

## Низкочастотный импеданс и теплоемкость соединения $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$

А. М. Гуревич<sup>1</sup>, В. М. Дмитриев<sup>1,2</sup>, В. Н. Еропкин<sup>1</sup>, Л. А. Ищенко<sup>1</sup>,  
Н. Н. Пренцлау<sup>1</sup>, Л. В. Шлык<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,  
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47  
E-mail: dmitriev@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup> Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур,  
Польша, 53-421. г. Вроцлав, ул. Гайовицкая, 95

Статья поступила в редакцию 10 июля 1998 г., после переработки 7 августа 1998 г.

В  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  исследованы температурные зависимости низкочастотного ( $0\text{--}10^7$  Гц) импеданса в интервале  $4,5\text{--}300$  К и теплоемкости при  $1,5\text{--}120$  К. Обнаружены особенности, свидетельствующие о наличии при  $T_N = 100,5$  К антиферромагнитного фазового упорядочения. При некоторой температуре  $T_1 < T_N$  происходит резкое повышение сопротивления. Ниже этой температуры в слабом магнитном поле ( $H < 50$  Э) наблюдается отрицательный магниторезистивный эффект. Показано, что низкотемпературные аномалии при  $T < 25$  К обусловлены переходом в сверхпроводящее состояние, что подтверждается наличием эффекта Мейсснера, левитации, снижения омических потерь, а также влиянием постоянного магнитного поля и тока на сопротивление соединения. Высказано предположение о фазовом магнитоструктурном переходе при  $T_1 < T_N$ , следствием которого являются отмеченные особенности физических свойств  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ .

В  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  досліджено температурні залежності низькочастотного ( $0\text{--}10^7$  Гц) імпедансу і теплоємності відповідно в температурних інтервалах  $4,5\text{--}300$  К та  $1,5\text{--}120$  К. Виявлено особливості, що свідчать про наявність при  $T_N = 100,5$  К антиферромагнітного упорядкування. При деякій температурі  $T_1 < T_N$  відбувається різке підвищення опору. Нижче цієї температури в слабкому магнітному полі ( $H < 50$  Е) спостережено негативний магніторезистивний ефект. Показано, що низькотемпературні аномалії при  $T < 25$  К зумовлені переходом сполуки в надпровідний стан, що підтверджується наявністю ефекту Мейсснера, левітації, зниженням омичних втрат, а також впливом постійного магнітного поля та струму на опір сполуки. Висловлено припущення, що при  $T < T_N$  існує фазовий магнітоструктурний перехід, наслідком якого є підкреслені особливості фізичних властивостей  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ .

PACS: 74.70.Nk, 74.25.Nf, 75.40.Cx

### Введение

В работах [1–3] описаны кристаллическая структура и магнитные свойства (восприимчивость и намагниченность) тройных соединений типа  $\text{RM}_4\text{Al}_8$  (R — редкоземельные металлы La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, а также элементы Y и Th; M — V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu). Особенностью магнитной структуры соединений типа  $\text{RFe}_4\text{Al}_8$  является то, что она состоит из трех магнитных подрешеток: подрешетки R и двух подрешеток M. Поэтому, согласно [3], такие материалы можно разделить на две группы — соединения, в которых только атомы

группы железа имеют магнитный момент (R — La, Ce, Lu, Th и Y), и те, в которых магнитный момент имеют как атомы M, так и R.

Материалы первой группы претерпевают антиферромагнитное упорядочение при температуре Нееля  $T_N$ , характерной для каждого из них. В некоторых соединениях (R — La, Th) при  $T < T_N$  обнаружена зависимость намагниченности от сильного магнитного поля  $H$ , а на примере  $\text{YFe}_4\text{Al}_8$  показано [2], что магнитное поле в десятки килоэрсед при низких температурах может разрушать антиферромагнитную структуру.

Анализ результатов работ [1–3] свидетельствует о том, что для исследованных материалов

$\text{RFe}_4\text{Al}_8$  характерна сложная магнитная система, малоизученная до настоящего времени. Об этом свидетельствует хотя бы то, что, по имеющимся в литературе данным, температуры фазовых превращений существенно различаются. Поэтому при дальнейших исследованиях соединений целесообразно привлекать как традиционные методы измерения магнитных свойств, так и использовать данные о других характеристиках, например тепловых и электрических [4].

Было показано, что сопоставление результатов измерений теплоемкости и низкочастотного импеданса некоторых сложных соединений дало возможность обнаружить и объяснить природу аномалий этих свойств [5].

Тем не менее в известной нам литературе отсутствуют сведения об электрических и тепловых свойствах тройных соединений типа  $\text{RM}_4\text{Al}_8$ .

В настоящей работе экспериментально исследованы температурные зависимости низкочастотного импеданса соединения  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  в слабых магнитных полях и теплоемкости  $C_p(T)$ .

### Образцы и методика измерений

Образцы  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  синтезировались методом индукционной плавки в холодном тигле в атмосфере аргона. Кристаллическая структура определялась на полученных маленьких кристаллах с помощью четырехкружного дифрактометра и не отличалась от известной [1].

Поверхностное сопротивление  $R_s$  в радиочастотном диапазоне измерялось резонаторным методом. Поскольку при постоянном токе понятие поверхностного сопротивления теряет смысл, а на низких частотах его измерение затруднительно, в низко- и радиочастотном диапазонах также проводились измерения полного сопротивления  $Z$  (модуля импеданса) четырехконтактным методом. Исследовались образцы длиной до 6 мм с площадью поперечного сечения 1–10 мм<sup>2</sup>, полученные из одного монокристалла.

На рис. 1,а изображено устройство, позволяющее проводить измерения полного и поверхностного сопротивления в широком температурном интервале как в слабом постоянном магнитном поле, так и без него.

Исследуемый образец 1 закреплен на подложке 2 и вместе с датчиком температуры 3 расположен в полости катушки индуктивности 4 измерительного колебательного контура. Катушка 4 размещена в медном экране 5, на поверхности которого находится соленоид 6. Относительно оси соленоида катушка индуктивности с образцом ориентируется произвольно. Образец 1 соединен

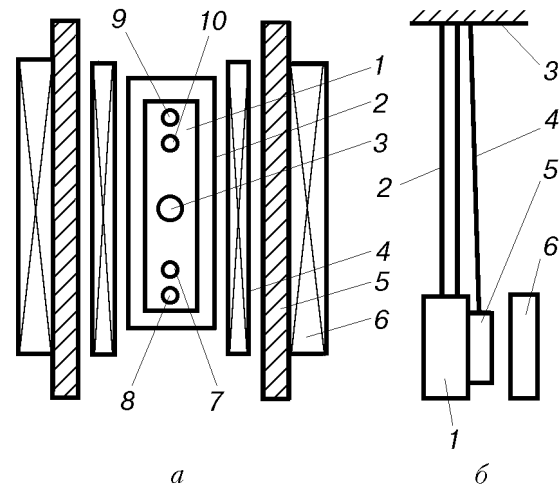


Рис. 1. Устройство для определения полного и поверхностного сопротивления: 1 — исследуемый образец; 2 — подложка; 3 — датчик температуры; 4 — катушка колебательного контура; 5 — экран; 6 — соленоид; 8, 9 — токовые контакты; 7, 10 — потенциальные контакты (а). Устройство для обнаружения левитации образца: 1 — постоянный магнит; 2 — штوك; 3 — платформа; 4 — нить; 5 — исследуемый образец; 6 — катушка колебательного контура (б).

с внешними цепями токовыми 8, 9 и потенциальными 7, 10 прижимными контактами из бериллиевой бронзы. Показанное на рис. 1,а устройство расположено в системе, которая позволяет варьировать температуру образца в интервале 4,5–300 К с помощью паров хладагента [6] с погрешностью  $\pm 0,25$  К в диапазоне 30–300 К и  $\pm 0,1$  К при  $T < 30$  К. Полное сопротивление  $Z$  образца определялось как отношение амплитуд напряжения на образце и протекающего по нему тока.

При измерении  $R_s$  резонаторным методом омические потери определяли с учетом поверхностного сопротивления эталонного образца [7]. Для этого непосредственно по измеряемому образцу изготавливалась форма и заполнялась расплавленным металлом с известным поверхностным сопротивлением  $R_{se}$  (индием). В свою очередь,  $R_{se}$  контролировалось другим эталонным материалом с поверхностным сопротивлением  $R_{sd}$  (отожженными при оптимальной температуре медью или алюминием).

В случае исследования слабой зависимости сопротивления (измерение  $Z$  или  $R_s$  в пределах погрешности эксперимента) от таких физических величин, как температура  $T$ , частота  $f$ , ток  $I$  или постоянное магнитное поле  $H$ , проводили многократные измерения одной и той же величины, затем результаты усредняли.

При изучении влияния транспортного тока на  $R_s$  материала ток пропускали через контакты 9 и 8 (рис. 1,а) и определяли добротность контура.

Как будет показано ниже, результаты некоторых измерений позволяют предположить, что в соединении при  $T < 25$  К в незначительном количестве обнаружена сверхпроводящая фаза. Для подтверждения этого была проверена способность образца  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  к левитации в постоянном магнитном поле с помощью показанного на рис. 1,б устройства.

Постоянный магнит 1 штоком 2 жестко прикреплен к платформе 3, к которой нитью 4 подвешен исследуемый образец 5 таким образом, чтобы он находился между магнитом 1 и катушкой колебательного контура 6. В качестве нити использовалось, как и в [9,10], шелковое волокно  $\varnothing 7$  мкм. Отличие приведенного на рис. 1,б устройства от описанных в [9,10] в том, что при левитации образец не закручивает нить, а отклоняет ее, приближаясь к катушке 6. По изменению (снижению) добротности колебательного контура при левитации образца судили о ее наличии.

Температурную зависимость теплоемкости в интервале температур 1,5–120 К исследовали методом абсолютной калориметрии. Погрешность эксперимента не превышала 0,5%. При измерении теплоемкости использовали поликристаллические образцы массой 2,5 г.

### Экспериментальные результаты

#### Теплоемкость соединения $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$

Температурная зависимость теплоемкости  $C_p$  в диапазоне температур 1,5–120 К представлена на рис. 2,а. На рис. 2,б и 3,а изображены фрагменты рис. 2,а в увеличенном масштабе.

По рисункам видно, что на регулярной температурной зависимости  $C_p(T)$  существуют по крайней мере четыре интервала температур с аномалиями теплоемкости.

Первая аномалия наблюдается в виде «выбросов» значительной амплитуды при температурах 99–102 К. Максимум  $C_p \approx 194,5$  Дж/моль·К соответствует температуре  $T_N = 100,5$  К (рис. 2,а, 3,а). Именно при этой температуре, согласно [3], по магнитным измерениям был определен антиферромагнитный переход.

Вторая группа аномалий  $C_p$  также представляет собой серию «выбросов» значений теплоемкости по сравнению с регулярной зависимостью  $C_p(T)$  при температурах 75–90 К (рис. 2,а, 3,а).

Третья серия аномалий  $C_p$  имеется при температурах 50–65 К, однако их амплитуда существ-

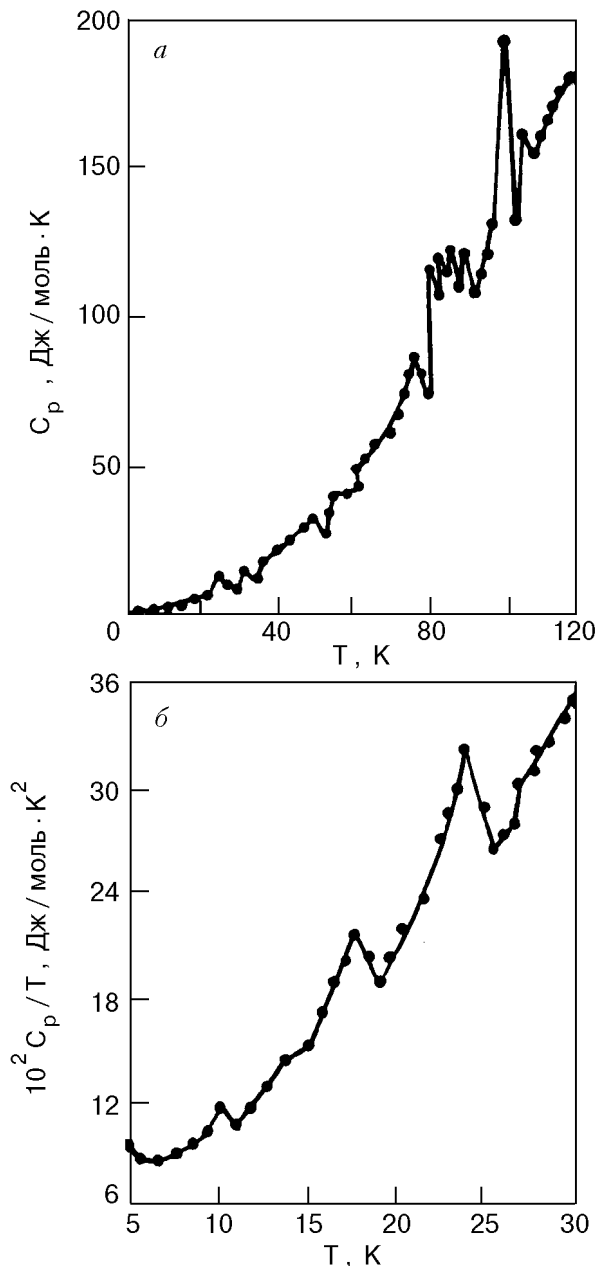


Рис. 2. Температурные зависимости теплоемкости  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  (а). Область аномалий теплоемкости на кривой температурной зависимости  $C_p/T$  (б).

венно меньше, чем в первой и второй группах (рис. 2,а).

Четвертая группа особенностей  $C_p$  ниже 30 К (рис. 2,б) состоит из нескольких  $\lambda$ -подобных «выбросов». Максимальное значение  $C_p = 1,9$  Дж/моль·К проявляется при  $T = 24$  К. При более низких температурах аномалии теплоемкости не так ярко выражены (рис. 2,б), но их величина существенно превышает погрешность измерения.

Температурные и частотные зависимости сопротивления

Полное  $Z$  и поверхностное  $R_s$  сопротивления  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  измерялись в частотном диапазоне  $0-10^7$  Гц при  $4,5-300$  К.

На рис. 4,а показаны температурные зависимости приведенного к  $T = 300$  К полного со-

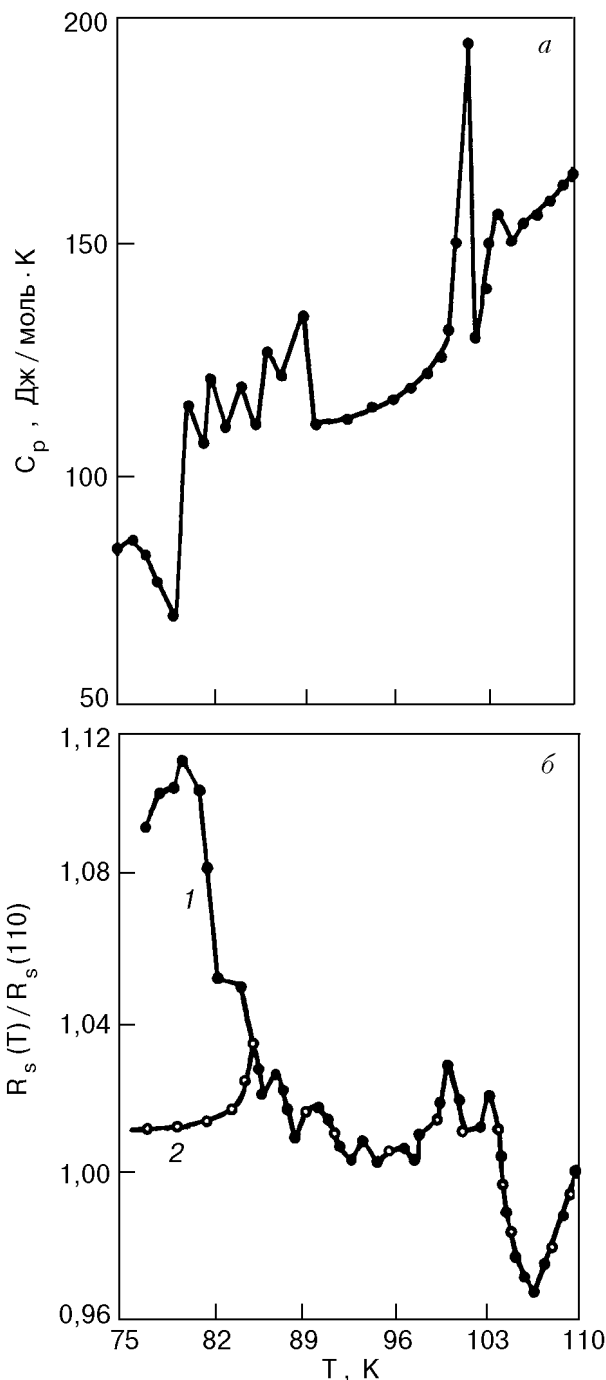


Рис. 3. Зависимости  $C_p(T)$  в температурном диапазоне  $75-110$  К (а) и  $R_s(T)/R_s(110)$ , полученная при одновременном измерении для всех изучаемых образцов исследуемого соединения в том же температурном диапазоне на частоте  $2 \cdot 10^6$  Гц без магнитного поля (1, ●) и в магнитном поле  $50$  Э (2, ○) (б).

противления образца  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  для частот  $f$ , Гц:  $0$  (1);  $8 \cdot 10^5$  (2);  $4 \cdot 10^6$  (3);  $10^7$  (4). Как видно, начиная от комнатной температуры и до  $100$  К образцы сохраняют практически линейную зависимость  $Z(T)$  или  $\rho(T)$ . Измеренное удельное сопротивление образцов на постоянном токе  $\rho(300) = 5 \cdot 10^{-5}$  Ом·м :  $\partial\rho/\partial T = 7,5 \cdot 10^{-8}$  Ом·м·К $^{-1}$ ;  $(\partial\rho/\partial T)/\rho(300) = 1,5 \cdot 10^{-3}$  К $^{-1}$  (рис. 4,а, кривая 1).

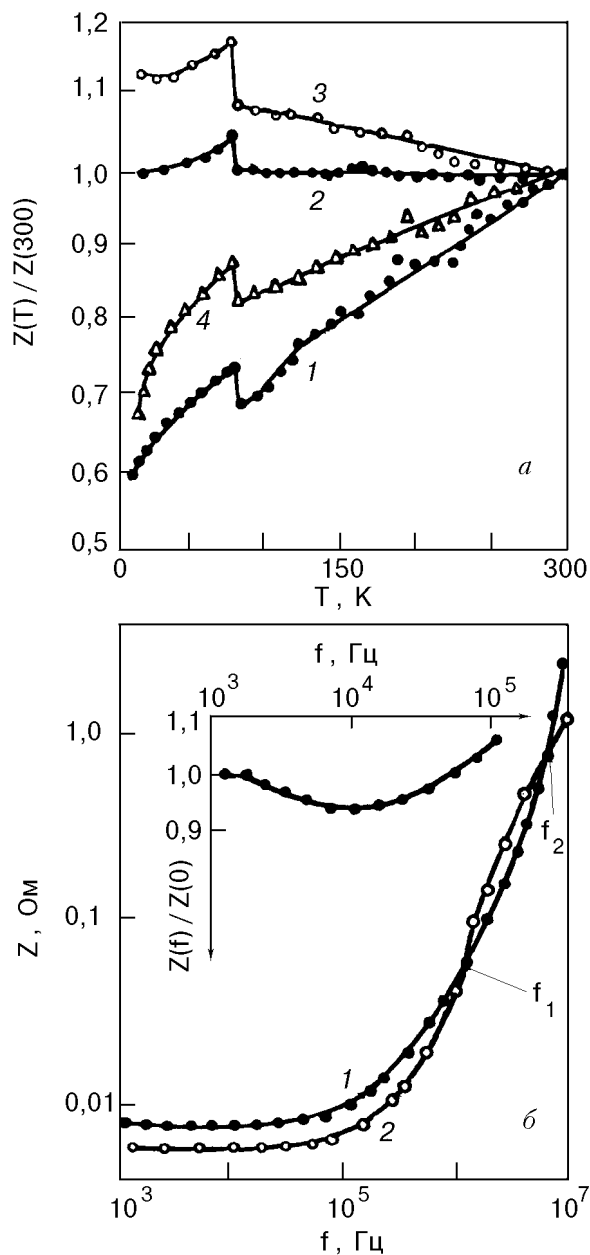


Рис. 4. Температурные зависимости приведенного к  $T = 300$  К полного сопротивления  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  для частот  $f$ , Гц:  $0$  (1);  $8 \cdot 10^5$  (2);  $4 \cdot 10^6$  (3);  $10^7$  (4) (а). Частотные зависимости полного сопротивления  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  для температур  $T = 300$  К (1) и  $95$  (2). Вставка — частотная зависимость аномального снижения сопротивления образца (б).

На рис. 4,б приведена зависимость  $Z(f)$  для температур 300 и 95 К (соответственно кривые 1 и 2). Для образца с поперечным сечением  $3 \times 3$  мм полное сопротивление  $Z$  при  $0 \leq f \leq 10^5$  Гц практически не зависит от частоты, а выше  $10^5$  Гц увеличивается по степенному закону  $Z \sim f^n$ . При  $T = 300$  К показатель степени  $n = 1,5$ , а с понижением температуры возрастает, достигая в некоторых образцах значения 2. Поэтому  $\partial Z/\partial T$  имеет сложную частотную зависимость. При повышении частоты  $\partial Z/\partial T$  снижается, при некоторых частотах  $f_1$  и  $f_2$  становится равным нулю, а в диапазоне  $f_1-f_2$  — отрицательным (рис. 4,а). Серия кривых  $Z(T)$  на рис. 4,а построена именно для характерных для данного образца частот:  $f = 0$  (1);  $f = f_1$  (2);  $f_1 < f < f_2$  (3);  $f > f_2$  (4).

Отметим некоторые типичные особенности  $Z$  в рассматриваемом температурном диапазоне.

1. В исследуемом соединении в окрестности  $T_N$  имеется аномалия  $R_s$ , которая проявляется в виде двугорбого увеличения омических потерь, коррелирующих по температуре с подобными же

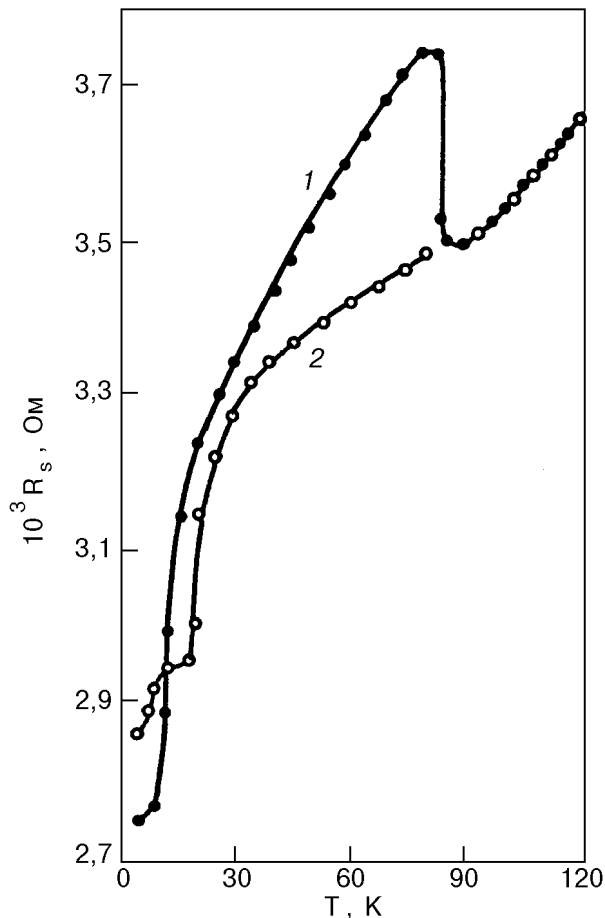


Рис. 5. Температурная зависимость поверхностного сопротивления  $R_s$  образцов  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  на частоте  $10^7$  Гц без постоянно магнитного поля (1) и в магнитном поле 50 Э (2).

аномалиями теплоемкости (рис. 3,а и б, кривая 1). (На рис. 3,б представлены результаты одновременного измерения  $R_s$  всех изучаемых образцов на частоте  $2 \cdot 10^6$  Гц без магнитного поля (1) и в магнитном поле 50 Э (2).) На этой частоте, согласно рис. 4,б,  $\partial \rho/\partial T$  имеет отрицательное значение.

2. Для каждого из образцов существует характерная температура  $T_1 < T_N$ , при которой происходит скачкообразное увеличение сопротивления с шириной скачка 2–3 К;  $T_1$  коррелирует с температурой, при которой проявляются аномалии теплоемкости (рис. 3,а) в интервале 75–90 К.

На рис. 4,а показано такое скачкообразное увеличение  $Z$ , а на рис. 5 —  $R_s$  для одного и того же образца с  $T_1 = 85$  К.

3. Знак производной  $\partial Z/\partial T$  изменяется не во всех образцах, несмотря на то что они были получены из одного монокристаллического поликристалла  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ .

4. В некотором частотном диапазоне, предшествующем частотам, где появляется зависимость полного сопротивления от частоты, сопротивление  $Z$  незначительно снижается (рис. 4,б, вставка). Это явление наблюдается не только в большинстве исследуемых образцов  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ , но и в других материалах [11].

5. В температурных интервалах 250–270 К и 160–210 К проявляются аномалии полного сопротивления, которые выглядят как отклонения их значений обоих знаков относительно регулярной (линейной) температурной зависимости  $Z(T)$  (рис. 4,а).

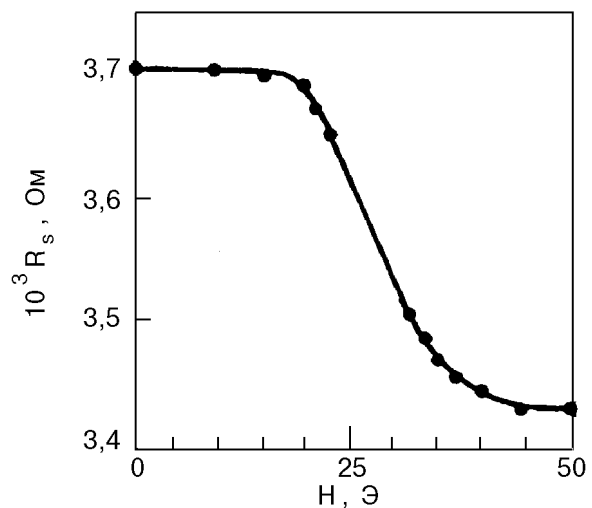


Рис. 6. Зависимость поверхностного сопротивления  $R_s$  образцов  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  от магнитного поля при  $T = 70$  К ( $f = 10^7$  Гц).

Одна из характерных особенностей электрических свойств  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  заключается в том, что при  $T < T_1$  в слабом постоянном магнитном поле его магнитосопротивление отрицательно. На рис. 5 изображены температурные зависимости  $R_s$  при отсутствии магнитного поля (кривая 1) и в магнитном поле 50 Э (кривая 2). Видно, что при  $T > T_1$  в слабых магнитных полях магниторезистивный эффект отсутствует, а поле начинает оказывать влияние на  $Z$  или  $R_s$  только при  $T < T_1$ . Зависимость  $R_s$  от магнитного поля при  $T = 70$  К приведена на рис. 6. До  $H \sim 15$  Э сопротивление не зависит от поля, затем с увеличением поля снижается практически линейно. При  $H > 40$  Э кривая  $R_s(H)$  выходит на насыщение. Температурный или магнитный гистерезисы в пределах особенностей не наблюдаются.

Отметим, что при  $T < T_1$  постоянный электрический транспортный ток, создающий вокруг образца напряженность поля в единицы эрстед, также не влияет на  $R_s$ .

В интервале 40–65 К присутствует серия аномалий  $R_s$  и  $Z$ , коррелирующих по температуре с аномалиями теплоемкости (при 60, 50 и 40 К).

При некоторой температуре  $T_c$ , характерной для каждого исследуемого образца, при которой на температурной зависимости его теплоемкости обнаружена  $\lambda$ -подобная аномалия  $C_p(T)$ , производная  $|\partial R_s / \partial H|$  меняет знак. Для образца,  $R_s(T)$  которого представлена на рис. 5,  $T_c = 12$  К.

Для этого же образца на рис. 7 приведены температурные зависимости сопротивления в окрестности  $T_c$ , измеренные без магнитного поля (кривая 1, ●), в постоянном магнитном поле 50 Э (кривая 2, ▲), при пропускании через образец транспортного тока (кривая 3, ○), в отсутствие магнитного поля, а также при пропускании через образец транспортного тока в постоянном магнитном поле 50 Э (кривая 3, Δ). Кривые на рис. 7,а,в получены при первом цикле его «захолаживания», а на рис. 7,б — при шестом цикле. Определена также температурная зависимость  $\Delta f = f_p(H = 0) - f_p(H = 50 \text{ Э})$ , где  $f_p(H = 0)$  и  $f_p(H = 50 \text{ Э})$  — резонансные частоты измерительного колебательного контура с образцом, измеренные соответственно без магнитного поля и в магнитном поле 50 Э (рис. 7,в). Подобная же связь  $\Delta f$  и  $T$  была установлена в случае, когда  $\Delta f$  — та же разность частот контура с образцом, измеренных в отсутствие магнитного поля и постоянного тока и при протекании транспортного тока через образец.

Отметим, что  $\Delta f$  пропорциональна изменению реактивной части поверхностного сопротивления

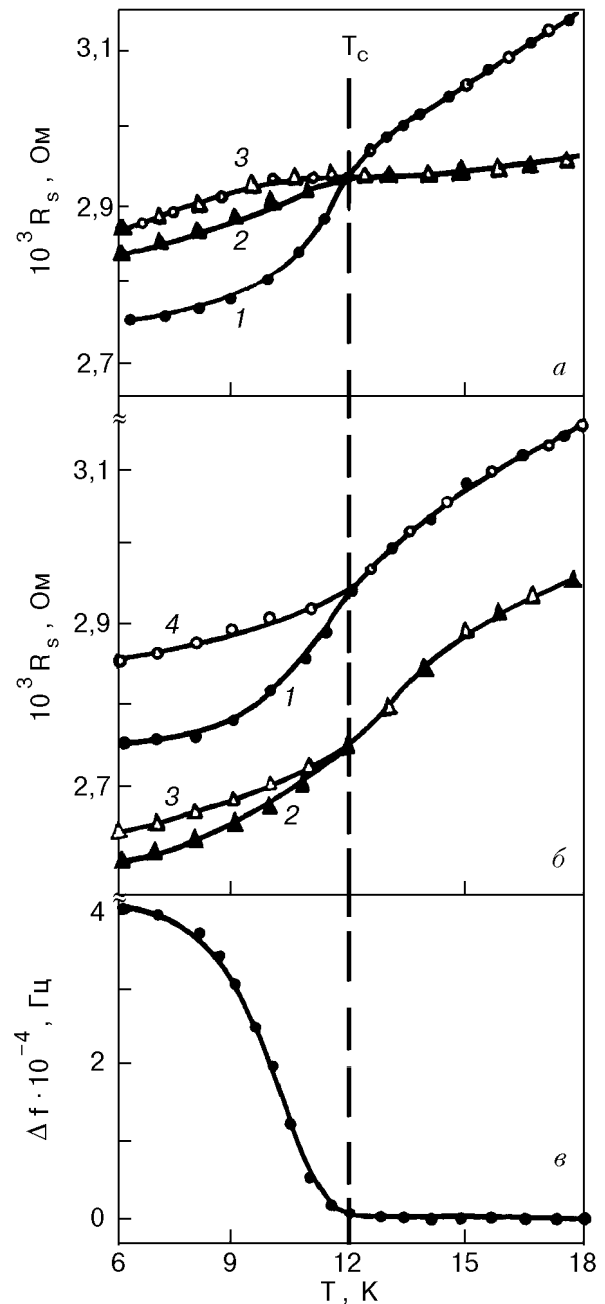


Рис. 7. Температурные зависимости поверхностного сопротивления на частоте  $10^7$  Гц без магнитного поля (●); при  $H = 50$  Э (▲); при  $I = 1$  А (○); при  $H = 50$  Э и  $I = 1$  А (Δ) (а); то же после термоциклирования образца (б). Температурная зависимость разности резонансных частот измерительного колебательного контура с образцом  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  при  $H = 0$  и 50 Э (в).

соединения, а ее положительное значение свидетельствует об усилении диамагнетизма образца при  $T < T_c$  при отсутствии магнитного поля. Взаимное направление магнитного поля и транспортного тока не сказывается на результатах измерений.

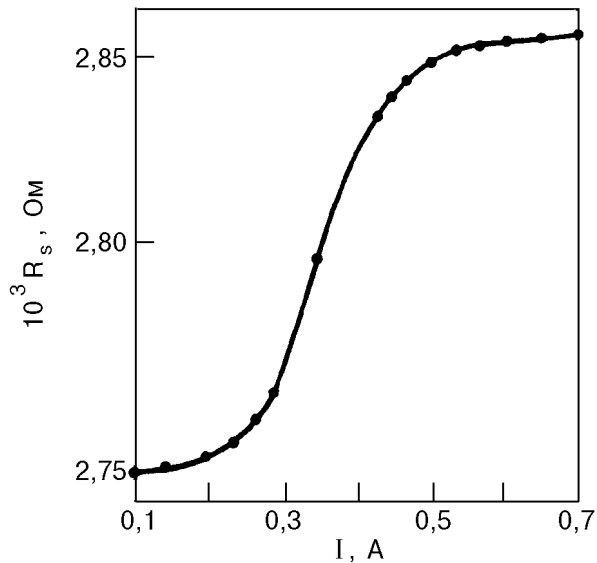


Рис. 8. Зависимость поверхностного сопротивления  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  на частоте  $10^7$  Гц при  $T = 5$  К от величины постоянного тока.

Как видно на рис. 7,а,б, особенности сопротивления при  $T < T_c$  состоят в следующем:

при  $T < T_c$  сопротивление  $R_s$  без магнитного поля аномально снижается (рис. 7,а, кривая 1);

при  $T = T_c$  производная  $\partial R_s / \partial T$  меняет знак и становится положительной при  $T < T_c$ ;

при температурах ниже  $T_c$  производная  $\partial R_s / \partial I > 0$  (кривая 3), а при  $T > T_c$  она равна нулю. На рис. 8 представлено  $R_s$  на частоте  $10^7$  Гц как функция величины транспортного тока, пропускаемого через образец при температуре 5 К ( $T_c = 12$  К);

при  $T < T_c$  реактивная компонента поверхностного импеданса  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  аномально изменяется (рис. 7,б).

#### Левитация образца $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ в магнитном поле

Исследования левитации проводились по изменению добротности измерительного колебательного контура. На рис. 9 представлены температурные зависимости добротности одного и того же образца, приведенной к добротности колебательного контура при 7 К, с зафиксированным на магните образцом (●) и с незафиксированным (○). Из рисунка следует, что до температуры  $T_c$  (в измеряемом образце  $T_c = 4,8$  К) температурные изменения добротности в обоих случаях совпадают, а при  $T < 4,8$  К в случае свободно подвешенного образца добротность снижается, что и подтверждает существование левитации.

Аналогичные результаты получены при изменении резонансной частоты колебательного кон-

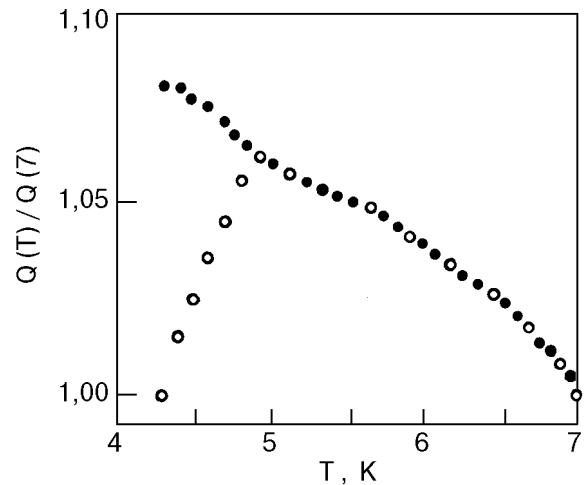


Рис. 9. Зависимость приведенной к  $T = 7$  К добротности измерительного колебательного контура при фиксированном (●) и незакрепленном (○) образце.

тура. При  $T < T_c$  увеличивается его резонансная частота, что свидетельствует о приближении образца к катушке индуктивности.

#### Изменение электрических характеристик $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ при термоциклировании

Одной из особенностей исследуемых образцов является изменение их электрических параметров при термоциклировании от комнатных до гелиевых температур. В этом случае на температурной зависимости сопротивления появляются новые аномалии  $R_s$  или  $Z$ , а с увеличением количества термоциклов изменяется их форма или сдвигается температура, при которой они наблюдаются.

Изменяются также магнитные свойства соединения. В качестве примера на рис. 7,б представлены электромагнитные характеристики образца после термоциклирования,  $R_s$  которого при первом термоцикле показаны на рис. 7,а.

После пяти термоциклов 4,5–300 К изменения знака производной  $\partial R_s / \partial H$  не произошло (рис. 7,б), а  $T_c$  фактически стала температурой начала влияния постоянного электрического тока на  $R_s$  (рис. 7,б, кривые 3 и 4). После 10–12 термоциклов  $\partial R_s / \partial H$  всех образцов уменьшается и со временем становится равной нулю как в температурном интервале  $T_1 - T_c$ , так и ниже  $T_c$ . Не наблюдается также изменения величины  $\partial R_s / \partial I$  и не проявляется левитация.

#### Обсуждение результатов

Линейная температурная зависимость удельного сопротивления в парамагнитной области харак-

терна не только для соединения  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  или чистого монокристаллического лютетия [13], но и для других материалов, например сложных металлооксидов, где она объясняется с помощью двухзонной модели проводников [14]. Электрические свойства редкоземельных металлов и их сплавов также во многих случаях обсуждаются на основе зонной модели, в которой предполагается наличие двух зон — широкой и узкой, при взаимодействии между которыми возникает гибридизация [4]. При этом отметим, что и в  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ , и в металлооксидах зависимость  $R(T)$  линейна в области температур, где существует парамагнетизм и где омические потери обусловлены как электрон-фононным взаимодействием, так и рассеянием на локализованных магнитных моментах (см., например, [12] и ссылки в ней). Возможно, поэтому линейный участок зависимости  $R(T)$  всех этих соединений может быть объяснен с помощью одной модели.

Смена знака  $\partial Z/\partial T$  происходит только на частотах начала зависимости  $Z(f)$ . Поэтому в отличие от металлооксидов [14,15], где изменение знака объясняется в рамках двухзонной модели, в  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  аномалия  $\partial Z/\partial T$ , по-видимому, обусловлена слоистостью материала. Образец следует рассматривать как отрезок слоистой линии [16] с продольным [17] и поперечным [18] переходным сопротивлением между слоями. Сложное взаимодействие этих сопротивлений, возможно, является причиной снижения сопротивления  $Z$  в частотном интервале, предшествующем появлению зависимости  $Z(f)$  (рис. 4,б, вставка).

Аномалии теплоемкости и сопротивления при фазовых переходах представляются вполне естественными. Такие особенности соответствуют антиферромагнитному упорядочению при  $T_N = 100,5$  К и совпадают по температуре с данными магнитных измерений [3] (рис. 3). Удивительными являются аномалии в области температур 75–90 К (рис. 3 и четко выраженные для одного из образцов на рис. 4,а и 5). Ниже  $T_N$  на 10–20 К сопротивление скачком возрастает на 10–20%, а слабое, по крайней мере вблизи  $T_N$ , магнитное поле снижает его. При этом поле насыщения всего 40 Э. Зависимость на рис. 6 очень похожа на аналогичные зависимости в [20] для искусственных магнитных сверхрешеток  $\text{FeCr}$ . Интересно, что в таких искусственных слоистых структурах эффект отрицательного магнитосопротивления и поле насыщения существенно зависят от расстояния между соседними магнитными слоями, магнитные моменты которых противоположны. Отметим, что величина скачка сопротивления

$\Delta Z/Z$  при  $T = T_1$  практически не зависит от частоты. В некоторых образцах наблюдалось двукратное увеличение сопротивления при  $T = T_1$ .

Наличие в нашем случае зависимости  $R_s(H)$  в малых полях может свидетельствовать о существовании слабого магнитного взаимодействия в магнитной подсистеме и о значительном взаимодействии электронов проводимости с магнитными моментами, как это происходит в слоистых магнитных структурах и в тяжелофермионных системах.

Отметим, что зависимость  $C_p(T)$  ниже 30 К может быть описана выражением  $C_p = \gamma T + \beta T^2$ , где  $\gamma = 0,07$  Дж/моль·К<sup>2</sup>. Такое значение  $\gamma$  также может свидетельствовать о наличии в системе тяжелых фермионов. Для выяснения природы низкополевого магниторезистивного эффекта с отрицательным магнитосопротивлением в температурном интервале от  $T_1$  до  $T_c$  необходимо проведение дополнительных исследований.

Полученные результаты комплексного изучения теплоемкости, электрических и магнитных характеристик  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  при  $T < 25$  К позволяют сделать вывод о том, что в  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  в незначительном количестве присутствует сверхпроводящая (СП) фаза с критической температурой  $T_c \leq 24$  К.

Во-первых, увеличение реактивной компоненты импеданса (рис. 7,в) и наличие левитации образца при  $T < T_c$  свидетельствуют об усилении выталкивания магнитного потока из соединения, т.е. о наличии эффекта Мейсснера.

Во-вторых, при  $T < T_c$  обнаружено снижение омических потерь на зависимости  $R_s(T)$ .

В-третьих, как было показано выше, при  $T < T_c$  наблюдается влияние постоянного транспортного тока, а также постоянного магнитного поля на омические потери соединения, при этом  $\partial R_s/\partial H > 0$  и  $\partial R_s/\partial I > 0$  (рис. 7,а, и 8). Такое поведение характерно для сверхпроводящей фазы при температуре ниже критической  $T_c$ , а форма токовой зависимости  $R_s(I)$  (рис. 8) свидетельствует о наличии критического тока в образце. Тогда слабые аномалии  $C_p$   $\lambda$ -типа, наблюдаемые при температурах 5, 10, 15, 19 и 24 К, возможно, являются отражением переходов в сверхпроводящее состояние неоднородных участков образцов. Отсутствие гистерезиса в этом интервале температур позволяет отнести наблюдаемые особенности к фазовым переходам II рода.

Модель, которая качественно способна объяснить наблюдаемые особенности, может состоять в следующем. При понижении температуры ниже температуры антиферромагнитного упорядочения



$T_1$  происходит фазовый магнитоструктурный переход, в результате которого формируются антиферромагнитным образом взаимосвязанные слои железа, разделенные слоями немагнитного лютеция. В этой ситуации существенным становится спинзависимое рассеяние носителей заряда, отвечающее за отрицательное магнитосопротивление [21,22], и возникает скачок сопротивления. Образуется своеобразная сверхрешетка магнетик — немагнетик — магнетик. При понижении температуры ниже  $T_c$  возникает сверхпроводящее состояние, маловероятное в областях с явно выраженными магнитными моментами. Предполагая антиферромагнитную связь между двумя соседними слоями, можно думать, что малая граничная область между ними немагнитна и именно здесь реализуется сверхпроводимость. При этом становится объяснимой малая концентрация сверхпроводящей фазы. Магнитоструктурный фазовый переход и, как результат, неоднородное состояние образца объясняют также особенности термодинамики и разброс температур фазовых переходов. Поскольку образцы были поликристаллическими, ориентационные зависимости не наблюдались.

### Заключение

Отметим наиболее важные свойства  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ , обнаруженные в настоящей работе:

особенность на зависимости теплоемкости от температуры, дающая основание говорить о наличии при  $T_N = 100,5$  К антиферромагнитного фазового упорядочения;

резкое возрастание при  $T_1 < T_N$  сопротивления образцов. Начиная с этой температуры и ниже в слабом ( $H < 50$  Э) постоянном магнитном поле наблюдается отрицательное магнитосопротивление;

небольшое количество сверхпроводящей фазы при температурах ниже  $T_c = 24$  К;

исследования теплоемкости указывают на возможность существования в  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  тяжелых фермионов.

Совокупность экспериментальных данных дает основание предположить, что ниже температуры  $T_1 < T_N$  возникает слоистая сверхрешетка магнетик — немагнетик — магнетик. Ниже  $T_c < T_1$  она преобразуется в сверхрешетку магнетик — сверхпроводник — магнетик.

Таким образом, соединение  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  обладает интересными физическими свойствами и является перспективным объектом для дальнейших исследований.

Авторы выражают благодарность М. L. Almeida и A. Gonsalves за предоставление образцов, А. Г. Андерсу и Н. И. Глуцку за полезные дискуссии.

1. K. H. J. Buschow, J. H. N. van Vucht, and W. W. van den Hoogenhof, *J. Less-Common. Met.* **50**, 145 (1976).
2. A. M. van der Kraan, and K. H. J. Buschow, *Physica* **86**, 93 (1977).
3. K. H. J. Buschow and A. M. van der Kraan, *J. Phys. F: Metal Phys.* **8**, 921 (1978).
4. С. А. Никитин, *Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов*, Изд-во МГУ, Москва (1989).
5. В. М. Дмитриев, В. Н. Еропкин, А. М. Гуревич, А. П. Исакина, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, А. И. Прохвятилов, *ФНТ* **17**, 53 (1991).
6. М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, Н. А. Кучерявенко, А. П. Бескорсый, Н. М. Левченко, *Препринт ФТИИТ АН УССР N47-88*, Харьков (1988).
7. В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, *Радиотехника*, вып. 97, 91 (1993).
8. Н. Н. Пренцлау, А. П. Бескорсый, И. Ф. Харченко, М. Н. Офицеров, И. Е. Орлов, *Межвед. н.-т. сб. Радиотехника*, вып. 87, 120 (1988).
9. В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, К. Рогачки, *ФНТ* **19**, 268 (1993).
10. V. M. Dmitriev, M. N. Ofitserov, and N. N. Prentslau, *Proc. Contrib. Papers Low Temp. Phys., Phys. in Ukraine, Int. Conf., Kiev* (1993), p. 94.
11. В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, К. Рогачки, В. Садовски, *ФНТ* **24**, 397 (1995).
12. Л. С. Мазов, *ФНТ* **17**, 1372 (1991).
13. D. Boys and S. Legvold. *Phys. Rev.* **174**, 377 (1968).
14. В. П. Галайко, *ФНТ* **19**, 123 (1993).
15. В. П. Галайко, В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, *ФНТ* **19**, 135 (1993).
16. A. M. Clogston, *Proc. IRE* **39**, 767 (1951).
17. R. A. King, *B.S.T.J.* vol. XXXVIII, No 2, March, 5176 (1959).
18. H. Ataka, *Proc. IRE* **42**, 1527 (1954).
19. Н. В. Волкенштейн, В. А. Новоселов, В. Е. Старцев, *ЖЭТФ* **60**, 1078 (1971).
20. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguen Van Dau, and F. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
21. R. E. Camley and R. L. Stamps, *J. Phys.: Condens. Matter.* **5**, 3727 (1993).
22. P. Zahn, J. Binder, I. Merting, R. Zeller, and P. H. Dederichs, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4309 (1998).

### Low frequency impedance and heat capacity of $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ compound

A. M. Gurevich, V. M. Dmitriev, V. N. Eropkin, L. A. Ishchenko, N. N. Prentslau, and L. V. Shlyk

The temperature dependences of the low frequency ( $0-10^7$  Hz) impedance at 4.5–300 K and the heat capacity at 1.5–120 K are studied in the  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$  compound. Features are found, which evidence in favor of the antiferromagnetic phase ordering at  $T_N = 100.5$  K. At a certain temperature  $T_1 < T_N$  the resistance is observed to increase

---

sharply. A negative magnetoresistive effect is detected below this temperature in a weak magnetic field ( $H < 50$  Oe). It is shown that the low temperature anomalies at  $T < 25$  K are due to the superconducting transition, which is supported by the presence of the Meissner effect, levitation, lower

Ohmic losses, and by the influence of the static magnetic field and dc current upon the resistance of the compound. A phase magnetostructural transition is assumed to occur at  $T_1 < T_N$ , which may be responsible for the features observed in the physical properties of  $\text{LuFe}_4\text{Al}_8$ .