в тяжелофермионном состоянии, также наблюдались качественно похожие эффекты.

В системах CeAl_3 и $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ основной мультиплет ионов церия шестикратно вырожден, расщепляется в кристаллическом электрическом поле на три дублета и в зависимости от симметрии основного состояния в спектрах неупругого магнитного рассеяния нейтронов при низких температурах могут наблюдаться один или два перехода из основного состояния. Поскольку ширины переходов имеют величину, сравнимую с энергией возбуждения, разделение и анализ температурных изменений представляет определенную трудность. При более высокой симметрии окружения, кубической, основной $4f$ -мультиплет ионов церия расщепляется лишь на две группы состояний: дублет Γ_7 и квартет Γ_8 , т. е. в спектрах неупругого магнитного рассеяния нейтронов может наблюдаться только один переход между уровнями кристаллического электрического поля. Такой спектр является более простым и удобным для экспериментального и теоретического изучения перенормировки расщепления кристаллического электрического поля и волновых функций в условиях гибридизации. С другой стороны, исследование и сопоставление спектров возбуждения соединений с различной кристаллической симметрией позволяет установить общие закономерности и особенности в формировании основного состояния тяжелофермионных соединений. Поэтому представляется целесообразным экспериментально исследовать температурную эволюцию спектров возбуждения $4f$ -электронов в тяжелофермионном соединении кубической симметрии в области температур от значений ниже T_K до величин, превышающих Δ_{CF} , и сопоставить с аналогичными результатами для соединений с более низкой кристаллической симметрией [3, 4].

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Подходящим объектом для изучения роли гибридизации в формировании спектра возбуждений $4f$ -электронов является тяжелофермионное соединение на основе церия CeInCu_2 . Данное соединение имеет кубическую симметрию локального окружения $R\bar{3}$ и относится к структурному типу $L2_1$ [5]. Значение коэффициента при электронном вкладе в теплоемкость при экстраполяции зависимости C/T из интервала 10–20 К к $T = 0$ составляет для этого соединения $\gamma = 247$ мДж/(моль·К²) [6], оно увеличивается при понижении температуры и достигает $\gamma = 1200$ мДж/(моль·К²) при $T < 1.4$ К [6–8]. Столь

большое значение γ при низких температурах определяется, по-видимому, возникновением магнитного порядка при $T < 2$ К [6, 9]. Магнитная восприимчивость отклоняется от закона Кюри—Вейса при $T < 30$ К, и экстраполяция величины χ при $T \rightarrow 0$ К дает значение $\chi(0) = 37 \cdot 10^{-3}$ ЭМЕ/моль [7], что позволяет рассматривать CeInCu_2 как тяжелофермионное соединение. На основе низкотемпературных магнитных и термодинамических данных [6–8, 10] температура Кондо T_K для CeInCu_2 была оценена как ≈ 4 К. С другой стороны, появление магнитного порядка при низких температурах [6] может приводить к увеличению значения γ и, тем самым, давать заниженную оценку T_K (исходя из величины $\gamma = 247$ мДж/(моль·К²) имеем $T_K \approx 20$ К).

В измерениях температурной зависимости магнитной составляющей сопротивления CeInCu_2 была обнаружена сильная зависимость положения максимума T_{max} (связанного с T_K) от приложенного гидростатического давления ($\Delta T_{max}/\Delta P \approx 24$ К/ГПа до 1.55 ГПа) [11], что свидетельствует о высокой чувствительности T_K к давлению. Эта особенность соединения позволяет изучать влияние величины кондовского взаимодействия на формирование и свойства основного состояния. При проведении нейтронных измерений удобнее для изменения T_K вместо гидростатического внешнего давления использовать «химическое давление», т. е. замещение ионов церия на меньшие по размеру ионы Y (что соответствует приложению положительного давления и увеличению T_K) или большие по размеру ионы La («отрицательное» давление, уменьшение T_K). Необходимо отметить, что при химическом замещении в редкоземельной подрешетке системы CeInCu_2 не происходит изменения типа ионов в ближайшем окружении церия, состоящим из восьми ионов меди. Это обстоятельство позволяет считать, что в первом приближении ионная составляющая потенциала кристаллического электрического поля, которая, как известно [12], определяется в основном ближайшим окружением, остается неизменной при замещении ионов Ce. Электронная составляющая потенциала кристаллического электрического поля, существенная для металлов, также может рассматриваться как неизменная при изовалентном замещении, что подтверждено экспериментальными исследованиями [12].

Нейтронные исследования спектра магнитных возбуждений CeInCu_2 проводились в [8, 10]. В них было обнаружено, что при $T = 5$ К в спектре есть один неупругий пик с максимумом около 8 мэВ, связанный с возбуждением из основного состояния, и квазиупругий пик с полушириной на полувысоте ≈ 0.35 мэВ. В [8, 10] было сделано заключение, что при повышении температуры неупругий пик уширяется и при $T > 50$ К трансформируется в квазиупругий пик. Авторы связывали наблюдаемую эволюцию неупругого пика с релаксационными процессами, рассмотренными в [13]. Такое заключение не согласуется с результатами недавних измерений других тяжелофермионных соединений, в частности CeAl_3 [3], и требует дополнительной экспериментальной проверки.

Поликристаллические образцы $\text{Ce}_{1-x}(\text{La}, \text{Y})_x\text{InCu}_2$ ($x = 0$ и 0.2) и структурный немагнитный аналог LaInCu_2 были приготовлены в дуговой печи в атмосфере аргона. Рентгеноструктурный анализ показал, что все образцы соответствуют структурному типу CeInCu_2 . В пределах экспериментальной точности ($\approx 3\%$) других фаз обнаружено не было. Параметры решетки для CeInCu_2 ($a = 0.67894 \pm 0.00003$ нм) и LaInCu_2 ($a = 0.68512 \pm 0.00004$ нм) хорошо согласуются с опубликованными данными.

Результаты измерений зависимости параметра решетки от концентрации ионов церия представлены на вставке рис. 1. В пределах изученных концентраций постоянная решетки линейно (и значительно) изменяется при уменьшении содержания Ce. Отсут-

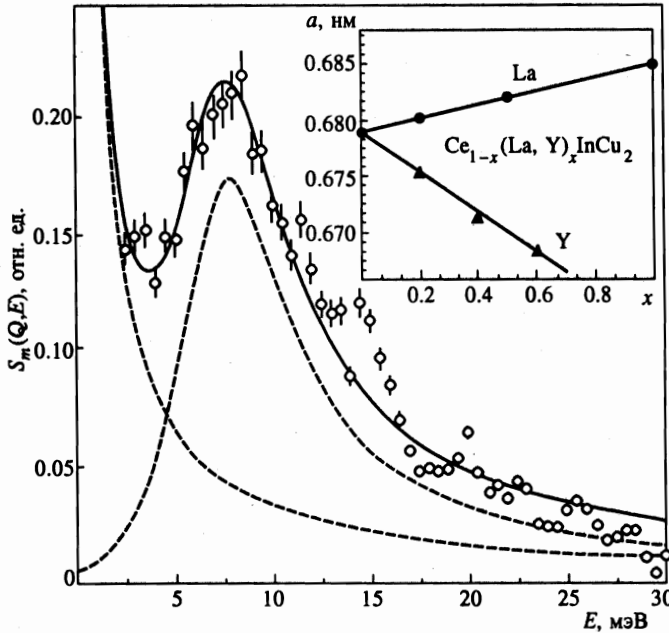


Рис. 1. Магнитная компонента спектральной функции $S_m(Q, E)$ для $CeInCu_2$, полученная из спектров неупругого рассеяния нейтронов при $T = 10$ К. Точки — эксперимент (см. текст). Линии — подгонка лоренцевскими спектральными функциями: штриховые линии — неупругая ($E_{in} = 6.98 \pm 0.09$ мэВ, $\Gamma_{in} = 7 \pm 1$ мэВ) и квазиупругая ($\Gamma_{qe} = 1.4$ мэВ) компоненты, сплошная линия — суммарная кривая. На вставке — зависимость от концентрации параметра кристаллической решетки кубической симметрии для $Ce_{1-x}(La, Y)_xInCu_2$. Погрешность определения постоянной решетки меньше размера символа

ствие изломов на зависимости параметра решетки от концентрации позволяет предположить, что не происходит изоструктурного фазового перехода в состояние с промежуточной валентностью (перехода типа $\gamma \rightarrow \alpha$ в Ce), т.е. ионы церия остаются в тяжелофермионном режиме. Для нейтронных экспериментов были выбраны два образца с одинаковой концентрацией ионов церия, но с противоположным эффектом «химического» давления: $Ce_{0.8}Y_{0.2}InCu_2$ и $Ce_{0.8}La_{0.2}InCu_2$. Сравнение полученных постоянных решетки при замещении на Y и при приложении гидростатического давления [14] позволило оценить, что замещение 20% церия эквивалентно приложению давления ~ 1 ГПа. На основе результатов работы [14] можно предположить, что температура T_K увеличивается пропорционально увеличению давления. В этом случае приложение давления 1 ГПа должно привести к росту T_K примерно в два раза. Экстраполируя эту зависимость в область «отрицательных» давлений, получим меньшую величину, $\approx 0.7T_K$, для образца с лантаном.

Измерения спектров неупругого магнитного рассеяния нейтронов на указанных образцах выполнены на спектрометре по времени пролета КДСОГ-М (реактор ИБР-2, ЛНФ, ОИЯИ) при фиксированной конечной энергии нейтронов $E_f = 4.9$ мэВ (использовался пирографитовый анализатор) в температурном интервале 10–130 К. Энергетическое разрешение для упругого пика составляло 0.5 мэВ. Измерения при $T = 100$ К образцов $CeInCu_2$ и $Ce_{0.8}Y_{0.2}InCu_2$ проводились с разрешением около 1.5 мэВ. Порош-

ковые образцы были изготовлены в виде набора пластин толщиной около 1 мм в тонкой алюминиевой фольге, что позволяло получить пропускание нейтронов $\approx 80\%$ при $E = 25$ мэВ. Интервал углов рассеяния нейтронов составлял 30° – 90° .

Для получения функции рассеяния $S(Q, E)$ в каждый из полученных спектров неупругого рассеяния нейтронов вводилась поправка на фон, проводились нормировка на спектр падающих нейтронов и суммирование по углам рассеяния в интервале 30° – 90° . Возможная неоднородность в толщинах образцов затрудняет корректный учет поправки на поглощение (самоэкранировка) образца, которая уменьшается с увеличением переданной энергии. Однако количественная оценка показывает, что этот эффект от самоэкранировки при учете реального, относительно высокого пропускания образцов компенсируется поправкой на магнитный формфактор $F^2(Q)$ (изменение интенсивности рассеяния при изменении переданного импульса (энергии) нейтронов для фиксированного угла рассеяния), которая имеет обратную зависимость от переданной энергии. Поэтому эти поправки не вводились.

Для оценки фоновой компоненты спектров неупругого рассеяния нейтронов для CeInCu_2 был использован спектр неупругого рассеяния нейтронов структурного немагнитного аналога LaInCu_2 . Фоновые компоненты определялись по спектрам LaInCu_2 , измеренным в тех же экспериментальных условиях. Пример полученного спектра неупругого магнитного рассеяния нейтронов $S_m(Q, E)$ для CeInCu_2 при $T = 10$ К приведен на рис. 1. Все спектры, полученные для других образцов, имели качественно подобный вид, отличающийся только параметрами неупругого пика. Некоторые различия в энергетических положениях максимумов и относительных интенсивностях пиков в обобщенной плотности фоновых состояний для образцов на основе лантана и исследуемых образцов приводили к появлению небольших осцилляций в спектрах $S_m(Q, E)$ для соединений на основе CeInCu_2 (рис. 1), не связанных с магнитным рассеянием.

Для определения параметров, характеризующих спектр возбуждений $4f$ -электронов, проводилась подгонка зависимости $S_m(Q, E)$ с помощью двух лоренцевских спектральных функций [15] с энергетическим положением $E_{qe} = 0$ мэВ (квазиупругое рассеяние) и с $E_{in} \neq 0$ мэВ (неупругое рассеяние):

$$S_m(Q, E) \propto \frac{F^2(Q)E}{1 - \exp(-E/kT)} \left[\frac{\Gamma_{qe}/2}{(\Gamma_{qe}/2)^2 + E^2} + \frac{\Gamma_{in}/2}{(\Gamma_{in}/2)^2 + (E - E_{in})^2} \right], \quad (1)$$

где Γ_{qe} и Γ_{in} — ширины квазиупругого и неупругого пиков, $F(Q)$ — магнитный формфактор.

Поскольку энергетическое разрешение в данных измерениях было недостаточным для определения параметров квазиупругой компоненты, при подгонке спектров для CeInCu_2 была использована температурная зависимость Γ_{qe} , полученная в работе [10]. В подгонке спектров $S_m(Q, E)$ для образцов с частичным замещением церия в качестве начальных параметров использовались данные, полученные для спектров CeInCu_2 .

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные энергии положений максимумов лоренцевских пиков и их интегральные интенсивности представлены на рис. 2. Для CeInCu_2 максимум $S(Q, E)$ соответствует $E_{in} = 6.98 \pm 0.09$ мэВ при $T = 10$ К. При повышении температуры неупругий пик сохраняется, но его энергия в магнитном спектре уменьшается до $E_{in} = 6.4 \pm 0.1$ мэВ

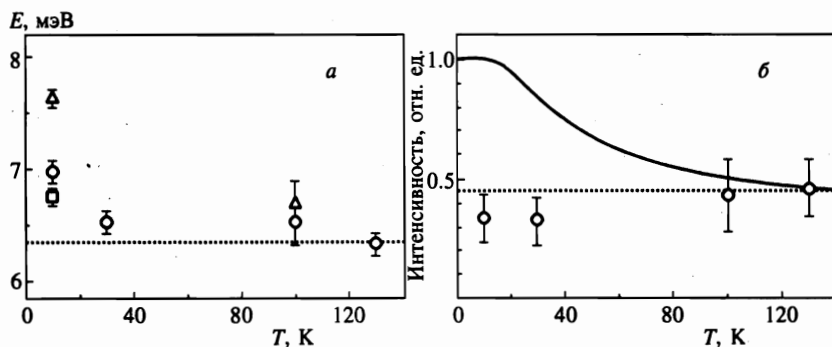


Рис. 2. *a* — Температурная зависимость энергии E максимума неупругого пика в спектрах неупругого магнитного рассеяния нейтронов: \circ — CeInCu_2 , Δ — $\text{Ce}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{InCu}_2$, \square — $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{InCu}_2$. Пунктир соответствует $E = 6.45$ мэВ. *б* — Температурная зависимость интегральной интенсивности неупругого магнитного рассеяния нейтронов в спектрах CeInCu_2 , нормированная на интенсивность при $T = 130$ К. Сплошная линия — расчет интенсивности неупругого перехода между уровнями $4f$ -мультиплета церия в кубическом кристаллическом электрическом поле для схемы расщепления с дублетом Γ_7 в качестве основного уровня и энергией расщепления 7 мэВ. Пунктир — относительная интенсивность 0.45. Экспериментальные и расчетные данные «привязаны» к экспериментальным при $T = 130$ К

при $T = 130$ К. В соединении с замещением 20% церия на иттрий неупругий пик имеет большую энергию ($E_{in} = 7.63 \pm 0.08$ мэВ), которая заметно уменьшается ($E_{in} = 6.7 \pm 0.2$ мэВ) при увеличении температуры до $T = 100$ К. Замещение церия на лантан приводит к незначительному уменьшению энергии максимума магнитного пика ($E_{in} = 6.76 \pm 0.08$ мэВ) (рис. 2а).

Полученный в настоящей работе спектр магнитных возбуждений соединения CeInCu_2 при $T = 10$ К хорошо согласуется с результатом работы [10]. Различия при высокой температуре, по-видимому, связаны с учетом в [10] вклада от фоннного рассеяния. Согласно результатам измерений магнитной восприимчивости и теплоемкости CeInCu_2 [7], основным состоянием является дублет, а возбужденным — квартет. Обращает на себя внимание тот факт, что при понижении температуры от 130 К заметно (на ≈ 0.6 мэВ) увеличивается энергия неупругого пика. Речь идет об увеличении энергии максимума спектральной функции E_{in} , а не экспериментально наблюдаемого пика, который смещается заметно больше в силу влияния теплового фактора (см. формулу (1)). Наибольшее изменение происходит в интервале температур 30–10 К (рис. 2). В этом интервале температур постоянная решетки изменяется менее чем на $6 \cdot 10^{-5}$ нм [11], что может привести лишь к незначительному сдвигу уровней, который много меньше экспериментальной погрешности определения положения пика, достигнутой в данной работе. Это обстоятельство не позволяет связать наблюдаемые эффекты с изменением потенциала кристаллического электрического поля за счет изменения расстояния до ближайшего окружения редкоземельного иона.

Следует отметить, что в исследованном интервале температур обнаружена и аномальная температурная зависимость интегральной интенсивности неупругого магнитного рассеяния. На рис. 2б представлены экспериментальные данные по температурным зависимостям интегральной интенсивности неупругого рассеяния и результаты

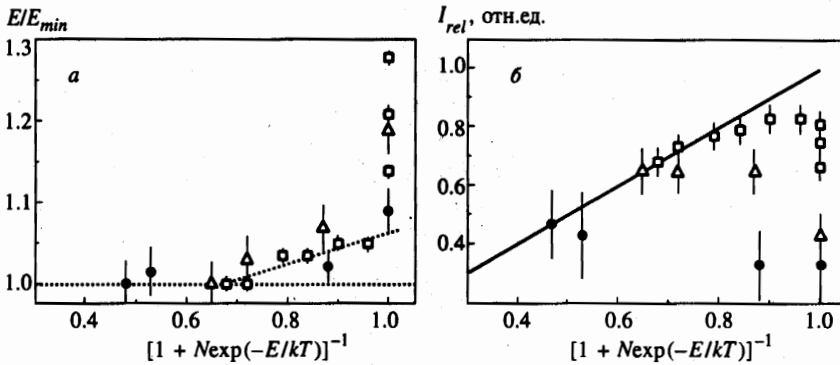


Рис. 3. Зависимости энергии максимума неупругого пика (лоренциана — см. текст) перехода между основным и первым возбужденным уровнями кристаллического электрического поля (а) и его интенсивности $S_m(Q, E)$ (б), нормированных на соответствующие высокотемпературные значения, от степени заселенности основного состояния $4f$ -мультиплета для CeInCu_2 (\bullet , настоящая работа), $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ (Δ , [4]), CeAl_3 (\square , [3]); N — коэффициент, связанный со степенью вырождения возбужденного уровня ($N = 1$ для $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ и CeAl_3 , $N = 2$ для CeInCu_2). Сплошная линия на б — результат расчета относительной интенсивности перехода между основным и возбужденным уровнями кристаллического электрического поля в одноионном представлении. Пунктирные линии (а) проведены на глаз (см. текст)

расчета интенсивности перехода между уровнями кристаллического электрического поля $\Gamma_7 \rightarrow \Gamma_8$ с энергией $E_{in} = 6.98$ мэВ, «привязанные» при $T = 130$ К. Видно, что с понижением температуры наблюдаемая интенсивность не только не возрастает, а даже несколько уменьшается. Таким образом, неупругую компоненту спектра магнитных возбуждений данного соединения нельзя рассматривать, как соответствующую обычному переходу между уровнями кристаллического электрического поля, для которого понижение температуры приводит к росту заселенности основного состояния и, следовательно, к увеличению интенсивности неупругого пика практически без изменения его энергетического положения. Ширина неупругого пика в спектрах $S_m(Q, E)$ составляет $\Gamma \approx 7$ мэВ при низких температурах, что намного больше энергетического разрешения спектрометра КДСОГ-М. Сравнение параметров спектров $S_m(Q, E)$ при $T = 10$ К, полученных для всех образцов, и параметров спектра CeInCu_2 при $T = 130$ К показывает, что наблюдаемые изменения положения максимума в исследуемом интервале температур приблизительно пропорциональны изменению T_K : увеличение T_K ($\text{Ce}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{InCu}_2$) приводит к увеличению смещения максимума в сторону больших энергий примерно в два раза ($\Delta E = 1.2$ мэВ), а уменьшение T_K ($\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{InCu}_2$) уменьшает смещение энергии максимума до $\Delta E = 0.4$ мэВ.

Наблюдаемые особенности в спектрах $S_m(Q, E)$ для CeInCu_2 качественно совпадают с температурными изменениями, обнаруженными в тяжелофермионном соединении CeAl_3 [3] и в $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ [4]. Параметр системы, который заметно изменяется при этих температурах — заселенность уровней кристаллического электрического поля, которая для основного состояния возрастает от $\approx 45\%$ при $T = 130$ К до $\approx 100\%$ при $T = 10$ К. На рис. 3 представлены энергии пиков и их интегральные интенсивности, нормирован-

ные на значения энергии и интегральной интенсивности при максимальной температуре измерений, в зависимости от заселенности основного состояния. На рис. 3б показаны также результаты, полученные из расчета на основе одноионных представлений. Привязка экспериментальных и расчетных данных проводилась при максимальных температурах измерений. На рисунке представлены результаты как для CeInCu_2 , полученные в настоящей работе, так и для CeAl_3 (1.5–90 K) [3] и $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$ (12–150 K) [4]. Совместное рассмотрение приведенных данных позволяет условно выделить три температурных интервала для всех этих соединений. Для температур, при которых заселенность основного состояния меньше приблизительно 0.7, положение пиков в пределах экспериментальной точности не изменяется. При увеличении заселенности основного состояния от 0.7 до 1 неупругий пик начинает смещаться в сторону высоких энергий, а интегральная интенсивность незначительно уменьшается. В третьем интервале заселенность основного состояния практически постоянна и равна единице, что в шкале температур соответствует $T \leq T_K$. В этом интервале энергия пика значительно увеличивается, а его интенсивность несколько уменьшается. Полученные температурные зависимости позволяют сделать вывод, что при понижении температуры изменения в спектрах возбуждений $4f$ -электронов для тяжелофермионных систем начинаются в тот момент, когда начинается заметный рост заселенности основного состояния, а наибольшие изменения происходят при температурах масштаба T_K и при неизменной заселенности основного состояния. Наблюдаемые эффекты не могут являться следствием обычных релаксационных процессов, так как в соответствии с результатами работы [13] влияние релаксации на характеристики спектра усиливается при повышении температуры, а не наоборот, как установлено в данной работе.

В то же время следует отметить, что величины обнаруженных эффектов для разных соединений существенно различаются. Из рассмотрения температурных зависимостей интегральной интенсивности неупругого пика (рис. 3б) видно, что наибольшее отклонение экспериментальной интенсивности от результата одноионного расчета с понижением температуры наблюдается для CeInCu_2 . Это, возможно, связано с различными значениями температуры Кондо в этих соединениях: $T_K(\text{CeAl}_3) \approx 5$ K, $T_K(\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}) \approx 15$ K [4] и $T_K(\text{CeInCu}_2) \approx 20$ K [6]. Энергии максимума спектра возбуждений $4f$ -электронов, как следует из данных для $\text{Ce}_{1-x}(\text{La}, \text{Y})_x\text{InCu}_2$ при $T = 10$ K (рис. 2), увеличивается с ростом величины T_K . Но сравнение положений максимума спектра возбуждения для соединений с разными структурами и значениями T_K показывает, что не только значение T_K определяет масштаб наблюдаемых эффектов. По-видимому, вид волновой функции основного состояния также существенно влияет на формирование спектра возбуждений. Так, наибольшее изменение энергии максимума $S(Q, E)$ при $T \approx 0.5T_K$ наблюдается для систем с кристаллической симметрией локального окружения редкоземельных ионов ниже кубической ($E/E_{\min} = 1.19$ для $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$, $E/E_{\min} = 1.28$ для CeAl_3), а наименьшее — для кубической симметрии ($E/E_{\min} = 1.09$ для CeInCu_2) (рис. 3). Для систем с высокой кристаллической симметрией (CeAl_3 и CeInCu_2) только на основе «классических» одноионных представлений об эффектах кристаллического электрического поля объяснить наблюдаемое изменение интенсивности невозможно, так как волновые функции уровней $4f$ -электронов не зависят от параметров кристаллического электрического поля. Таким образом, обнаруженный эффект свидетельствует об изменении симметричных свойств f -электронных состояний в определенном температурном интервале.

Недавно в работе [16] было предложено объяснение наблюдаемых в спектрах не-

упругого магнитного рассеяния нейтронов тяжелофермионных систем эффектов на основе учета температурной зависимости компоненты полного гамильтониана для $4f$ -электронов, вызванной анизотропным обменным взаимодействием в кондо-системах. В предложенной модели рассматривалось влияние заселенности уровней кристаллического электрического поля на константы обменного взаимодействия. А при температурах, сравнимых с T_K , заметное усиление температурной зависимости связывалось с индуцированной кондо-рассеянием перенормировкой обменных интегралов. В соединениях с высокой кристаллической симметрией, в которых волновые функции состояний в кристаллическом электрическом поле не зависят от значений его параметров, для объяснения возникновения температурной зависимости интенсивности переходов между состояниями, были рассмотрены два возможных механизма понижения симметрии гамильтониана: один базировался на понижении симметрии обменного взаимодействия за счет дефектов в ближайшем окружении РЗ-иона, другой был связан с динамическим искажением окружения РЗ-иона и, соответственно, с изменением симметрии обменного взаимодействия из-за магнитоупругого взаимодействия. Температурная зависимость для каждого из этих механизмов реализуется так же, как и в случае с энергией уровня кристаллического электрического поля, т. е. существенно усиливается при $T \sim T_K$ за счет кондо-эффекта. Появление интервалов с различными температурными зависимостями для энергий переходов между уровнями кристаллического электрического поля (рис. 3а) хорошо согласуется с предсказаниями, вытекающими из этой модели [16]. Изменения энергии пика в $S(Q, E)$ в соединениях на основе CeInCu_2 с замещением 20% ионов церия, но с разной степенью гибридизации, полученные в настоящей работе (рис. 2), указывают, что введение дефектов в редкоземельную подрешетку, вероятнее всего, не оказывает существенного влияния на масштаб эффекта, т. е. основную роль играет магнитоупругое взаимодействие. Таким образом, природа температурных эффектов в чистом CeInCu_2 та же, что и в CeAl_3 и $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Ni}$, и наблюдаемая перенормировка спектра отражает формирование нового основного состояния f -оболочки в результате взаимовлияния эффектов кристаллического электрического поля и кондовского взаимодействия.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные в данной работе результаты позволяют сделать вывод, что в тяжелофермионной системе с кубической симметрией кристаллической решетки происходит определенная эволюция спектра возбуждений $4f$ -электронов при понижении температуры, когда заселенность основного состояния стремится к 100%. В частности, увеличивается энергия и уменьшается интегральная интенсивность пиков неупругого магнитного рассеяния нейтронов. При этом какого-либо влияния разупорядочения в РЗ-подрешетке на наблюдаемую трансформацию неупругого магнитного рассеяния нейтронов обнаружено не было, а происходящая перестройка не является следствием релаксационных процессов. Масштаб изменений спектра, по-видимому, связан в основном со степенью гибридизации (т. е. T_K). Важно подчеркнуть, что значительные и качественно подобные отклонения от температурных зависимостей для классических одноионных эффектов кристаллического электрического поля были обнаружены в нескольких тяжелофермионных соединениях с различной кристаллической симметрией.

В заключение авторы считают своим долгом поблагодарить А. С. Мищенко за плодотворные и стимулирующие обсуждения, А. Ю. Музыка и Ч. Гантулга за помощь в проведении нейтронных измерений. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 98-02-16229) и Государственной научно-технической программы «Актуальные направления в физике конденсированных сред».

Литература

1. E. Holland-Moritz and G. H. Lander, in *Handbook of the physics and chemistry of rare earths*, vol. 19 (1994), ch. 130.
2. M. Loewenhaupt and K. H. Fisher, in *Handbook of the physics and chemistry of rare earths*, vol. 16 (1993), ch. 105.
3. P. A. Alekseev, W. Buhner, V. N. Lazukov et al., *Physica B* **217**, 241 (1996).
4. В. Н. Лазуков, П. А. Алексеев, Е. С. Клементьев и др., *ЖЭТФ* **113**, 1731 (1998).
5. I. Felner, *Sol. State Comm.* **56**, 315 (1985).
6. S. Takagi, T. Kimura, N. Sato et al., *J. Phys. Soc. Jap.* **57**, 1562 (1988).
7. Y. Onuki, T. Yamazaki, A. Kobori et al., *J. Phys. Soc. Jap.* **56**, 4251 (1987).
8. R. Lahiouel, J. Pierre, E. Siaud et al., *Z. Phys. B* **67**, 185 (1987).
9. H. Kadowaki, S. Mitsuda, H. Yoshizawa et al., *J. Phys. Soc. Jap.* **58**, 4292 (1989).
10. A. P. Murani, A. Najib, and J. Pierre, *Ann. ILL Exp. Report* 4-03-478 (1988), p. 74.
11. A. Najib, J. Beille, R. Lahiouel et al., *J. Phys. F.: Met. Phys.* **17**, 2395 (1987).
12. P. A. Alekseev, V. N. Lazukov, A. Yu. Romyantsev, and I. P. Sadikov, *J. Magn. Magn. Mater.* **75**, 323 (1988).
13. K. W. Becker, P. Fulde, and J. Keller, *Z. Phys. B* **28**, 9 (1977).
14. T. Kagayama, K. Suenaga, G. Oomi et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **90-91**, 451 (1990).
15. E. Holland-Moritz, D. Wohlleben, and M. Loewenhaupt, *Phys. Rev. B* **25**, 7482 (1982).
16. А. С. Мищенко, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 460 (1997).