

ГЕНЕЗИЗ АНОМАЛЬНОГО ЭФФЕКТА ХОЛЛА В СОЕДИНЕНИИ CeAl_2

H. E. Случанко^{a,b}, A. B. Богач^{a,b}, B. B. Глушков^{a,b}, C. В. Демишиев^{a,b},
M. И. Игнатов^{a,b}, H. A. Самарин^a, Г. С. Бурханов^c, О. Д. Чистяков^c*

^a Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^b Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

^c Институт металлургии и материаловедения им. А. А. Байкова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 октября 2003 г.

В широком диапазоне температур (1.8–300 К) исследованы коэффициент Холла R_H , удельное сопротивление ρ и коэффициент термоэдс S соединения CeAl_2 с быстрыми флуктуациями электронной плотности. Выполненные детальные измерения угловых зависимостей $R_H(\varphi, T, H \leq 70 \text{ кЭ})$ позволили выделить вклады в аномальный эффект Холла и исследовать поведение аномальных магнитной R_H^{am} и основной R_H^a составляющих в холловском сигнале в этом соединении с сильными электронными корреляциями. Особенности поведения аномальной магнитной компоненты R_H^{am} используются для анализа сложной магнитной фазовой диаграммы H – T , обусловленной установлением магнитного порядка в режиме сильных спиновых флуктуаций. Анализ изменения основного вклада $R_H^a(H, T)$ в эффект Холла позволяет установить сложное активационное поведение этой аномальной составляющей в интерметаллиде CeAl_2 , а также приводит к выводу о необходимости учета спин-поляронных эффектов и о существенных ограничениях применимости моделей кондо-решетки и несимметричного рассеяния (skew-scattering) к описанию низкотемпературного транспорта носителей заряда в интерметаллидах на основе церия. Приведены оценки параметров многочастичных состояний в матрице CeAl_2 : эффективные массы $(55\text{--}90)m_0$, радиус локализации $6\text{--}10 \text{ \AA}$. Выполнен совместный анализ поведения параметров R_H , S и ρ , результаты которого позволяют получить согласованное описание транспортных коэффициентов в соединении CeAl_2 .

PACS: 72.15.Qm

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из наиболее интересных и сложных для интерпретации свойств соединений с промежуточной валентностью и тяжелыми фермионами на основе редкоземельных (РЗ) элементов является коэффициент Холла R_H [1–4]. В частности, эффект Холла в интерметаллидах на основе церия в подавляющем большинстве случаев оказывается аномальным как по абсолютной величине, так и по знаку R_H . Действительно, для проводящих соединений церия величина R_H в десятки раз превосходит коэффициент Холла в их немагнитных аналогах (соеди-

нениях с La, Y, Lu и др.), причем при температурах, сравнимых с характерной температурой спиновых флуктуаций T_{sf} , наблюдается положительный знак эффекта [1, 2]. Исследования, выполненные различными авторами для различных интерметаллидов на основе Ce (CeAl_3 [5], CeCu_2Si_2 [6], CeCu_6 [7], CePd_3 [8], CeNiSn [9], CeOs_2 [10], CePb_3 [11] и др.), показали, что на температурной зависимости $R_H(T)$ наблюдается максимум большой амплитуды при $T_{max}^{R_H}$ в окрестности температуры T_{sf} . При этом, с точки зрения авторов работ [1, 2], наиболее адекватное объяснение подобного поведения параметра $R_H(T)$ может быть получено в рамках моделей асимметричного рассеяния (skew-scattering) носите-

*E-mail: nes@lt.gpi.ru

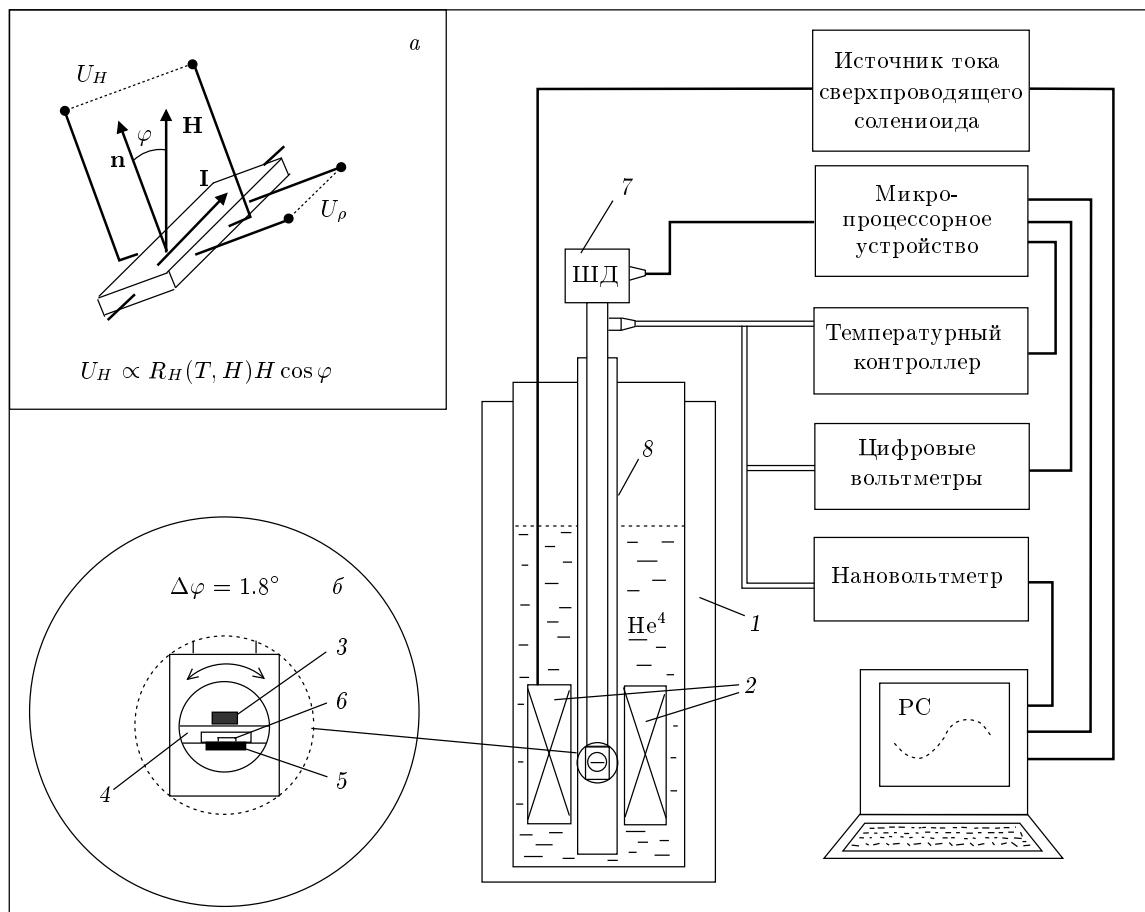


Рис. 1. Блок-схема установки для измерений транспортных характеристик: 1 — криостат; 2 — сверхпроводящий магнит; 3 — образец; 4 — медная пластина; 5 — датчик Холла; 6 — термометр сопротивления; 7 — шаговый двигатель; 8 — двустенная ампула. На вставках приведены геометрия расположения контактов к образцу (а) и размещение образца на пластине (б)

лей заряда на локализованных магнитных моментах редкоземельных ионов. Однако предварительные исследования коэффициента Холла, выполненные нами сравнительно недавно [12] для типично-го представителя этого класса соединений — так называемой магнитной кондо-решетки CeAl₂, — обнаружили сложное активационное поведение параметра $R_H(T)$, не укладывающееся в рамки развитых в [1, 2] представлений об определяющей роли эффек-тотов рассеяния в формировании аномалий коэффици-ента R_H в этом интерметаллиде.

С целью экспериментальной проверки при-именимости существующих теоретических подхо-дов к описанию аномального эффекта Холла в РЗ-соединениях с дальним магнитным порядком и тяжелыми фермионами в настоящей работе вы-полнено детальное исследование эффекта Холла в

CeAl₂ в широком диапазоне температур 1.8–300 К, в магнитных полях до 70 кЭ. Для выяснения специ-фики низкотемпературного транспорта носителей заряда в CeAl₂ в работе измерялись также коэффи-циент термоэдс $S(T)$ и удельное сопротивление в зависимости от температуры при фиксированных значениях магнитного поля, $\rho(H_0, T)$.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Представленные в настоящей работе результаты измерений транспортных характеристик получены на поликристаллических образцах соединения CeAl₂ с кубической структурой фазы Лавеса, синтезиро-ванных на основе стехиометрических количеств вы-сокочистых компонентов в дуговой электропечи с нерасходуемым вольфрамовым электродом на мед-ном водоохлаждаемом поду в атмосфере очищенно-

го гелия. Равномерность состава в объеме образца обеспечивалась многократным переплавом и последующим гомогенизирующим отжигом интерметаллида в откаченных кварцевых ампулах. Контроль однофазного состояния соединений осуществлялся с помощью рентгеноструктурного (ДРОН-3) и микроструктурного (оптическая микроскопия) аналитических методов.

Измерения коэффициента термоэдс проводились четырехзондовым методом на установке оригинальной конструкции, подобной описанной в [13]. Варьирование температурных градиентов ΔT на образце выполнялось в области линейного отклика напряжений термоэдс $U_{1,2} \propto \Delta T$ с различных пар контактов к образцу [13]. Относительная величина максимального перегрева $\Delta T/T$ между «холодным» и «теплым» концами образца составляла не более 5 %.

Для измерений коэффициента Холла в работе применялась экспериментальная установка оригинальной конструкции, блок-схема которой представлена на рис. 1. Измерения проводились в криостате 1 со сверхпроводящим магнитом 2 в схеме с пошаговым вращением образца в магнитном поле. Образец 3, приготовленный для измерений на постоянном токе в четырехконтактной конфигурации (см. вставку *a* на рис. 1), размещался на медной пластине 4 (см. вставку *b* на рис. 1) поворотного устройства вместе с датчиком Холла 5 и эталонным термометром сопротивления 6 фирмы Lake Shore Cryotronics (США) модели CERNOX 1050. С помощью датчика Холла 5 измерялась нормальная компонента вектора напряженности магнитного поля к поверхности образца. Вращение сборки на медной пластине 4 в магнитном поле сверхпроводящего магнита осуществлялось в пошаговом режиме с дискретностью $\Delta\varphi = 1.8^\circ$ с управлением приводом от шагового двигателя 7. После каждого поворота на 2–5 шагов положение сборки фиксировалось (см. вставки на рис. 1), и далее проводились измерения сигналов с холловских контактов образца, с датчика Холла и термометра сопротивления. Непосредственно для обеспечения прецизионных измерений холловского напряжения с образца использовался нановольтметр фирмы Keithley (США) модели 2182. Для стабилизации и регулирования температуры измерительной ячейки с образцом, размещенной в двустенной ампуле 8, применялся температурный контроллер оригинальной конструкции, обеспечивающий точность стабилизации температуры около 0.01 К. Система регистрации и управления низкотемпературным экспериментом через микропроцессорное устройство была связана с персональным компьютером (PC на

рис. 1), используемым непосредственно для сбора и обработки экспериментальной информации, а также для задания требуемых параметров и режимов работы электронных устройств, входящих в состав установки.

Измерения сопротивления образцов CeAl₂ проводились четырехзондовым методом на постоянном токе, причем при измерениях в магнитном поле исследовалось поведение поперечного ($I \perp H$, вставка *a* на рис. 1) магнитосопротивления.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Результаты измерений удельного сопротивления $\rho(T, H_0)$ в фиксированном магнитном поле $H_0 \leq 70$ кЭ и коэффициента термоэдс $S(T)$ образцов CeAl₂ представлены на рис. 2 (соответственно кривые 1–5 и 6). Температурная зависимость $\rho(T)$ в отсутствие внешнего магнитного поля (кривая 1 на рис. 2) характеризуется близким к линейному поведением в диапазоне 100–300 К (см. вставку *a* на рис. 2). С понижением температуры при $T < 100$ К уменьшение сопротивления становится более резким, в окрестности 13 К кривая $\rho(T)$ проходит через минимум (рис. 2, вставка *a*) и далее наблюдается близкое к логарифмическому возрастание величины ρ . С дальнейшим понижением температуры зависимость $\rho(T)$ проходит через максимум вблизи $T_{max}^\rho \approx 5.5$ К, ниже которого на кривой $\rho(T)$ наблюдается излом при $T = T_N \approx 3.8$ К (отмечен штриховой линией на рис. 2), отвечающий температуре установления дальнего магнитного порядка (антиферромагнитная модулированная (АФМ) структура [14]) в системе локализованных магнитных моментов на центрах церия в матрице CeAl₂.

Внешнее магнитное поле до 70 кЭ заметно меняет форму кривой $\rho(T)$. Появление значительного (до 50 %) отрицательного магнитосопротивления в указанном диапазоне полей при температурах $T < 20$ К (см. рис. 2, кривые 1–5) сопровождается уширением низкотемпературного максимума на кривой $\rho(T)$ и сдвигом в магнитном поле данной особенности вверх по шкале температур. В то же время подавление низкотемпературного магнитного вклада в $\rho(T)$ в магнитном поле $H_0 > 30$ кЭ происходит существенно более эффективно в интервале гелиевых температур $T < 5$ К, что, в свою очередь, приводит к трансформации низкотемпературного максимума зависимости $\rho(T, H_0)$ в особенность типа «ступеньки» (см. рис. 2, кривые 1–5). Следует отметить, что экспериментальные данные рис. 2 (кривые 1–5) находятся

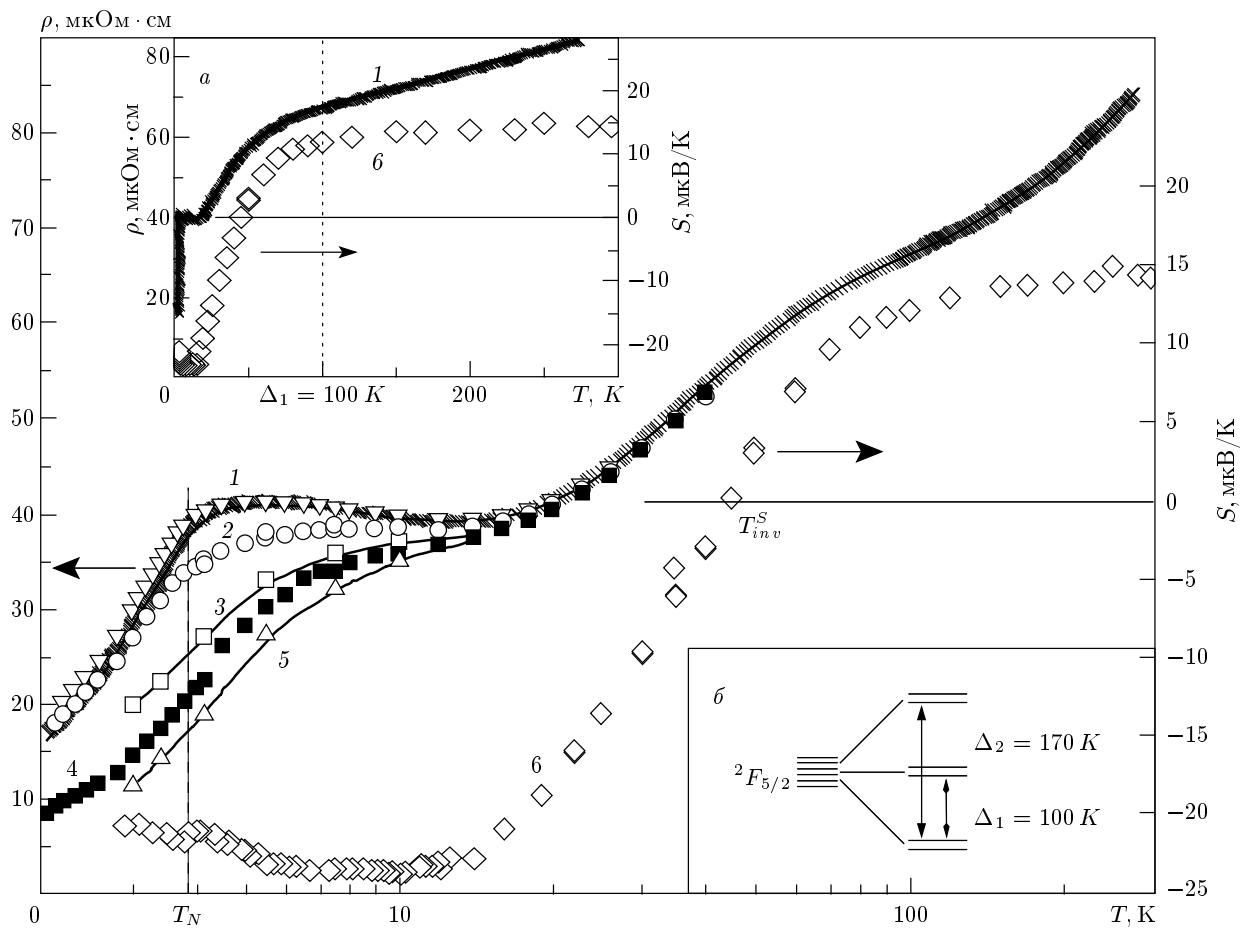


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления CeAl_2 для различных значений магнитного поля H_0 (кривые 1–5): 1 — 0; 2 — 32 кЭ; 3 — 50.5 кЭ; 4 — 60 кЭ; 5 — 70.7 кЭ. Кривая 6 соответствует температурной зависимости коэффициента термоэдс. На вставке *a* кривые 1 и 6 представлены в линейном масштабе температур. На вставке *b* приведена схема расщепления основного состояния $^2F_{5/2}$ церия кристаллическим полем в CeAl_2

в хорошем согласии с результатами измерений [15], выполненных ранее на поликристаллических образцах CeAl_2 при низких и сверхнизких температурах в магнитных полях до 200 кЭ.

Измеренная в работе температурная зависимость коэффициента термоэдс $S(T)$ для CeAl_2 представлена на рис. 2 (кривая 6). В интервале 100–300 К термоэдс является медленно меняющейся функцией температуры и принимает положительные значения. С понижением температуры ($T < 100$ К) происходит резкое уменьшение $S(T)$ со сменой знака при $T = T_{inv} \approx 45$ К (рис. 2, см. также вставку *a*). Выполненные нами прецизионные измерения термоэдс CeAl_2 в дополнение к отрицательному минимуму $S(T)$ значительной амплитуды при $T_{min} \approx 10$ К позволили также установить наличие особенности в окрестности температуры Нееля

$T_N \approx 3.85$ К (отмечена штриховой линией на рис. 2). Очевидно, эта особенность отвечает переходу в магнитоупорядоченное состояние на локализованных магнитных моментах церия. Отметим, что, насколько нам известно, данный результат представляет собой первое экспериментальное наблюдение особенности на кривой $S(T)$ для CeAl_2 при переходе в магнитоупорядоченную фазу. При этом малая амплитуда изменения величины $S(T)$ при $T \approx T_N$ ($\Delta S \leq 1$ мкВ/К при $|S| > 20$ мкВ/К) позволяет исключить из числа факторов, обуславливающих возникновение глубокого отрицательного минимума термоэдс CeAl_2 , формирование при низких температурах магнитоупорядоченного состояния в этом соединении.

Как уже отмечалось ранее, измерения холловской компоненты сопротивления $\rho_H(H, T)$ в насто-

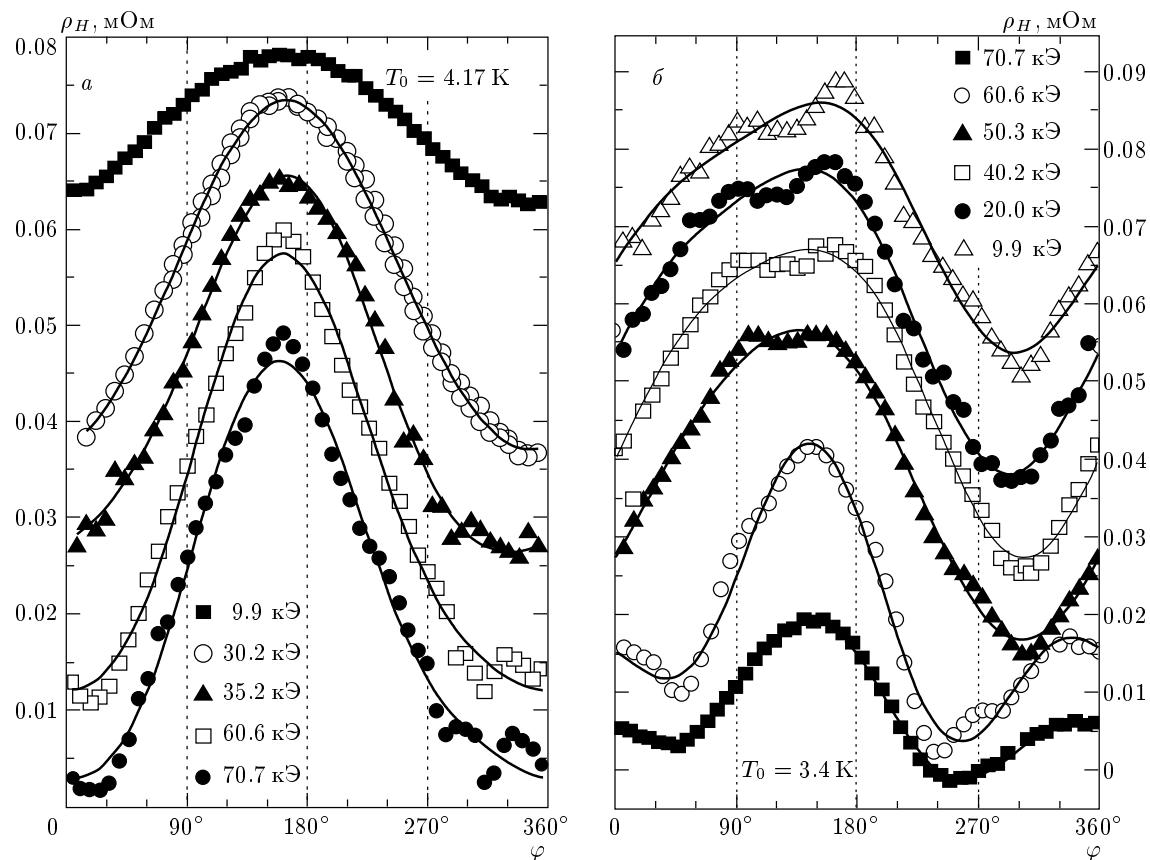


Рис. 3. Угловые зависимости холловского сопротивления CeAl_2 в магнитных полях до 70 кЭ при температурах $T_0 = 4.17$ К (а) и $T_0 = 3.4$ К (б)

ящей работе проводились методом вращения с последующей фиксацией положения образца в магнитном поле. Типичные семейства угловых зависимостей $\rho_H(\varphi, H_0, T_0)$, полученных при измерениях образцов CeAl_2 на установке, приведенной на рис. 1, при температурах как выше температуры Нееля (например, при $T_0 = 4.17$ К $> T_N \approx 3.8$ К), так и в магнитоупорядоченном состоянии ($T_0 = 3.4$ К $< T_N$) в различных магнитных полях $H \leq 70$ кЭ, представлены соответственно на рис. 3а, б. В схеме с вращением образца в магнитном поле при изменении амплитуды нормальной компоненты вектора напряженности внешнего магнитного поля $\mathbf{H}_\perp \parallel \mathbf{n}$ по гармоническому закону $H_\perp = H_0 \cos \varphi$ обычно следует ожидать синусоидальной зависимости холловского напряжения вида $U_H \propto R_H(T, H_0) H_0 \cos \varphi$ (см. вставку а на рис. 1). Однако в случае измерений эффекта Холла в CeAl_2 такая форма кривых $\rho_H(\varphi, H_0, T_0)$ наблюдается лишь в ограниченных диапазонах температуры и магнитного поля. В частности, для гелиевой температуры близкая к си-

нусоидальной угловая зависимость холловского сигнала наблюдается лишь в интервале полей до 35 кЭ (рис. 3а). Для температур ниже T_N форма кривых $\rho_H(\varphi)$ становится существенно более сложной, причем во всем диапазоне магнитных полей, используемом в настоящей работе, к основной составляющей сигнала $\rho_H(\varphi) \propto \cos \varphi$ добавляется вклад четных гармоник (рис. 3б). Наиболее наглядно трансформация кривых $\rho_H(\varphi)$ при переходе от $T > T_N$ к $T < T_N$ представлена на рис. 4а, б, где показаны угловые зависимости холловского сопротивления, измеренные при различных температурах в магнитных полях соответственно $H_0 \approx 3.4$ кЭ и $H_0 \approx 32$ кЭ.

Другой особенностью поведения зависимости $\rho_H(\varphi)$ в исследуемых образцах CeAl_2 является возникновение в сильных магнитных полях $H \geq 40$ кЭ вклада от четных гармоник в эффект Холла, наблюдающегося как в области температур $4 \text{ K} \leq T \leq 7.5 \text{ K}$ выше T_N , так и при $T < T_N$ для значений T, H , лежащих за пределами низкотемпературной АФМ-фазы на магнитной фазовой

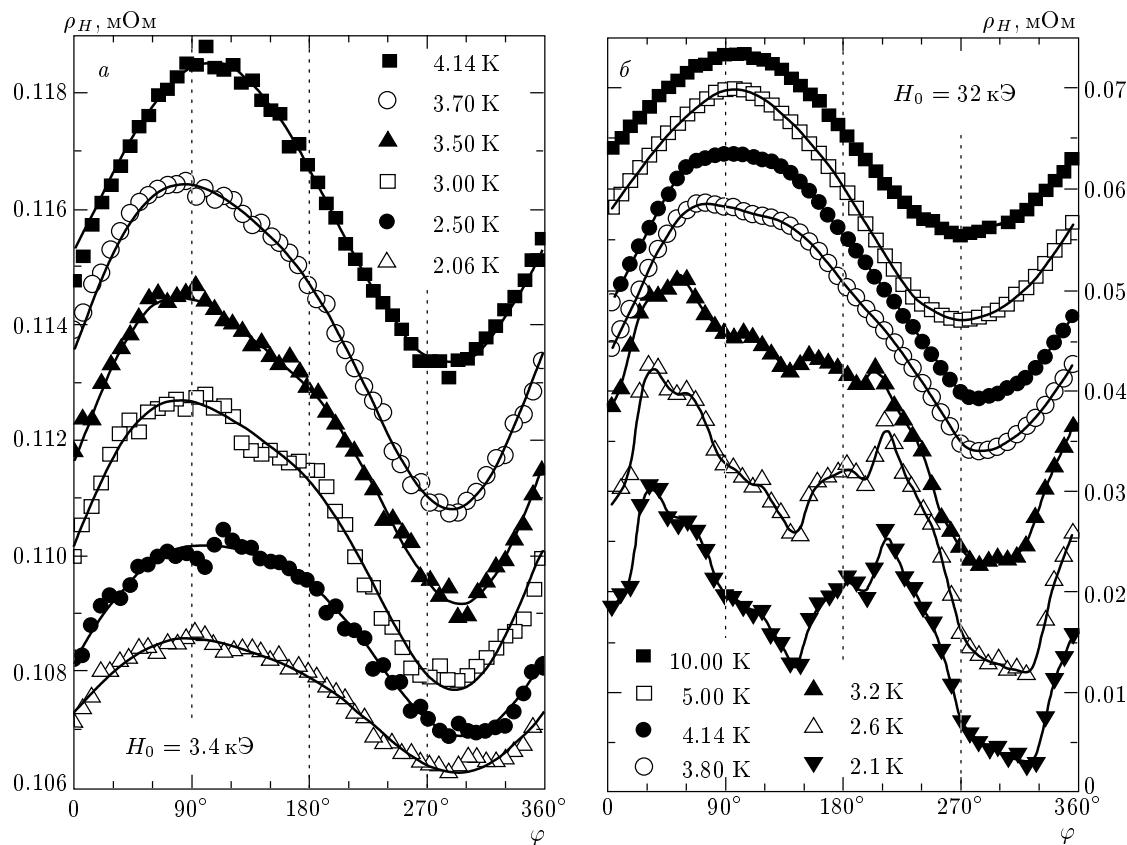


Рис. 4. Угловые зависимости холловского сопротивления CeAl_2 при различных температурах в магнитных полях $H_0 = 3.4$ кЭ (a) и $H_0 = 32$ кЭ (б)

диаграмме $H-T$ этого соединения. Указанное аномальное поведение холловского сопротивления наиболее отчетливо проявляется на примере результатов измерений в поле $H_0 \approx 60$ кЭ (рис. 5a, все экспериментальные кривые отвечают температурам $T > T_N(H)$). Другим наглядным примером возникновения указанного дополнительного вклада от четных гармоник может служить семейство кривых $\rho_H(T)$, измеренных при температуре $T_0 \approx 5.5$ К $> T_N$ (рис. 6a, кривые в интервале полей 40–80 кЭ). В то же время уже при $T_0 \geq 8$ К угловые зависимости холловского сопротивления вновь оказываются синусоидальными (см., например, семейство кривых на рис. 6б) во всем диапазоне магнитных полей $H \leq 70$ кЭ, используемом в настоящей работе.

В заключение настоящего раздела подчеркнем, что обнаруженная в работе аномальная компонента, обусловленная появлением четных гармоник в холловском сигнале, не может быть отнесена за счет асимметрии в расположении холловских контактов

к образцу интерметаллида и вследствие этого не может быть связана с добавлением четного по магнитному полю вклада в $U_H(T, H, \varphi)$ от магнитосопротивления в CeAl_2 . Результаты выполненных одновременно с холловскими измерениями исследований угловых зависимостей магнитосопротивления $\rho(\varphi, H, T)$ позволяют исключить подобные эффекты влияния обычной резистивной составляющей, возникающей вследствие «неэквипотенциальности» в расположении холловских контактов к образцу, на форму и характер изменения величины $U_H(T, H, \varphi)$ для всех образцов CeAl_2 , исследованных в настоящей работе.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

4.1. Разделение вкладов в эффект Холла

Для анализа результатов измерений угловых зависимостей холловского сопротивления (рис. 3–6) образцов интерметаллида CeAl_2 в работе использовалось представление

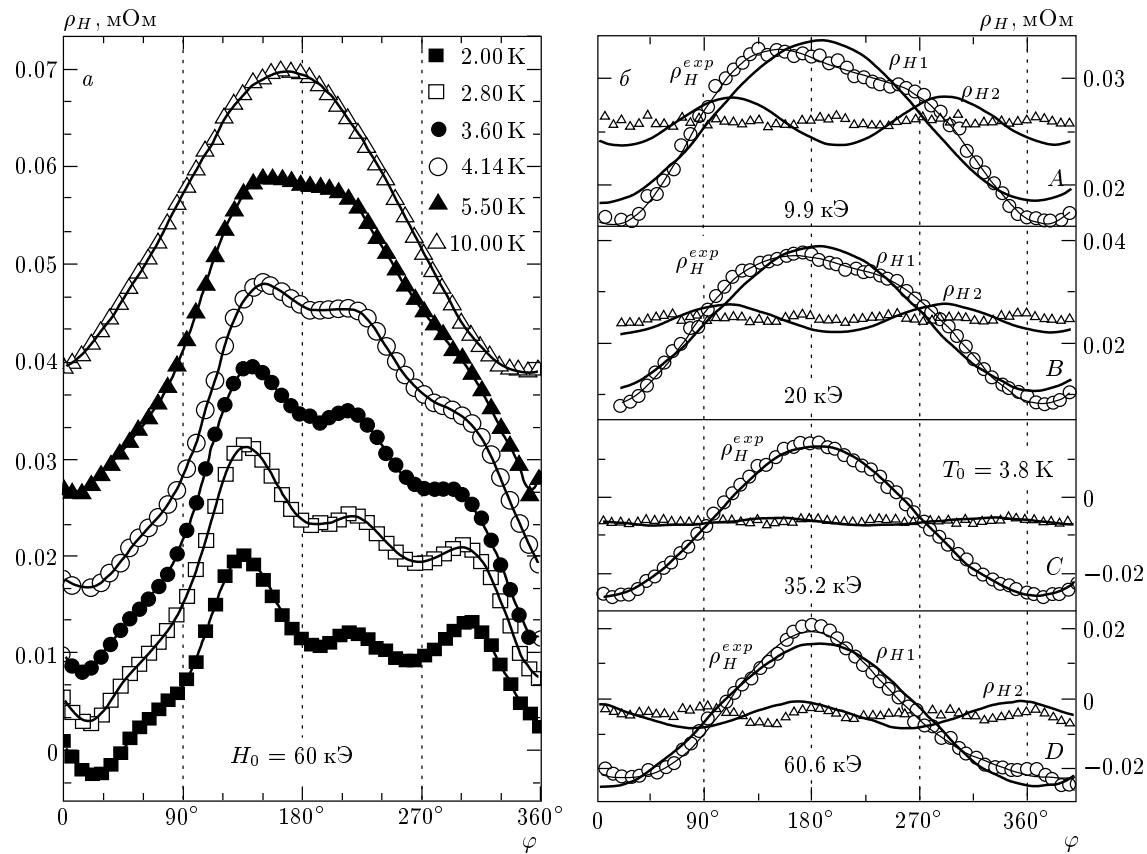


Рис. 5. Угловые зависимости холловского сопротивления CeAl_2 при различных температурах в магнитном поле $H_0 = 60$ кЭ (а) и разделение вкладов (б) в рамках соотношения (1) (см. текст), представленное для различных значений H при температуре $T_0 = 3.8$ К: ρ_H^{exp} — экспериментальные данные, ρ_{H1} — вклад основной составляющей, ρ_{H2} — вклад второй гармоники, $\rho_H - \rho_{H1} - \rho_{H2}$ — разностный сигнал (треугольники)

$$\begin{aligned} \rho_H(\varphi, T_0, H_0) = \\ = \rho_{H0} + \rho_{H1} \sin(\varphi - \varphi_{01}) + \rho_{H2} \sin[2(\varphi - \varphi_{02})], \quad (1) \end{aligned}$$

учитывающее наряду с основной, нечетной по магнитному полю, составляющей ρ_{H1} и постоянным смещением ρ_{H0} также присутствие вклада второй гармоники. Процедура разделения вкладов в рамках соотношения (1) наиболее наглядно представлена на рис. 5б, где для различных значений магнитного поля $H \leq 70$ кЭ показаны как полученные в работе экспериментальные кривые ρ_H^{exp} , так и вклады с амплитудами ρ_{H1} и ρ_{H2} , найденные для семейства кривых, измеренных при температуре $T \approx 3.8$ К. На рис. 5б для оценки точности аппроксимации экспериментальных данных по формуле (1) представлен также разностный вклад

$$\begin{aligned} \rho_H^{exp}(\varphi, T_0, H_0) - \rho_{H0} - \rho_{H1} \sin(\varphi - \varphi_{01}) - \\ - \rho_{H2} \sin[2(\varphi - \varphi_{02})]. \end{aligned}$$

Отметим, что соотношение (1) является достаточно хорошим приближением везде, за исключением области сильных магнитных полей $H > 50$ кЭ, в которой на кривых $\rho_H^{exp}(\varphi)$ появляется заметная дополнительная составляющая от четных гармоник следующих порядков (см. панель D на рис. 5б).

Полученные в рамках используемого подхода амплитудные значения основного вклада в эффект Холла $\rho_{H1} [\text{м}\Omega]d [\text{см}] = \rho_H^a [\text{м}\Omega \cdot \text{см}]$ (где d — толщина образца, ρ_H^a — аномальная компонента холловского сопротивления), являющегося по классификации работ [1–4] аномальным вкладом от несимметричного рассеяния, и аномальной магнитной составляющей $\rho_{H2}d = \rho_H^{am}$ в зависимости от температуры и магнитного поля представлены соответственно на рис. 7 и 8. Как видно из рис. 7, полевые зависимости удельного холловского сопротивления $\rho_H^a(H, T_0)$ являются существенно нелинейными не только в АФМ-фазе CeAl_2 , но и в непосредственной

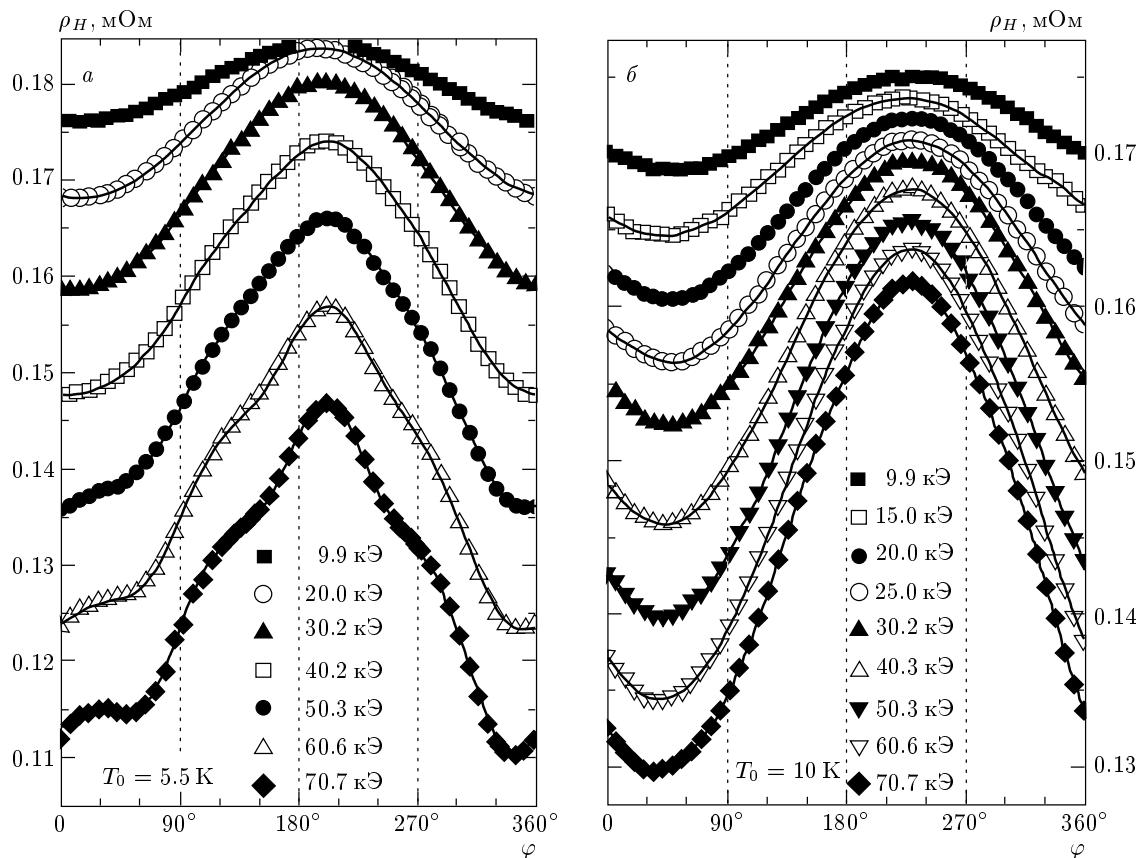


Рис. 6. Угловые зависимости холловского сопротивления CeAl_2 при магнитных полях до 70 кЭ и температурах $T = 5.5$ К (a) и $T = 10$ К (b)

окрестности температуры Нееля (рис. 7a). Указанная нелинейность в магнитном поле $H \leq 70$ кЭ сохраняется вплоть до температур выше 10 К, и лишь при $T \geq 30$ К полевые зависимости $\rho_H^a(H)$ становятся линейными (рис. 7b).

4.2. Аномальная магнитная составляющая эффекта Холла

Температурные зависимости аномального магнитного вклада в удельное холловское сопротивление, $\rho_H^{am}(T, H_0)$, исследовавшиеся при различных фиксированных значениях внешнего магнитного поля, представлены на рис. 8. При относительно малых значениях поля $H \leq 30$ кЭ появление аномального магнитного вклада может быть однозначно связано с переходом в АФМ-фазу при температурах ниже $T_N \approx 3.85$ К (рис. 8). С ростом величины H возникновение аномального магнитного вклада ρ_H^{am} регистрируется также и при температурах $T > T_N$, причем в поле $H_0 \approx 60$ кЭ при-

сутствие небольшой составляющей ρ_H^{am} наблюдается вплоть до температур $T \approx 8\text{--}10$ К (рис. 8). Такое поведение величины $\rho_H^{am}(T, H)$ в целом соглашается с выводами авторов работ [16–18], сделанными на основании экспериментов по квазиупругому рассеянию нейтронов в CeAl_2 , а также с результатами исследований магнитной фазовой диаграммы H – T этого соединения [19] (см. также вставку на рис. 8). В частности, находит подтверждение вывод авторов работы [16] о существовании в CeAl_2 области сильных ферромагнитных флюктуаций с длиной когерентности $\xi \geq 20$ Å при температурах вплоть до 12 К. При этом следует подчеркнуть, что за исключением CeAl_2 в ряду фаз Лавеса LnAl_2 ($\text{Ln} = \text{Ce}, \text{Nd}, \text{Tb}, \text{Dy}$ и др.) все прочие трехвалентные редкоземельные диалюминиды являются ферромагнетиками. В связи с этим, по-видимому, основным фактором, приводящим к установлению сложного дальнего АФМ-порядка в магнитной кондо-решетке CeAl_2 , является именно конкуренция магнитного РККИ-взаимодействия с механизмом

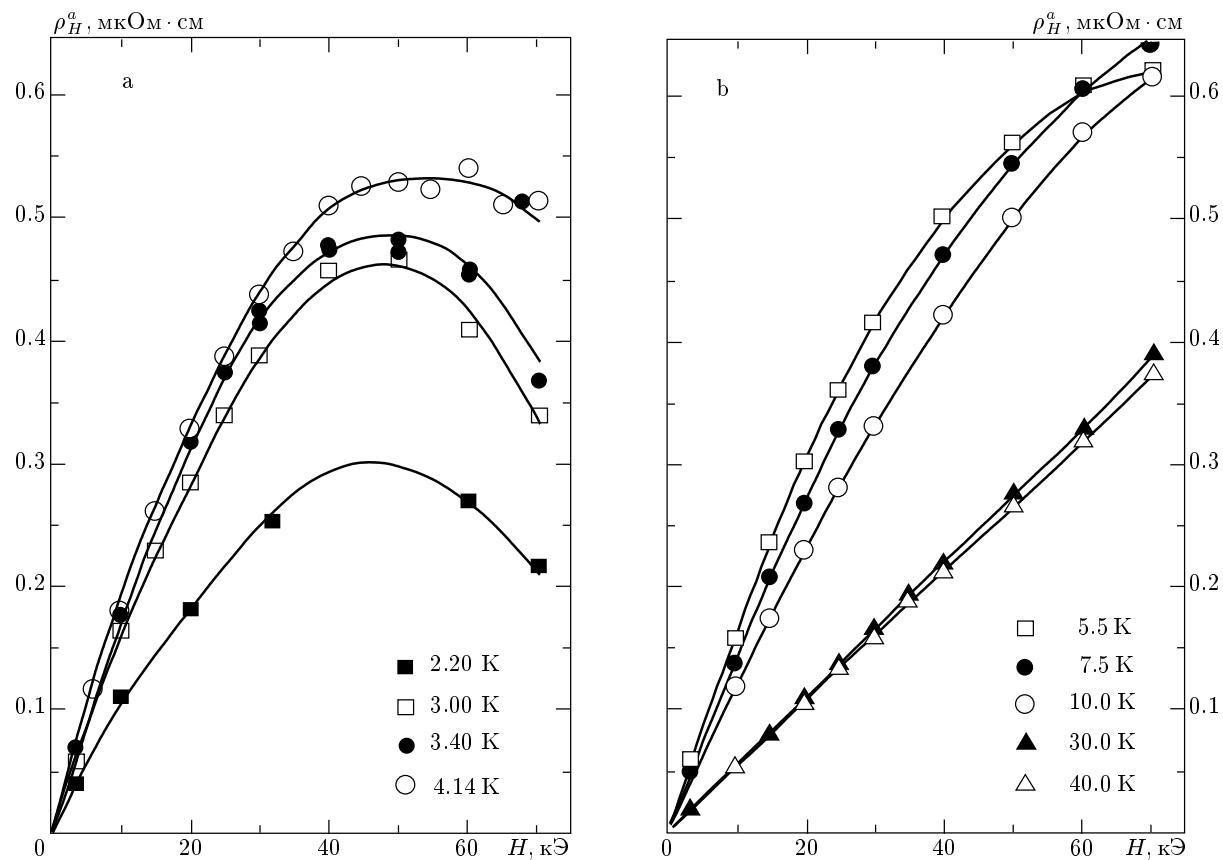


Рис. 7. Полевые зависимости основной аномальной составляющей ρ_H^a удельного холловского сопротивления CeAl₂ для различных температур

рассеяния с переворотом спина, приводящим к компенсации (например, как принято считать, вследствие эффекта Кондо) локализованного магнитного момента РЗ-элемента. В результате редуцирование магнитных моментов РЗ-ионов определяет тенденцию к формированию немагнитного основного состояния и приводит к существенной нестабильности ферромагнитной структуры. В такой ситуации присутствие сильных ферромагнитных флуктуаций в матрице CeAl₂ как при гелиевых, так и при промежуточных (5–10 К) температурах в области сильных магнитных полей $H \geq 60$ кЭ, по-видимому, может быть обусловлено подавлением внешним магнитным полем $H \sim H_K \approx k_B T_K / \mu_B \approx 70$ кЭ ($T_K^{\text{CeAl}_2} \approx 5$ К [16]) кондовских флуктуаций магнитного момента на центрах церия. Другим следствием формирования магнитного порядка в CeAl₂ при низких температурах в условиях отмеченной выше конкуренции различных механизмов, по-видимому, является появление новых фаз на магнитной диаграмме H – T для CeAl₂ и, в частности, обнаружен-

ного в [19] фазового перехода от АФМ-структуре к неколлинеарной магнитной структуре (см. вставку на рис. 8).

Еще одной интересной особенностью поведения амплитуды аномальной магнитной компоненты удельного холловского сопротивления является немонотонная зависимость амплитуды $\rho_H^{am}(H)$ от магнитного поля для температур $T < T_N$ (см. рис. 8). Для большей наглядности при обсуждении результатов в этой части исследования наиболее удобным представляется использование коэффициентов Холла R_H^a и R_H^{am} , которые могут быть получены непосредственно из ρ_H^a и ρ_H^{am} при учете величины напряженности магнитного поля. Полевые зависимости параметров R_H^a и R_H^{am} , полученные из данных рис. 3–6, показаны на рис. 9. Как видно из рис. 9a, в области гелиевых температур коэффициенты Холла R_H^a и R_H^{am} сравнимы по порядку величины, причем аномальный магнитный вклад $R_H^{am}(H, T_0)$ действительно оказывается существенно немонотонным. Наблюдаемая на

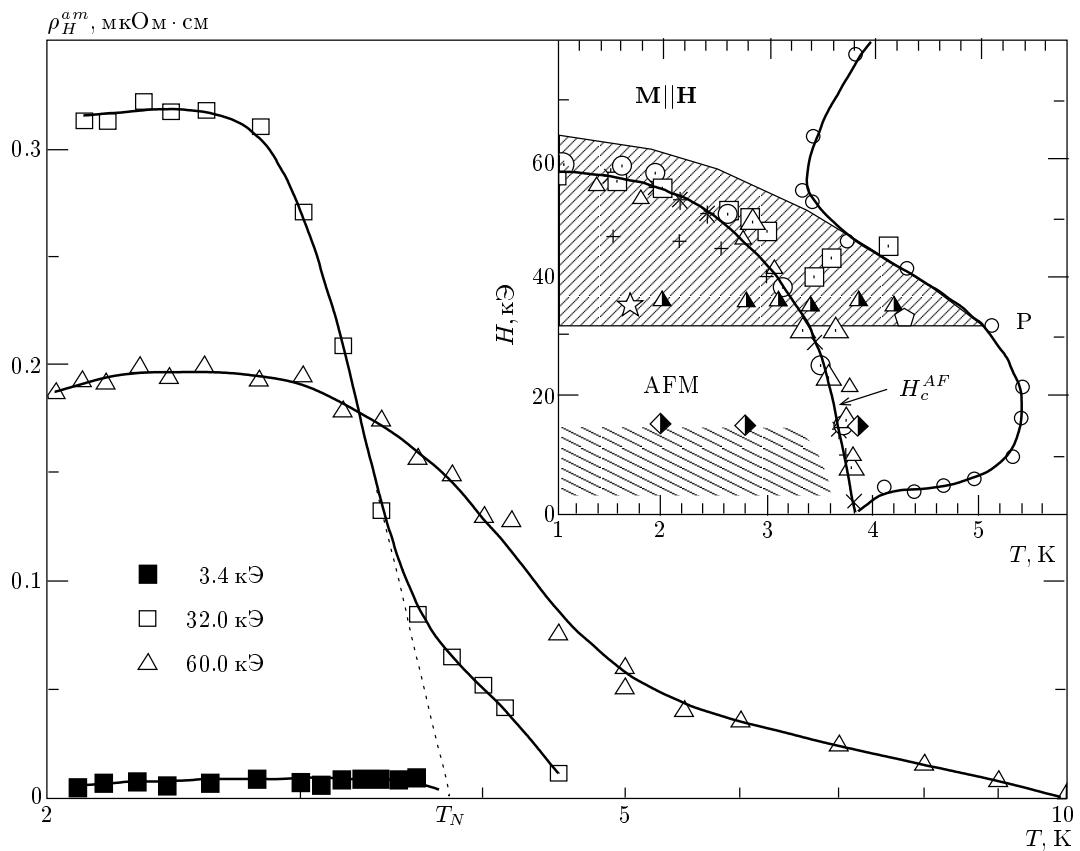


Рис. 8. Температурные зависимости аномальной магнитной составляющей ρ_H^{am} (см. текст) удельного холловского сопротивления в магнитных полях $H_0 = 3.4, 32, 60$ кЭ. На вставке представлена фазовая диаграмма H - T для $CeAl_2$: AFM — антиферромагнитная модулированная фаза; Р — парамагнетик; H_c^{AF} — фазовая граница АФМ-фазы; нижняя заштрихованная область отвечает режиму переориентации антиферромагнитных доменов внешним полем (см. текст), верхняя — неколлинеарной магнитной структуре (по данным работы [19])

кривых $R_H^{am}(H)$ особенность в виде максимума в окрестности $H_{max} \approx 15$ кЭ (рис. 9a) растет по амплитуде с понижением температуры от гелиевой и при температурах $T \leq 3.4$ К сравнивается с величиной R_H^a . Поскольку анализ в рамках соотношения (1) позволяет определить также фазовый сдвиг $\Delta\varphi = \varphi_{01} - \varphi_{02}$ между основной и четной гармониками холловского сигнала, появляется дополнительная возможность количественной характеризации перестройки аномального магнитного вклада и связанного с ним рассеяния носителей заряда на особенностях магнитной структуры в $CeAl_2$ при изменениях температуры и магнитного поля. Как видно из вставки на рис. 9a, сдвиг фаз $\Delta\varphi$ в пределах точности эксперимента принимает фиксированные значения при $H \leq 30$ кЭ ($\Delta\varphi \approx 25^\circ$) и $H \geq 40$ кЭ ($\Delta\varphi \approx -35^\circ$). Резкое изменение величины и знака параметра $\Delta\varphi$ происходит в достаточно

узкой окрестности значения $H^* \approx 35$ кЭ, причем указанное значение H^* сохраняется практически неизменным как при $T < T_N \approx 3.85$ К, что соответствует АФМ-фазе в матрице $CeAl_2$, так и в области температур 4–8 К, характеризующейся присутствием сильных магнитных флуктуаций в матрице $CeAl_2$ (рис. 9a). Для наглядности и удобства представления результатов изменение на 60° фазового сдвига $\Delta\varphi = \varphi_{01} - \varphi_{02}$ второй гармоники относительно основного сигнала в окрестности $H^* \approx 35$ кЭ на рис. 9a показано с помощью инверсии знака компоненты R_H^{am} . По нашему мнению, наблюдаемая особенность параметра $\Delta\varphi$ может служить дополнительным аргументом в пользу перестройки магнитной структуры $CeAl_2$ и сделанного в [19] вывода о наблюдении «горизонтальной» ($H_c = \text{const}$) фазовой границы на магнитной фазовой диаграмме H - T этого соединения (см. вставку

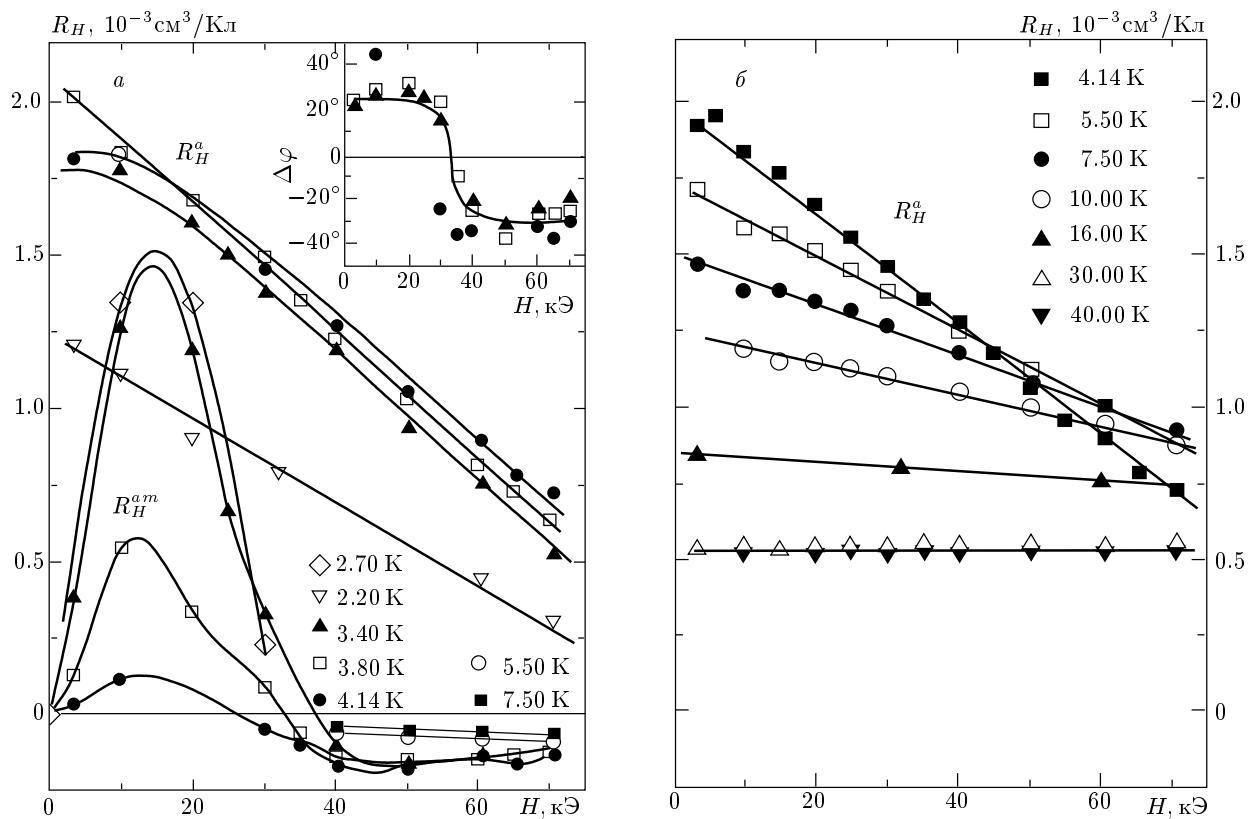


Рис. 9. Полевые зависимости аномальной R_H^a и аномальной магнитной R_H^{am} составляющих коэффициента Холла для различных температур в CeAl_2 . На вставке показаны полевые зависимости фазового сдвига между гармониками (см. текст)

на рис. 8).

При обсуждении природы максимума в окрестности $H_{max} \approx 15$ кЭ на кривых $R_H^{am}(H, T_0)$ (рис. 9а) следует отметить также результаты исследований [20–22] теплового расширения и магнитострикции в соединении CeAl_2 . В работах [20, 21] было показано, что с ростом напряженности магнитного поля до 15 кЭ в АФМ-фазе этого соединения происходит переориентация антиферромагнитных (АФ) доменов от хаотического (однородного) к по-перечному по отношению к внешнему магнитному полю расположению направления АФ-поляризации. Поскольку температура T_N магнитного перехода в этом соединении практически не меняется при перемагничивании образцов CeAl_2 при $H \leq 20$ кЭ (на вставке к рис. 8 нижняя заштрихованная область на фазовой диаграмме), авторы работ [20, 21] пришли к заключению о переориентации АФМ-доменов внешним магнитным полем без заметного изменения их размеров и АФ-поляризации. С учетом изложенного выше возникновение аномального

магнитного рассеяния носителей заряда и, соответственно, существенно немонотонное поведение аномальной магнитной составляющей коэффициента Холла R_H^{am} при $H < 30$ кЭ, по-видимому, следует связать с процессами перемагничивания магнитных доменов в магнитоупорядоченном состоянии соединения CeAl_2 .

4.3. Основная составляющая в эффекте Холла в CeAl_2

Измеренные в настоящей работе в широком диапазоне температур (1.8–300 К) зависимости основной (нечетной по магнитному полю) аномальной компоненты коэффициента Холла $R_H^a(T, H_0)$ в CeAl_2 для нескольких фиксированных значений магнитного поля представлены на рис. 10. В соответствии с результатами исследований [5–10], выполненных для других известных интерметаллидов на основе церия с зарядовыми и спиновыми флуктуациями, на зависимости $R_H^a(T)$ наблюдается положительный максимум большой амплитуды в

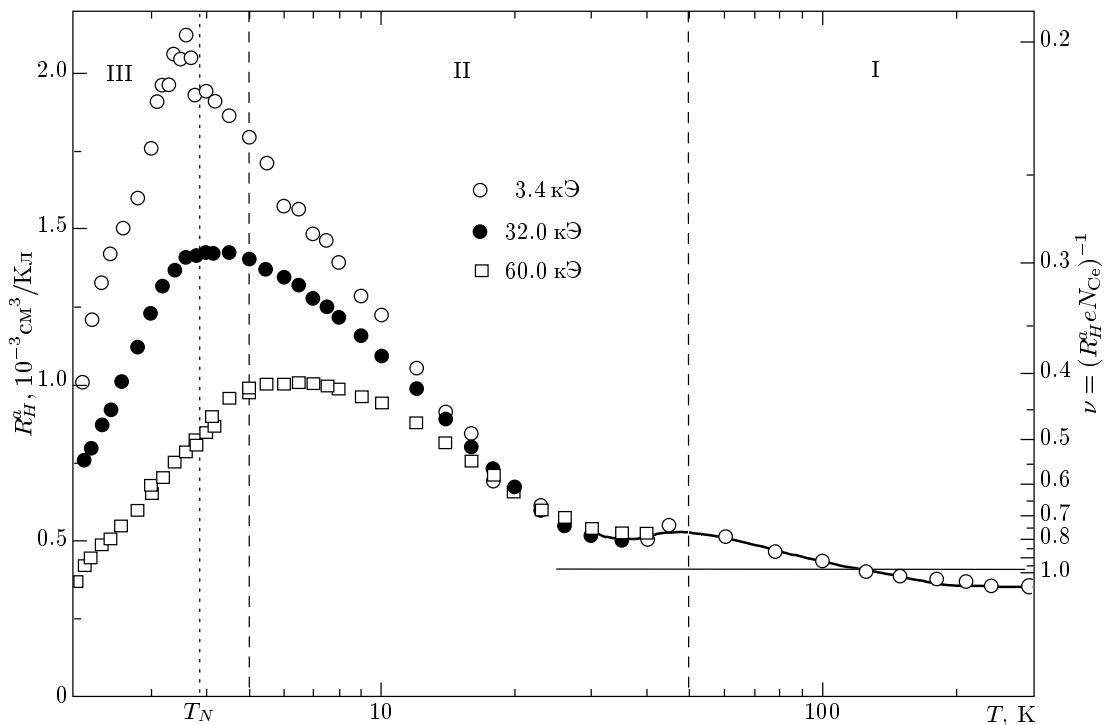


Рис. 10. Температурные зависимости основной аномальной составляющей коэффициента Холла в CeAl₂ в магнитных полях $H_0 = 3.4, 32, 60$ кЭ

окрестности характерной температуры спиновых флюктуаций T_{sf} , которая в исследуемом соединении составляет $T_{sf} = T_K \approx 5$ К [16]. Поскольку, как отмечалось выше, в используемых в работе магнитных полях $H \leq 70$ кЭ выполняется условие $\mu_B H \approx k_B T_{sf}$, амплитуда максимума кривой $R_H^a(T)$ оказывается существенным образом зависящей от напряженности внешнего магнитного поля. При этом подавление в магнитном поле спиновых флюктуаций, обусловленных рассеянием с переворотом спина носителей заряда, приводит к появлению нелинейности полевых зависимостей удельного холловского сопротивления $\rho_H^a(T)$ (см. рис. 7) и, как следствие, к резкому уменьшению амплитуды максимума зависимости $R_H^a(T)$ (рис. 10). Следует подчеркнуть, что аномальная положительная составляющая $R_H^a(T)$ не может быть связана с формированием магнитоупорядоченного (АФМ) состояния в матрице CeAl₂ при температурах $T < T_N \approx 3.85$ К. Действительно, ширина максимума коэффициента Холла $R_H^a(T)$ оказывается достаточно большой по сравнению с T_N ($\Delta T \sim 10$ К, рис. 10), причем подавление амплитуды коэффициента R_H^a в магнитном поле происходит практически с равной эффективностью как для температур

$T_0 \geq T_N$ (см., например, рис. 9а, кривые для $T_0 \approx 4.14$ К и $T_0 \approx 3.8$ К), так и для значений $T_0 < T_N$ (например, $T_0 \approx 3.4$ К на рис. 9а). Таким образом, природа возникновения аномального положительного эффекта Холла в окрестности температуры T_{sf} представляется общей как для соединения CeAl₂, являющегося по классификации авторов работы [23] магнитной кондо-решеткой ($T_{sf} = T_K$), так и для других интерметаллидов на основе церия с сильными спиновыми (немагнитные кондо-решетки [23]) и зарядовыми (соединения с переменной валентностью) флюктуациями, в которых с понижением температуры за счет многочастичных эффектов формируется немагнитное основное состояние. Аналогично, максимум удельного сопротивления при $T_{max}^\rho \approx 5.5$ К (кривая 1 на рис. 2), а также отрицательный минимум коэффициента термоэдс (кривая 6 на рис. 2), на наш взгляд, следует отнести к числу особенностей низкотемпературного транспорта в соединениях с флюктуациями электронной плотности, которые обусловлены формированием многочастичных состояний в матрице CeAl₂. Вопрос о согласованной интерпретации особенностей на кривых $\rho(T)$, $R_H^a(T)$ и $S(T)$ будет рассмотрен более подробно в

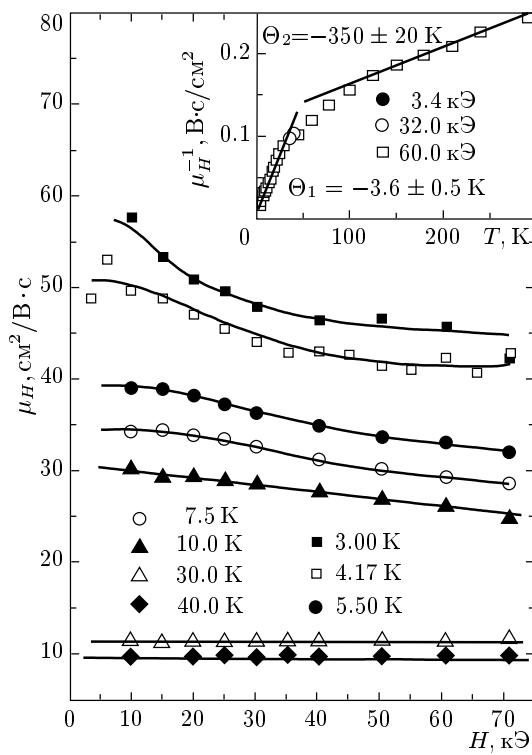


Рис. 11. Полевые зависимости параметра $\mu_H = R_H^a / \rho$ для CeAl_2 при различных температурах. На вставке представлены зависимости $\mu_H^{-1}(T)$ в магнитных полях $H_0 = 3.4, 32, 60$ кЭ

следующем разделе.

Подавление максимума величины $R_H^a(T)$ в магнитном поле сопровождается его заметным смещением вверх по шкале температур (см. рис. 10). Так, в магнитном поле $H \approx 60$ кЭ коэффициент Холла $R_H^a(T_{max}^{R_H})$ уменьшается по абсолютной величине более чем в два раза (см. рис. 10), причем температура $T_{max}^{R_H}$ возрастает до значения $T_{max}^{R_H}(60 \text{ кЭ}) \approx 6.5$ К. Столь заметное смещение низкотемпературной особенности коэффициента $R_H^a(T)$ в сильных магнитных полях вверх по шкале температур полностью коррелирует с поведением в магнитном поле низкотемпературного максимума удельного сопротивления (см. рис. 2 и [15]). В результате при значительном и согласованном уменьшении абсолютных значений параметров $R_H^a(4.2 \text{ К})$ и $\rho(4.2 \text{ К})$ (в магнитном поле $H \approx 70$ кЭ оба параметра уменьшаются примерно в три раза) их отношение $\mu_H = R_H^a / \rho$ оказывается медленно меняющейся функцией магнитного поля (рис. 11).

Следует подчеркнуть, что отмеченный заметный сдвиг вверх по шкале температур низкотемпературных особенностей параметров $R_H^a(T)$ и $\rho(T)$, завися-

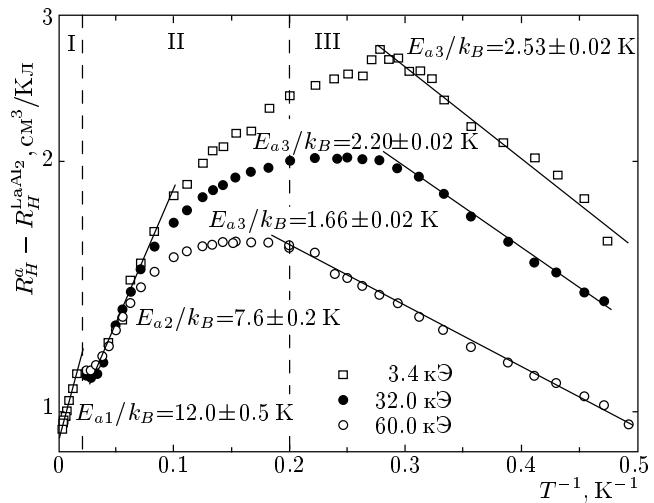


Рис. 12. Температурные зависимости коэффициента Холла $R_H^a - R_H^{\text{LaAl}_2}$ (см. текст) в CeAl_2 , представленные в обратных логарифмических координатах для различных значений магнитного поля

щий от напряженности внешнего магнитного поля, не находит простого объяснения в рамках традиционно используемой модели кондо-решетки. Действительно, в таком подходе указанные аномалии гальваномагнитных свойств в системе с сильными электронными корреляциями, как представляется, связаны с возникновением многочастичного резонанса в плотности электронных состояний в окрестности энергии Ферми E_F шириной порядка $k_B T_K$. В такой ситуации ожидается, что резонансное рассеяние с переворотом спина электронов проводимости на локализованных магнитных моментах церия, которое обусловливает как отмеченную выше перенормировку плотности состояний, так и возникновение аномалий характеристик $R_H^a(T)$ и $\rho(T)$, должно практически полностью подавляться магнитным полем $H \sim k_B T_K / \mu_B$, причем уменьшение по абсолютной величине параметров $R_H^a(T_{max}^{R_H})$ и $\rho(T_{max}^{\rho})$ должно происходить без заметного изменения положения низкотемпературных особенностей гальваномагнитных характеристик.

Другой особенностью поведения аномального коэффициента Холла в CeAl_2 , которая также не укладывается в рамки традиционно используемого подхода, является сложная активационная зависимость $R_H^a(T)$ в этом интерметаллиде, впервые обнаруженная в [12]. На рис. 12 зависимость аномального коэффициента Холла от температуры представлена в координатах $\lg(R_H^a - R_H^{\text{LaAl}_2}) = f(1/T)$. Легко видеть, что в таком представлении поведение $R_H^a(T)$ позво-

ляет выделить три характерных температурных интервала и, соответственно, три асимптотики на зависимости $R_H^a(T)$. В интервалах температур 50–300 К (I) и 10–40 К (II) с понижением температуры наблюдается аномальный активационный рост

$$R_H^a(T) \propto \exp(E_{a1,2}/k_B T) \quad (2)$$

(см. рис. 12) с энергиями активации соответственно $E_{a1}/k_B \approx 12.0 \pm 0.5$ К и $E_{a2}/k_B \approx 7.6 \pm 0.2$ К. Отметим, что приведенные значения E_{a1} и E_{a2} , в отличие от результата работы [12], получены при учете в качестве аномальной составляющей R_H^a соединения CeAl₂ величины коэффициента Холла немагнитного аналога диалюмината церия — соединения LaAl₂, для которого $R_H^{\text{LaAl}_2} \approx -6 \cdot 10^{-4}$ см³/Кл [24]. В интервале температур III ($T \leq 5$ К) ниже максимума поведение величин $R_H^a(T)$ достаточно хорошо описывается зависимостью вида

$$R_H^a(T) \propto \exp(-E_{a3}/k_B T), \quad (3)$$

причем значение E_{a3}/k_B , лежащее в интервале 1.5–2.6 К, оказывается зависящим от величины внешнего магнитного поля (см. рис. 12).

Столь необычное для металлической системы поведение коэффициента Холла $R_H^a(T)$, как отмечалось выше, не только не укладывается в рамки представлений модели кондо-решетки, но также и не находит простого объяснения в модели асимметричного рассеяния носителей заряда [1–4]. Действительно, в основе обоих рассматриваемых подходов лежит учет в качестве превалирующего фактора резонансного рассеяния с переворотом спина электронов проводимости на локализованных магнитных моментах РЗ-ионов, причем как аномальный положительный эффект Холла в соединениях с тяжелыми фермионами (в том числе в соединениях на основе церия), так и аномалии удельного сопротивления, с точки зрения авторов работ [1–4], являются исключительно следствием специфики эффектов рассеяния. В частности, в [1–4] для оценки вклада от асимметричного рассеяния в диапазоне температур выше максимума параметра $R_H^a(T)$ (т. е. для $T > T_K$) получено приближенное соотношение вида

$$R_H^a(T) \propto \rho(T)\chi(T), \quad (4)$$

где $\chi(T)$ — приведенная магнитная восприимчивость системы. Анализ данных, приведенных на рис. 2 и 10, в рамках соотношения (4) для поведения параметра $\mu_H = R_H^a(T)/\rho(T) \propto \chi(T)$, характеризующего рассеяние носителей заряда, в целом приводит к заключению о качественном согла-

сии экспериментальных результатов настоящей работы (см. вставку на рис. 11) с выводами авторов работ [1–4], причем кюри-вейссовское поведение, $\mu_H^{-1}(T) \propto (T - \Theta_{1,2}) \propto \chi^{-1}(T)$, характеризуется значениями парамагнитной температуры Кюри $\Theta_1 = -350 \pm 20$ К и $\Theta_2 = -3.6 \pm 0.5$ К. Однако, как отмечалось выше, за пределами такого подхода оказывается вся совокупность многочастичных эффектов в низкотемпературном транспорте носителей заряда — активационное поведение коэффициента Холла, изменение положения особенностей характеристик $R_H^a(T)$ и $\rho(T)$ в магнитном поле и др. Кроме того, отсутствие в [1–4] последовательного учета влияния эффектов расщепления кристаллическим полем ²F_{5/2}-состояния церия (см. вставку б на рис. 2) на поведение холловской подвижности $\mu_H = R_H^a(T)/\rho(T)$ затрудняет проведение количественного анализа полученных в работе экспериментальных результатов.

Для интерпретации аномалий низкотемпературного транспорта в исследуемом в работе соединении с тяжелыми фермионами существенно более предпочтительным, на наш взгляд, представляется использование подхода, основанного на формировании спин-поляронных состояний в хаббардовских полосах (см., например, монографию Мотта [25], а также работы [26, 27]) вследствие быстрых спиновых флуктуаций в непосредственной окрестности локализованных магнитных моментов церия в матрице CeAl₂. В рамках такого подхода получает естественное объяснение активационное поведение коэффициента Холла в CeAl₂ (см. рис. 12), при этом, с нашей точки зрения, энергием активации $E_{a1,2}$ следует сопоставить характеристики спин-поляронных комплексов, образованных в окрестности Се-центров. С понижением температуры переход от случая $T \geq \Delta_{1,2}$ (интервал I на рис. 12, $\Delta_{1,2}$ — параметры расщепления кристаллическим полем ²F_{5/2}-состояния церия, $\Delta_1 = 100$ К и $\Delta_2 = 170$ К [16–18, 28–30], см. вставку б на рис. 2) к случаю $T < \Delta_1 \approx 100$ К обуславливает смену режима быстрых спиновых 4f–5d-флуктуаций и, как следствие, изменение параметров спин-поляронных состояний в CeAl₂. Для оценки радиусов локализации $a_{p1,2}^*$ и эффективных масс $m_{1,2}^*$ многочастичных состояний с энергиями связи $E_{a1}/k_B \approx 12$ К (в интервале I) и $E_{a1}/k_B \approx 7.6$ К (в интервале II) (рис. 12) воспользуемся соотношениями

$$m_{1,2}^* = e\tau_{eff}/\mu_H, \quad (5)$$

$$a_{p1,2}^* = \hbar/\sqrt{2E_{a1,2}m_{1,2}^*}. \quad (6)$$

Время релаксации τ_{eff} при различных значениях

ях температуры в интервале 4–300 К может быть получено из полуширины $\Gamma/2$ квазиупругого пика в спектрах рассеяния нейтронов CeAl₂ (см., например, [16]). Используя соотношение

$$\Gamma/2 = \hbar/\tau_{eff}, \quad (7)$$

для τ_{eff} (5 К) и τ_{eff} (60 К) находим соответственно значения $1.3 \cdot 10^{-12}$ с и $4.1 \cdot 10^{-13}$ с. С учетом экспериментальных данных рис. 2, 10, 11 для параметра $\mu_H(T)$ в рамках соотношений (5), (6) эффективные массы тяжелых носителей заряда и соответствующие радиусы локализации спин-поляронных состояний оказываются равными

$$m_1^*(60 \text{ K}) \approx 90m_0, \quad a_{p1}^* = 6.4 \text{ \AA},$$

$$m_2^*(5 \text{ K}) \approx 57m_0, \quad a_{p2}^* = 10 \text{ \AA}$$

(m_0 — масса электрона). Следует подчеркнуть, что полученные оценки для $m_{1,2}^*$ и $a_{p1,2}^*$ оказываются сравнимыми по порядку величины с найденными в [31] значениями параметров $m_e^* \approx 30m_0$, $a_{ep}^* \approx 6 \text{ \AA}$ экситон-поляронных многочастичных состояний для классического соединения с быстрыми зарядовыми и спиновыми флуктуациями — гексаборида самария SmB₆.

В рамках предложенного подхода вполне естественное объяснение находит также обнаруженный в настоящей работе сдвиг в магнитном поле аномалий гальваномагнитных характеристик CeAl₂ вверх по шкале температур (см. рис. 2, 10). Образование спиновых поляронов в результате быстрых спиновых флуктуаций на Се-центрах сопровождается появлением обменного поля H_{ex} , которое в значительной степени является причиной аномально-го усиления коэффициента Холла и возникновения особенностей на кривых $R_H^a(T)$ в окрестности $k_B T_{sf} \approx \mu_B H_{ex}$. При этом с ростом напряженности внешнего магнитного поля, наряду с подавлением быстрых спиновых флуктуаций на Се-центрах, суммирование составляющих $H + H_{ex}$ приводит к существенному сдвигу аномалий транспортных характеристик вверх по шкале температур. В этой связи следует отметить, что при низких температурах величина $H_{ex} \approx 75 \text{ кЭ}$ в CeAl₂ была оценена авторами работ [14, 32, 33] из анализа спектров дифракции поляризованных нейтронов. Близкое значение H_{ex} было найдено также в [22] из анализа данных измерений магнитострикции в CeAl₂ при гелиевой температуре: $H_{ex} \approx 79 \pm 2 \text{ кЭ}$. Дополнительной «оценкой снизу» величины обменного поля $\mu_B H_{ex}/k_B$ может

являться также найденное в настоящей работе значение $\Theta_2 \approx -3.6 \pm 0.5 \text{ К}$ (см. вставку на рис. 11), которое с хорошей точностью воспроизводит полученное в [34] из измерений магнитной восприимчивости соединения CeAl₂ значение парамагнитной температуры Кюри: $\Theta \approx -3.9 \text{ К}$.

Другим немаловажным аргументом в пользу спин-поляронного подхода, предложенного нами для интерпретации низкотемпературных свойств соединения CeAl₂, очевидно, может служить аномалия Шоттки низкотемпературной теплоемкости в окрестности $T \approx 6 \text{ К}$, обнаруженная авторами работы [35] при измерениях в магнитном поле $H \approx 50 \text{ кЭ}$. Напомним, что, согласно результату, полученному в настоящей работе (см. рис. 10), во внешнем магнитном поле $H \approx 60 \text{ кЭ}$ зеемановское расщепление основного состояния системы в эффективном поле $H_{eff} = H + H_{ex}$ обуславливает появление максимума на зависимости $R_H^a(T)$ в окрестности $T_{max}^{R_H}(60 \text{ кЭ}) \approx 6.5 \text{ К}$. При этом особый смысл приобретает расчет параметров двухуровневой системы в модели резонансного уровня, выполненный в работе [35] по результатам измерений низкотемпературной теплоемкости в CeAl₂. С использованием значения $\Gamma/2 = \hbar/\tau_{eff} = k_B T_K \approx 0.5 \text{ мэВ}$ для оценки ширины уровней двухуровневой системы в [35] была найдена энергия активации $E_a/k_B \approx 9.6 \text{ К}$, которая в пределах погрешности расчетов [35] и с учетом вклада от внешнего магнитного поля $H = 50 \text{ кЭ}$ в зеемановское расщепление Γ_7 -дублета достаточно хорошо согласуется с величиной $E_a/k_B \approx 7.6 \pm 0.2 \text{ К}$, найденной в настоящей работе.

В рамках предложенного подхода при понижении температуры в интервале $T < 50 \text{ К}$ (область II на рис. 10) наряду с ростом амплитуды многочастичного резонанса в окрестности энергии Ферми E_F следует ожидать также существенной перестройки магнитной структуры спиновых поляронов. Аналогично результату, полученному для соединения FeSi с сильными электронными корреляциями [36, 37], переход к когерентному режиму спиновых флуктуаций в окрестности Се-центров должен сопровождаться образованием из спиновых поляронов ферромагнитных микрообластей (ферронов) в матрице CeAl₂. Как показывает исследование, выполненное в [36, 37] для моносилицида железа, дополнительной особенностью такого «фазового превращения» в системе магнитных областей наноразмера является сохранение практически неизменными активационными характеристиками (параметрами зонной структуры) как для спиновых поляронов, так и для образованных из них ферромагнитных нанокла-

стеров. По-видимому, похожая ситуация реализуется и в случае соединения CeAl₂, для которого при $T < 20$ К в [38] обнаружено возникновение сильной дисперсии упругих постоянных и связанной с этим значительной аномалии в поглощении ультразвука в этом соединении. Следует отметить также результат, полученный авторами работ [39, 40] при исследованиях спин-решеточной релаксации ЯМР в АФМ-фазе CeAl₂, который связан с обнаружением «энергетической щели» в спектре возбуждения магнонов» с $E_g = 0.87 \pm 0.08$ мэВ [39] ($E_g = 11 \pm 3$ К [40]). Кроме того, в работе [17] при исследованиях спектров неупругого рассеяния нейtronов в магнитоупорядоченной фазе CeAl₂ найдены две особенности поглощения — «магнонные пики» при энергиях $E_{a1} = 1.2 \pm 0.8$ мэВ и $E_{a2} = 0.7 \pm 0.4$ мэВ, значения которых в пределах экспериментальной точности [17] соответствуют найденной в настоящей работе величине энергии связи спиновых поляронов $E_{a1,2}$ (см. рис. 12). В то же время следует подчеркнуть и существенные отличия формирования многочастичных состояний в узкозонном полупроводнике FeSi, которому при низких температурах $T < 40$ К отвечает достаточно низкая концентрация спиновых поляронов ($10^{17}\text{--}10^{18}$ см⁻³ [36, 37]), от случая, реализующегося в интерметаллиде CeAl₂ в условиях значительной ширины зоны проводимости. При этом, кроме существенного влияния эффектов экранирования, в CeAl₂ возникает также сильное магнитное взаимодействие ферромагнитных микрообластей через РКИ-осцилляции электронной плотности (непрямой обмен). Связанные с этим особенности формирования магнитоупорядоченного состояния в CeAl₂ сравнительно недавно обсуждались в [19]. По-видимому, столь сложная магнитная структура в матрице CeAl₂ на длине среднего и дальнего магнитных порядков (антиферромагнитное упорядочение в системе ферронов субмикронного размера) и является основной причиной, создающей существенные трудности (см., например, [41–47]) в идентификации магнитоупорядоченных фаз в этом соединении.

Возвращаясь к экспериментальным результатам, представленным на рис. 10 и 12, отметим, что обнаруженная в работе для аномального вклада в коэффициент Холла соединения CeAl₂ при $T < 10$ К зависимость вида $R_H^a(T) \propto \exp(-E_{a3}/k_B T)$ аналогична предсказанной авторами [48] на основании расчетов поведения коэффициента Холла в системе с топологически нетривиальными спиновыми конфигурациями (фазы Берри). Как показано в [48, 49], в такой ситуации эффект Холла модифицируется

за счет возникновения внутреннего магнитного поля $H_{int} = \langle h_z \rangle \propto (1/k_B T) \exp(-E_a/k_B T)$, которое складывается с напряженностью внешнего поля H .

В заключение настоящего раздела приведем достаточно грубую оценку радиуса локализации многочастичных состояний, воспользовавшись результатами рис. 10. При этом параметру R_H^a сопоставим эффективное значение приведенной концентрации носителей на атом церия $\nu = (R_H e N_{Ce})^{-1}$ (правая ось на рис. 10). В такой ситуации изменению величины ν в интервале $0 < \nu \leq 1$ может быть сопоставлено увеличение эффективного объема, приходящегося на носитель, которое, как представляется, обусловлено многочастичными эффектами в матрице CeAl₂. Зная характерное расстояние Ce—Ce в кристаллической структуре фазы Лавеса соединения CeAl₂ ($a_{Ce-Ce} \approx 3.5$ Å [50]) для значений $\nu = N/N_{Ce} = 0.2\text{--}0.3$, в окрестности максимума параметра R_H^a получаем грубую оценку: $a_p^* = 6\text{--}16$ Å.

4.4. Разделение вкладов в транспортные коэффициенты $\rho(T)$, $S(T)$ и $R_H^a(T)$

Как было ранее отмечено в разд. 3, поведение кривых удельного сопротивления $\rho(T)$ (рис. 2, кривая 1), коэффициента термоэдс $S(T)$ (рис. 2, кривая 6) и коэффициента Холла $R_H^a(T)$ (рис. 10, 12, $H = 3.4$ кЭ) в интервале температур 1.8–300 К характеризуется наличием ряда аномалий, позволяющих сделать вывод о согласованном изменении указанных параметров в диапазонах температур 50–300 К (I), 5–50 К (II) и $T < 5$ К (III) в соединении CeAl₂. При этом отличительной особенностью транспорта носителей заряда в области I является определяющий вклад процессов неупругого рассеяния, связанного с переходами между основным (Γ_7) и двумя возбужденными дублетами (см. вставку б рис. 2) $^2F_{5/2}$ -состояния церия. Режиму I транспорта носителей в CeAl₂ в интервале 100–300 К отвечают линейная зависимость $\rho(T)$ в сочетании с медленно меняющимся положительным (12–15 мкВ/К) коэффициентом термоэдс и близким к активационному поведением коэффициента Холла с $E_{a1}/k_B \approx 12$ К. Смена режима от I к II (см. рис. 2, 10, 12, а также рис. 13) сопровождается резким изменением измеряемых величин ρ , S , R_H^a , причем наряду с существенным отклонением от линейной зависимости $\rho(T)$ на кривых $S(T)$ и $R_H^a(T)$ в окрестности $T \approx 50$ К наблюдаютсya соответственно инверсия знака (см. рис. 2, кривая

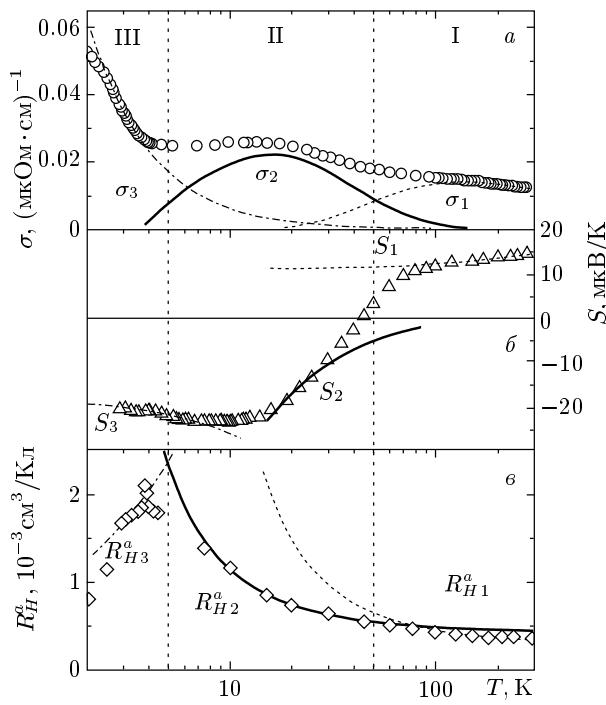


Рис. 13. Разложение на вклады температурных зависимостей транспортных характеристик $\sigma(T)$ (а), $S(T)$ (б) и $R_H^a(T)$ (в) в CeAl₂ в интервалах температур I, II и III

6) и излом (см. рис. 12). Набор низкотемпературных особенностей поведения параметров ρ , S , R_H^a в переходной области 4–12 К между интервалами II и III (рис. 2, 10, 12, 13) также позволяет отчетливо установить смену асимптотик указанных транспортных характеристик в соединении CeAl₂.

Поскольку к настоящему времени отсутствует надежная и согласованная интерпретация транспортных характеристик соединений с тяжелыми фермионами на основе церия, включая выяснение природы и идентификацию различных вкладов в проводимость, термоэдс и коэффициент Холла, представляет интерес провести такой сравнительный анализ по результатам измерений, выполненных в настоящей работе на поликристаллических образцах CeAl₂ высокого качества. Среди немногих известных примеров совместной интерпретации данных сопротивления и термоэдс в цериевых интерметаллидах следует отметить работу [51], авторы которой использовали соотношение Нордгейма вида

$$\rho S = \rho_0 S_0 + \rho_{mag} S_{mag}$$

для анализа примесного и магнитного вкладов в $\rho(T)$ и $S(T)$ соединения CeNi₂Sn₂. Однако столь

упрощенное представление суммы составляющих низкотемпературного транспорта в тетрагональном соединении с $\Delta \approx 20$ К и $T_{sf} = T_K \approx 1.6$ К представляется по меньшей мере недостаточно точным. Кроме того, согласно выводам работы [52], соотношение Гортера–Нордгейма, как и правило Матиссена $\rho = \sum_i \rho_i$, не является хорошим приближением в случае соединений с тяжелыми фермионами, где необходимо принимать во внимание качественную перестройку плотности электронных состояний в окрестности E_F .

Таким образом, более правильным представляется использование стандартных соотношений для σ , S и R_H^a в виде [53]

$$\sigma = \sum_{i=1}^3 \sigma_i, \quad (8)$$

$$S\sigma = \sum_{i=1}^3 \sigma_i S_i, \quad (9)$$

$$R_H^a \sum_{i=1}^3 \sigma_i^2 = \sum_{i=1}^3 \sigma_i^2 R_{Hi}^a. \quad (10)$$

Поскольку при анализе экспериментальных данных настоящей работы применение суммы немагнитного S_0 , положительного кондовского $S_d^{(1)}(T)$ и отрицательного резонансного $S_d^{(2)}(T)$ термов в рамках подхода, предложенного в [52], оказалось невозможным (в [52] для температуры инверсии термоэдс получено соотношение $T_{inv}^S < 0.6T_K \approx 3$ К, которое заведомо противоречит значению $T_{inv}^S \approx 46$ К в CeAl₂), далее нами реализован феноменологический подход к разделению вкладов в σ , S и R_H^a в этом соединении.

Подчеркнем также, что, насколько нам известно, вплоть до настоящего времени не проводилось самосогласованного анализа вкладов в транспортные коэффициенты σ , S и R_H^a для соединений с тяжелыми фермионами на основе редкоземельных элементов.

Принимая во внимание, что в области I наиболее существенными являются неупругие процессы рассеяния носителей, сопровождающиеся переходами между дублетами $^2F_{5/2}$ -состояния церия, которые отстоят на $\Delta_1 \approx 100$ К, $\Delta_2 \approx 170$ К от основного дублета Γ_7 , в работе для представления вкладов σ_1 , S_1 и R_{H1}^a (см. рис. 13) использовались следующие аналитические выражения:

$$\begin{aligned}
&\sigma_1 = \sigma_0(T) \exp(-\Delta_1/k_B T), \\
&\sigma_0(T) = 1.03/T^\alpha, \quad \alpha = 0.73, \\
&S_1 = S_0^{(I)} + BT, \quad S_0^{(I)} = 11 \text{ мкВ/К}, \\
&B = 0.0085 \text{ мкВ/К}^2, \\
&R_{H1}^a = R_{H1}^{a(0)} \exp\left(\frac{E_{a1}^{R_H}}{k_B T}\right) - R_H^{\text{LaAl}_2}, \\
&R_{H1}^{(0)} \approx 0.89 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3/\text{Кл}, \\
&E_{a1}^{R_H}/k_B \approx 12 \text{ К}.
\end{aligned} \tag{11}$$

При этом предэкспоненциальный множитель $\sigma_0(T)$ был найден подгонкой экспериментальной зависимости с помощью процедур оптимизации программы ORIGIN 6.1.

В выражениях (11) для описания «неупругого» вклада σ_1 было использовано весьма упрощенное соотношение, дающее активационную зависимость проводимости в переходной области при $T < 100$ К, основным требованием к которому явилось обращение в нуль составляющей σ_1 при $T \ll 100$ К. Очевидно, в действительности в высокотемпературном вкладе присутствует также составляющая σ_{Γ_7} от рассеяния носителей на основном дублете Γ_7 , которая, в отличие от «неупругого» вклада, сохраняется и при низких температурах. Однако сравнительные оценки относительной величины указанной составляющей в области I приводят к значению $\sigma_{\Gamma_7} \leq 0.1\sigma_1$, что, на наш взгляд, оправдывает используемое приближение.

Кроме того, наряду с небольшим линейным членом в выражениях (11) присутствует большой постоянный вклад S_1 в термоэдс, что позволяет воспользоваться формулой Хикса для термоэдс в условиях сильных хаббардовских корреляций:

$$S_0^I = \frac{k_B}{e} \ln\left(\frac{1-\nu}{\nu}\right), \tag{12}$$

где, как и в предыдущем разделе, использовано обозначение $\nu = N/N_{Ce}$, $N_{Ce} \approx 1.5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ в CeAl₂. Отсюда для оценки концентрации носителей в интервале температур 100–300 К получаем $\nu_I \approx 0.53$ и $N_I \approx 8 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$. Следует подчеркнуть, что формула (12) является высокотемпературной асимптотикой параметра S , что в нашем случае отвечает формированию полосы спин-поляронных состояний шириной $E_{a2}/k_B \approx 12$ К в окрестности E_F .

Как отмечалось в [36] для спин-поляронных состояний в матрице FeSi, соответствующая активационная зависимость коэффициента Холла для спин-полярного транспорта в соотношении (11)

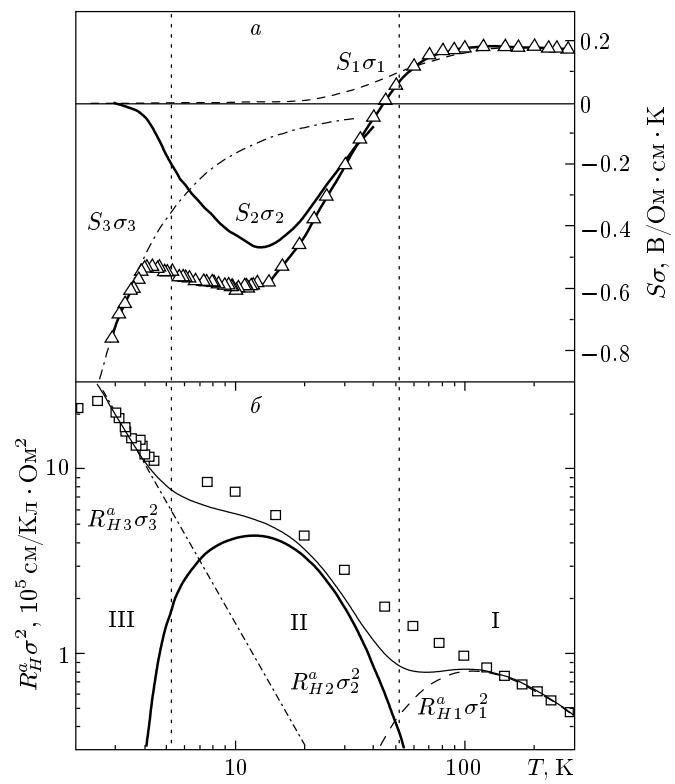


Рис. 14. Разложение величин $S\sigma$ (а) и $R_H^a \sigma^2$ (б) для CeAl₂ на парциальные вклады в интервалах температур I, II и III

также позволяет получить приближенную оценку концентрации носителей,

$$N_I^{\text{CeAl}_2} = \frac{1}{eR_{H1}^{a(0)}} \approx 7 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3},$$

достаточно хорошо согласующуюся с полученным выше результатом.

С понижением температуры в интервале 50–100 К происходит смена асимптотик всех исследуемых параметров транспорта носителей заряда в CeAl₂ (см. рис. 13, 14). При этом соответствующие вклады в величины σ , S и R_H^a оказываются сравнимы по порядку величины. Аналогичная ситуация реализуется и в переходной области температур 5–10 К между интервалами II и III, где сравнимыми по величине оказываются составляющие σ_2 и σ_3 , S_2 и S_3 , а также R_{H2}^a и R_{H3}^a (см. рис. 13, 14). При этом в рамках феноменологического подхода к разделению вкладов в низкотемпературный транспорт нами далее использовалась следующая процедура. В интервале III для аппроксимации экспериментальных данных, приведенных на рис. 2,

10, использовались аналитические зависимости вида

$$\sigma_3 = AT^{-\beta}, \quad \beta = 1.44,$$

$$S_3 = S_0^{\text{III}} + CT, \quad S_0^{\text{III}} = -18 \text{ мкВ/К}, \quad C = -0.8 \text{ мкВ/К}^2, \quad (13)$$

$$R_{H3}^a = DT^{0.7}, \quad D = 0.76386.$$

Соотношения (13) позволяют достаточно точно описать поведение экспериментальных кривых σ^{exp} , S^{exp} , R_H^{exp} при $T < 4$ К.

Далее, из условия аддитивности проводимости σ (соотношение (8)) вычитанием из экспериментальной кривой σ^{exp} суммы вкладов $\sigma_1 + \sigma_3$ была получена составляющая σ_2 . При анализе вкладов S_2 и R_{H2}^a использовались соотношения, описывающие активационное поведение термоэдс и коэффициента Холла в интервале II:

$$S_2 \propto \frac{k_B}{e} \frac{E_{a2}^S}{k_B T},$$

$$R_{H2}^a = R_{H2}^{a(0)} \exp\left(\frac{E_{a2}^{R_H}}{k_B T}\right) - R_H^{\text{LaAl}_2}. \quad (14)$$

Как легко видеть из представленных на рис. 13 составляющих величин σ , S и R_H^a , а также из приведенной на рис. 14 проверки их аддитивности в рамках соотношений (9), (10), предложенная процедура разделения вкладов, несмотря на ее приближенный характер, в целом позволяет получить количественное описание поведения транспортных коэффициентов в CeAl₂ и выполнить ряд оценок микроскопических параметров, характеризующих электронную структуру этого соединения. При этом в рамках применяемой процедуры оценки энергии активации коэффициента термоэдс в интервале II приводят к заметно меньшему значению $E_{a2}^S/k_B \approx 3.6$ К по сравнению с результатом для коэффициента Холла $E_{a2}^H/k_B \approx 7$ К. Далее, использование величины $R_{H2}^{a(0)} \approx 1.03 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3/\text{Кл}$ в (14) для оценки концентрации носителей дает в интервале II для N_{II} значение $6 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ или $\nu = N_{\text{II}}/N_{\text{Ce}} \approx 0.4$. Численное значение $S_0^{\text{III}} = -18 \text{ мкВ/К}$ в (13) формально может быть также использовано в рамках спин-поляронного подхода для оценки приведенной концентрации носителей в переходной области температур 5–10 К. При этом применение высокотемпературной асимптотики термоэдс — соотношений (12) — представляется оправданным, поскольку формирование узкой полосы многочастичных состояний в окрестности E_F с энергией активации $E_{a2}/k_B \approx 7.6$ К приводит при $T < 20$ К,

согласно представленным выше аргументам, к образованию ферромагнитных нанокластеров на базе спин-поляронных состояний. В результате для параметров $\nu_{\text{II–III}}$ и $N_{\text{II–III}}$ имеем

$$\nu_{\text{III}} \approx 0.45, \quad N_{\text{III}} \approx 6.8 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}.$$

Следует также подчеркнуть, что сравнение значений энергии активации термоэдс ($E_{a2}^S/k_B \approx 3.6$ К) и коэффициента Холла ($E_{a2}^H/k_B \approx 7$ К), а также найденного в данной работе ($\Theta_p \approx 3.6$ К) и измеренного в [34] ($\Theta_p \approx 3.9$ К) значений парамагнитной температуры Кюри позволяет, по-видимому, сделать предположение о присутствии двух составляющих примерно одинаковой величины, определяющихся при низких температурах формирование многочастичных состояний в матрице CeAl₂. При этом можно ожидать, что спин-поляронный (магнитный) вклад в E_{a2} , не проявляющийся в температурной зависимости термоэдс [53], в то же время является доминирующим для магнитных обменных параметров Θ_p и $H_{ex} \approx 75$ кЭ. В рамках такого предположения можно ожидать сложения вкладов от экситонной ($4f^+ - 5d^-$) и спин-поляронной составляющих при формировании значения $E_{a2}^{R_H}$, характеризующего низкотемпературное поведение коэффициента Холла. В то же время представленных экспериментальных результатов явно не достаточно для надежного обоснования экситон-поляронной природы многочастичных состояний в исследуемом в настоящей работе соединении CeAl₂ с быстрыми флюктуациями электронной плотности.

В заключение настоящего раздела отметим, что в рамках используемого подхода к разделению вкладов в низкотемпературный зарядовый транспорт наиболее сложным, на наш взгляд, представляется количественный анализ составляющих σ_3 , S_3 и R_{H3}^a при $T < 5$ К, где наряду с установлением когерентности (формированием зон тяжелых носителей) приходится учитывать также эффекты, связанные с возникновением сложного магнитного порядка в исследуемых интерметаллидах на основе церия.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленные в работе детальные измерения эффекта Холла в соединении CeAl₂ с быстрыми флюктуациями электронной плотности позволили разделить и классифицировать вклады в аномальный эффект Холла в этом соединении с тяжелыми фермионами. Обнаруженное в работе при $T < 10$ К появление «четной по магнитному полю» аномаль-

ной магнитной составляющей холловского сопротивления оказывается обусловленным особенностями установления среднего и дальнего магнитных порядков и реализацией сложной магнитной фазовой H - T -диаграммы в CeAl₂ при низких температурах. Этот результат совместно с оценками магнитных обменных параметров $\Theta_p \approx 3.6$ К и $H_{ex} \approx 75$ кЭ, по-видимому, свидетельствует в пользу возникновения ферромагнитных областей наноразмера в матрице CeAl₂ при температурах, существенно превышающих температуру Нееля $T_N \approx 3.85$ К в этом соединении. Показано, что изменение с температурой основной аномальной компоненты R_H^a в этом соединении с тяжелыми фермионами носит сложный активационный характер. Обнаруженное поведение величины $R_H^a(T)$ в CeAl₂ не согласуется с интерпретацией в рамках моделей асимметричного рассеяния об определяющей роли эффектов рассеяния при формировании аномалий коэффициента Холла в концентрированных кондо-системах.

Исследованные в работе особенности подавления аномального эффекта Холла в сильном магнитном поле, по-видимому, свидетельствуют о необходимости учета спин-поляронных эффектов при интерпретации поведения транспортных характеристик в интерметаллидах на основе церия. Выполнены оценки параметров, характеризующих многочастичные состояния, возникающие в матрице CeAl₂ при низких и промежуточных температурах (эффективные массы, радиус локализации). Представленный в работе оригинальный анализ вкладов в транспортные характеристики соединения CeAl₂, выполненный по результатам исследований эффекта Холла совместно с данными измерений удельного сопротивления и коэффициента термоэдс, также позволяет сделать вывод о наличии существенных ограничений подхода, использующего модель кондо-решетки, применительно к описанию совокупности свойств концентрированных кондо-систем на основе церия.

Работа выполнена в рамках проектов РФФИ (№№ 01-02-16601, 03-02-06531), проекта «Новые материалы» Министерства образования РФ (№ 202.07.01.023), а также при финансовой поддержке программы ОФН РАН «Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах», программы развития приборной базы научных организаций Минпромнауки РФ, проекта INTAS № 00-807 и программы поддержки молодых ученых РАН. Особая благодарность за индивидуальную поддержку

выражается Фонду содействия отечественной науке (В. В. Г. и С. В. Д.), Правительству Москвы и Фонду Сороса (А. В. Б. и М. И. И.).

ЛИТЕРАТУРА

1. P. Coleman, P. W. Anderson, and T. V. Ramakrishnan, Phys. Rev. Lett. **55**, 414 (1985).
2. A. Fert and P. M. Levy, Phys. Rev. B **36**, 1907 (1987).
3. P. M. Levy and A. Fert, Phys. Rev. B **39**, 12224 (1989).
4. P. M. Levy, Phys. Rev. B **38**, 6779 (1988).
5. N. B. Brandt, V. V. Moshchalkov, N. E. Sluchanko et al., Sol. St. Comm. **53**, 645 (1985).
6. V. V. Moshchalkov, F. G. Aliev, N. E. Sluchanko et al., J. Less Comm. Met. **127**, 321 (1987).
7. T. Penney, F. P. Milliken, S. von Molnar et al., Phys. Rev. B **34**, 5959 (1986).
8. A. Fert, P. Pureur, A. Hamzic, and J. P. Kappler, Phys. Rev. B **32**, 7003 (1985).
9. T. Hiraoka, E. Kinoshita, T. Takabatake et al., Physica B **199–200**, 440 (1994).
10. H. Sugawara, H.R. Sato, Y. Aoki, and H. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 174 (1997).
11. U. Welp, P. Haen, G. Bruls et al., J. Magn. Magn. Mat. **63–64**, 28 (1987).
12. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., Письма в ЖЭТФ **76**, 31 (2002).
13. Н. Е. Случанко, В. В. Глушков, С. В. Демишин и др., ЖЭТФ **113**, 339 (1998).
14. B. Barbara, J. X. Boucherle, J. L. Buevoz et al., Sol. St. Comm. **24**, 481 (1977).
15. F. Lapierre, P. Haen, A. Briggs, and M. Sera, J. Magn. Magn. Mat. **63–64**, 76 (1987).
16. F. Steglich, C. D. Bredl, M. Loewenhaupt, and K. D. Schotte, J. de Phys., Coll. C5-Suppl. **40**, 301 (1979).
17. S. Osborn, M. Loewenhaupt, B. D. Rainford, and W. G. Stirling, J. Magn. Magn. Mat. **63–64**, 70 (1987).
18. M. Loewenhaupt, W. Reichardt, R. Pynn, and E. Lindley, J. Magn. Magn. Mat. **63–64**, 73 (1987).
19. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, И. Б. Воскобойников и др., ФТТ **45**, 1046 (2003).

- 20.** M. Croft, I. Zoric, and R. D. Parks, Phys. Rev. B **18**, 345 (1978).
- 21.** M. Croft, I. Zoric, and R. D. Parks, Phys. Rev. B **18**, 5065 (1978).
- 22.** E. Fawcett, V. Pluzhnikov, and H. Klimker, Phys. Rev. B **43**, 8531 (1991).
- 23.** N. B. Brandt and V. V. Moshchalkov, Adv. Phys. **33**, 373 (1984).
- 24.** M. Christen and M. Godet, Phys. Lett. **63A**, 125 (1977).
- 25.** Н. Ф. Мотт, *Переходы металл–изолятор*, Наука, Москва (1979), с. 171.
- 26.** S. H. Liu, Phys. Rev. B **37**, 3542 (1988).
- 27.** T. Portengen, Th. Ostreich, and L. J. Sham, Phys. Rev. B **54**, 17452 (1996).
- 28.** M. Loewenhaupt, B. D. Rainford, and F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **42**, 1709 (1979); M. Loewenhaupt and U. Witte, J. Phys.: Condens. Matter **15**, S519 (2003).
- 29.** P. Thalmeier and P. Fulde, Phys. Rev. Lett. **49**, 1588 (1982).
- 30.** G. Guntherodt, A. Jayaraman, G. Batlogg et al., Phys. Rev. Lett. **51**, 2330 (1983).
- 31.** N. E. Sluchanko, V. V. Glushkov, B. P. Gorshunov et al., Phys. Rev. B **61**, 15, 9906 (2000).
- 32.** B. Barbara, M. F. Rossignol, J. X. Boucherle et al., Phys. Rev. Lett. **45**, 938 (1980).
- 33.** A. Benoit, J. X. Boucherle, J. Flouquet et al., in *Valence Fluctuations in Solids*, ed. by L. M. Falicov, W. Hanke, and M. B. Maple, North-Holland, Amsterdam (1981), p. 197.
- 34.** M. C. Croft, R. P. Guertin, L. C. Kupferberg, and R. D. Parks, Phys. Rev. B **20**, 2073 (1979).
- 35.** C. D. Bredl, F. Steglich, and K. D. Shotte, Z. Phys. B **29**, 327 (1978).
- 36.** Н. Е. Случанко, В. В. Глушков, С. В. Демишин и др., ЖЭТФ **119**, 359 (2001).
- 37.** N. E. Sluchanko, V. V. Glushkov, S. V. Demishev et al., Phys. Rev. B **65**, 064404 (2002).
- 38.** G. Hampel and R. H. Blick, J. Low Temp. Phys. **99**, 71 (1995).
- 39.** D. E. MacLaughlin, O. Peca, and M. Lysak, Phys. Rev. B **23**, 1039 (1981).
- 40.** J. L. Gavilano, J. Hunziker, O. Hudak et al., Phys. Rev. B **47**, 3438 (1993).
- 41.** S. M. Shapiro, E. Gurewitz, R. D. Parks, and L. C. Kupferberg, Phys. Rev. Lett. **43**, 23, 1748 (1979).
- 42.** A. Schenk, D. Andreica, M. Pinkpank et al., Physica B **259–261**, 14 (1999).
- 43.** A. Schenk, D. Andreica, F. N. Gygax, and H. R. Ott, Phys. Rev. B **65**, 024444 (2001).
- 44.** A. Amato, Rev. Mod. Phys. **69**, 4, 1119 (1997).
- 45.** E. M. Forgan, B. D. Rainford, S. L. Lee et al., J. Phys.: Condens. Matter **2**, 10211 (1990).
- 46.** F. Giford, J. Schweizer, and F. Tasset, Physica B **234–236**, 685 (1997).
- 47.** T. Chattopadhyay and G. J. McIntyre, Physica B **234–236**, 682 (1997).
- 48.** J. Ye, Y. B. Kim, A. J. Millis et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 3737 (1999).
- 49.** Y. B. Kim, P. Majumdar, A. J. Millis, and B. I. Shraiman, E-print archives cond-mat/9803350 (1998).
- 50.** E. Walker, H. G. Purwins, M. Landolt, and F. Hulliger, J. Less Comm. Met. **33**, 203 (1973).
- 51.** J. Sakurai, H. Takagi, T. Kuwai, and Y. Isikawa, J. Magn. Magn. Mat. **177–181**, 407 (1998).
- 52.** K. H. Fisher, Z. Phys. B **76**, 315 (1989).
- 53.** P. M. Chaikin, in *Organic Superconductivity*, ed. by V. Z. Kresin and W. A. Little, Plenum Press, New York (1990), p. 101.