

Импеданс и теплоемкость RM_4Al_8 и RAg_6In_6 соединений

А. М. Гуревич¹, В. М. Дмитриев^{1,2}, В. Н. Еропкин¹, Б. Ю. Котур⁴,
Н. Н. Пренцлау¹, В. Суски^{2,3}, А. В. Терехов¹, Л. В. Шлык¹

¹ Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: dmitriev@ilt.kharkov.ua

² International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures
95 Gajowicka Str., 53-421, Wrocław, Poland

³ W. Trzebiatowski Institute of Low Temperatures and Structure Research Polish Academy of Sciences
P. O. 1410, 50-950, Wrocław, Poland

⁴ Львовский государственный университет им. И. Франко, ул. Кирилла и Мефодия, 6, г. Львов, 79005, Украина

Статья поступила в редакцию 6 июня 2001 г.

Приведены результаты экспериментальных исследований температурных зависимостей поверхностного сопротивления и теплоемкости тройных редкоземельных соединений: $LuFe_4Al_8$, $ScFe_4Al_8$, $CeFe_4Al_8$, $CeCr_4Al_8$, YFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 , YMn_4Al_8 , UCu_4Al_8 , $LaAg_6In_6$ и $PrAg_6In_6$, имеющих структуру типа $ThMn_{12}$. Показано, что при некоторой, характерной для каждого соединения с Fe, Cr и Mn, температуре ниже температуры Нееля наблюдается скачок полного импеданса и теплоемкости. При более низкой температуре в слабом магнитном поле в этих соединениях наблюдается отрицательное магнитосопротивление. Обнаружены сверхпроводящие фазы в соединениях $ScFe_4Al_8$ ($T_c = 6$ K) YCr_4Al_8 ($T_c = 4,5$ K), YFe_4Al_8 ($T_c = 6$ K) и $PrAg_6In_6$ ($T_c = 8,3$ K).

Приведено результати експериментальних досліджень температурних залежностей поверхневого опору та теплоємності трійних рідкісноземельних сполук: $LuFe_4Al_8$, $ScFe_4Al_8$, $CeFe_4Al_8$, $CeCr_4Al_8$, YFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 , YMn_4Al_8 , UCu_4Al_8 , $LaAg_6In_6$ та $PrAg_6In_6$, що мають структуру типу $ThMn_{12}$. Показано, що при деякій, характерній для кожної сполуки з Fe, Cr та Mn, температурі нижче температури Нееля спостерігається стрибок повного імпедансу та теплоємності. При більш низькій температурі в слабкому магнітному полі в цих сполуках спостерігається від'ємний магнітоопір. Виявлено надпровідні фази в сполуках $ScFe_4Al_8$ ($T_c = 6$ K), YCr_4Al_8 ($T_c = 4,5$ K), YFe_4Al_8 ($T_c = 6$ K) та $PrAg_6In_6$ ($T_c = 8,3$ K).

PACS: 74.80.Dm, 74.25.Nf, 75.40.Cx

Введение

В работах [1–5] описаны кристаллическая структура и магнитные свойства тройных соединений RM_4Al_8 ($R = La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Th$; $M = V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu$) в различных сочетаниях. Все они имеют структуру типа $ThMn_{12}$. Результаты экспериментальных исследований низкочастотного импеданса и теплоемкости поликристаллического соединения $LuFe_4Al_8$, у которого только атомы железа имеют магнитный момент, приведены в

работах [6–7]. При этом в [6] внимание обращалось на следующие особенности соединения.

В температурном интервале 98–108 K наблюдаются аномалии зависимостей теплоемкости $C(T)$ и омических потерь $R_s(T)$, обусловленные антиферромагнитным упорядочением, с максимумом при $T = 100,5$ K. Обнаружено, что в узком (~ 2 K) температурном интервале между T_0 (минимум R_s) и T_1 (максимум R_s) происходит еще один фазовый переход. Этот переход сопровождается аномальным увеличением теплоемкости в

окрестности T_1 , а также скачкообразным увеличением омических потерь между T_0 и T_1 (ширина скачка < 10 К). Увеличение сопротивления частично или полностью снимается слабым постоянным магнитным полем. При этом в интервале температур $T_2 < T < T_1$ наблюдается отрицательное магнитосопротивление. При $T_c \leq 24$ К в соединении обнаружена сверхпроводящая фаза (не более 5%). Это подтверждено наличием эффекта Мейсснера, особенностью в поведении теплоемкости, левитацией, а также резистивными и магнитными измерениями. Полученные результаты объясняются тем, что ниже T_1 магнитная структура представляет собой слоистую антиферромагнитную сверхрешетку «магнетик Fe — немагнетик Lu — магнетик Fe» [5]. В такой системе существенным является спинзависимое рассеяние носителей заряда, приводящее к отрицательному магнитосопротивлению. Сверхпроводящее состояние, вероятно, возникает только в слоях, в которых отсутствует магнитный момент, что и является причиной малого количества сверхпроводящей фазы.

Приведенные в настоящей работе результаты, по сути, являются продолжением экспериментальных исследований, представленных в [6–10]. Предполагалось получить ответы на следующие вопросы.

Фазовый переход в окрестности T_1 и образование сверхпроводящей фазы наблюдаются только в $LuFe_4Al_8$, или они происходят и в других соединениях этого семейства?

Если эти фазовые переходы существуют и в других соединениях, то как влияют на них магнитные свойства R- и M-элементов?

С этой целью были продолжены исследования магниторезистивных свойств $LuFe_4Al_8$ и проведены исследования температурных зависимостей теплоемкости и активной части импеданса поликристаллических образцов $ScFe_4Al_8$, $CeFe_4Al_8$, $CeCr_4Al_8$, YFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 , YMn_4Al_8 и UCu_4Al_8 , $LaAg_6In_6$, $PrAg_6In_6$, которые также имеют структуру типа $ThMn_{12}$ [9,10]. Данные соединения выбраны по следующим причинам.

Атомы Ce, Sc и Y существенно отличаются по своим магнитным характеристикам (так, например, магнитная восприимчивость Ce $\chi = 2,5 \cdot 10^{-3}$, в то время как для Sc $\chi = 1,8 \cdot 10^{-5}$). Это позволяет определить влияние магнитных свойств R-элементов на полный импеданс и теплоемкость исследуемых соединений.

В то же время замена сильного магнетика Fe на слабый антиферромагнетик Cr и слабый парамаг-

нетик Mn определяет влияние магнитных свойств M-элементов.

Соединения $CeFe_4Al_8$ и YMn_4Al_8 интересны еще и тем, что в первый входят два магнитных элемента Ce и Fe, а во второй — два практически немагнитных Y и Mn.

В составе соединений UCu_4Al_8 , $LaAg_6In_6$ и $PrAg_6In_6$ присутствуют благородный металл Ag и Cu, которая может обладать свойствами переходного металла.

Образцы и методика измерений

Все исследуемые образцы были получены в поликристаллическом виде методами дуговой и индукционной плавки.

Сложное сечение образцов не позволило вычислить их удельное электросопротивление. Поэтому бесконтактным резонаторным методом измерялось поверхностное сопротивление R_s . Установки и методика измерений описаны в работах [6,11]. Поверхностное сопротивление соединений с M = Fe, Cr и Mn измерялось на частоте 10 МГц, а с M = Cu и Ag — на частоте 5 МГц.

В качестве эталонного образца, как и в [6], использовался индий.

Методом абсолютной калориметрии была измерена теплоемкость образцов $CeCr_4Al_8$, YCr_4Al_8 и YMn_4Al_8 в интервале температур 1,5–20 К и UCu_4Al_8 — в температурном интервале 1,5–95 К. Наличие множества пиков, а также чрезвычайно широкий температурный интервал, в котором наблюдаются аномалии, можно объяснить неоднозначностью соединений, что заставило принять меры по гомогенизации образцов методом отжига. Измерение теплоемкости образцов YCr_4Al_8 , $CeFe_4Al_8$ и YMn_4Al_8 проводилось до и после их отжига в течение 7 суток при температуре 800°C.

Экспериментальные результаты

На рис. 1 представлены температурные зависимости R_s , приведенного к поверхностному сопротивлению при комнатной температуре $R_s(300)$, для соединений $LuFe_4Al_8$ (a), $ScFe_4Al_8$ (б), $CeFe_4Al_8$ (в), YCr_4Al_8 (z), $CeCr_4Al_8$ (d) и YMn_4Al_8 (e).

Экспериментально установлено (см. рис. 1), что во всех названных соединениях выше некоторой, характерной для каждого из них, температуры T^* наблюдается линейная зависимость приведенного поверхностного сопротивления от температуры.

(Значения T^* , T_0 , T_1 , T_2 , T_c , $R_{s0}/R_s(300)$ и $A/R_s(300)$, смысл которых обсуждается ниже, приведены в таблице.)

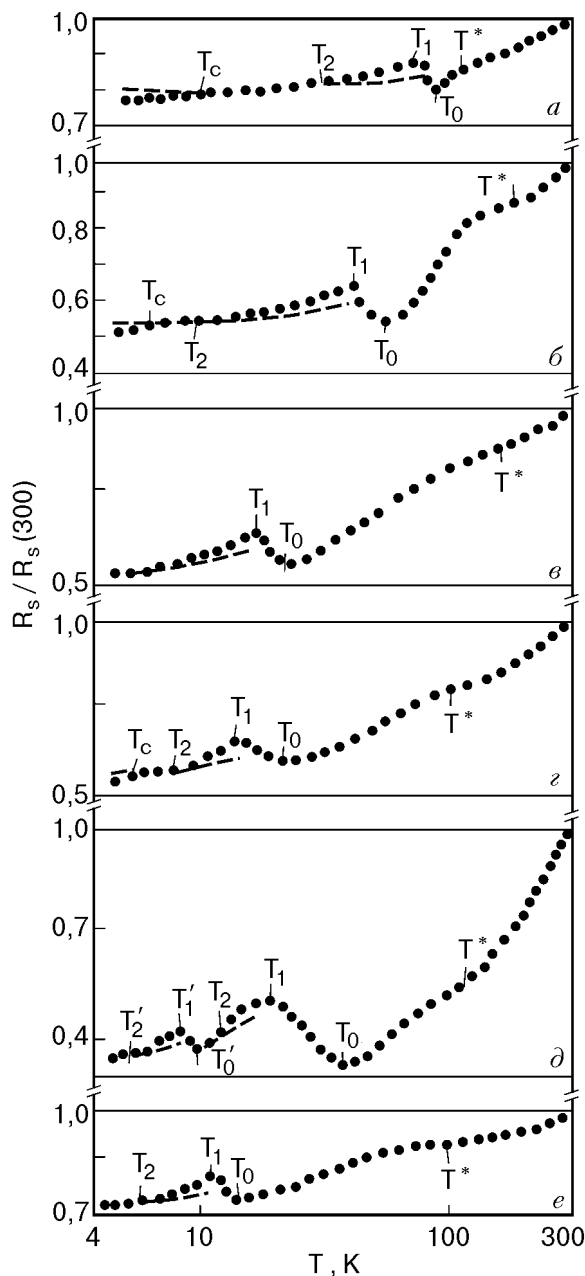


Рис. 1. Температурные зависимости поверхностного сопротивления R_s , приведенного к $R_s(300)$, соединений LuFe_4Al_8 (а), ScFe_4Al_8 (б), CeFe_4Al_8 (в), YCr_4Al_8 (г), CeCr_4Al_8 (д) и YMn_4Al_8 (е).

Во всех исследованных соединениях, так же как и в LuFe_4Al_8 (см. рис. 4,а и 5 из [6]), при некоторой температуре T_1 наблюдается переход, сопровождающийся скачкообразным увеличением R_s и отрицательным магнитосопротивлением, которое существует до некоторой температуры $T_2 < T_1$. На рис. 1 значения $R_s(T)/R_s(300)$ для всех соединений в магнитном поле $H = 50$ Э показаны пунктиром.

Таблица

Характерные температуры и резистивные параметры исследуемых соединений RM_4Al_8

Соединение	T^*	T_0	T_1	T_2	T_c	$\frac{R_{s0}}{R_s(300)}$	$\frac{A}{R_s(300)}$
						К	
LuFe_4Al_8	100	77-97	74-95	30	24	0,78	$1,52 \cdot 10^{-5}$
ScFe_4Al_8	180	50	42	10	6	0,518	$7,46 \cdot 10^{-5}$
CeFe_4Al_8	180	20	17	< 4,2	—	0,496	$2,56 \cdot 10^{-4}$
YCr_4Al_8	100	18	15	8	4,5-4,9	0,552	$3,0 \cdot 10^{-4}$
CeCr_4Al_8	160	25; 10	20; 8	10; 6	—	—	—
YMn_4Al_8	100	13,5	12	8	—	0,755	$3,35 \cdot 10^{-4}$
YFe_4Al_8	—	55	50	30	6	0,8	—
UCu_4Al_8	—	—	—	—	—	0,65	—
LaAg_6In_6	—	—	—	—	—	0,58	—
PrAg_6In_6	—	—	—	—	8,3	0,69	—

Температурная зависимость поверхностного сопротивления R_s соединений ScFe_4Al_8 , CeFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 и YMn_4Al_8 в интервале температур $T_1 - T_2$ может быть описана уравнением

$$R_s(T) = R_{s0} + AT^2. \quad (1)$$

На рис. 2 сплошными линиями показаны зависимости $R_s(T)/R_s(300)$ соединений YMn_4Al_8 (1) и CeFe_4Al_8 (2), рассчитанные по формуле (1) с учетом приведенных в таблице параметров, а точками — их экспериментальные значения.

В некоторых образцах LuFe_4Al_8 в температурном интервале $T_1 - T_2$ зависимость $R_s(T)$ также может быть описана уравнением (1). На рис. 1,а приведена температурная зависимость R_s именно для такого образца. Однако, как следует из работы [6], температурная зависимость R_s некоторых образцов LuFe_4Al_8 в интервале $T_1 - T_2$ не подчиняется квадратичному закону, а может быть описана выражением $R_s \propto T^n$, где $n < 1$.

Для образца CeCr_4Al_8 наблюдается серия аномалий R_s в виде волнообразного изменения сопротивления и отрицательного магнитосопротивления в некотором температурном интервале ниже каждого максимального значения сопротивления (см. рис. 1,д). Таким образом, для данного соединения есть несколько значений T_1 и T_2 .

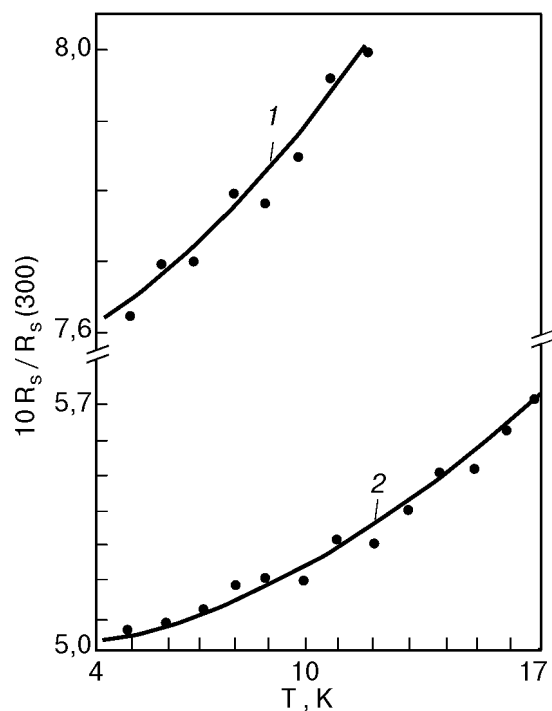


Рис. 2. Температурные зависимости $R_s/R_s(300)$ для YMn_4Al_8 (1) и $CeFe_4Al_8$ (2), полученные расчетным путем (сплошные линии) и экспериментально (точки).

В $ScFe_4Al_8$ и YCr_4Al_8 при некоторой температуре T_c , которая на несколько градусов ниже T_2 , как и в $LuFe_4Al_8$ [6,7], в незначительном количестве проявляется сверхпроводящая фаза. Это видно из результатов, полученных при измерениях $R_s(T)$ в магнитном поле 50 Э (см. рис. 1, пунктирные линии). Ниже T_c магнитосопротивление положительно.

Следует отметить влияние отжига на параметры соединений.

На рис. 3 представлены температурные зависимости теплоемкости соединения YCr_4Al_8 , полученные до отжига (рис. 3,а, кривая 1) и после него (рис. 3,а, кривая 2). Здесь же приведены температурные зависимости теплоемкости образцов YMn_4Al_8 (рис. 3,а, кривая 3), а также $CeCr_4Al_8$ (рис. 3,б, кривая 3) после отжига. Измерения теплоемкости проводились сериями, причем изменялись начальная температура, скорость прогрева к начальной температуре серии и температурный «шаг». Такой эксперимент позволил установить чувствительность теплоемкости к указанным параметрам в интервалах температур, где наблюдаются аномалии теплоемкости.

Для образца YCr_4Al_8 это интервалы 7,5–10 К и 11,5–18 К, а для YMn_4Al_8 — 10–15 К (рис. 3). Зависимость теплоемкости от кинетических параметров и термической предыстории образца озна-

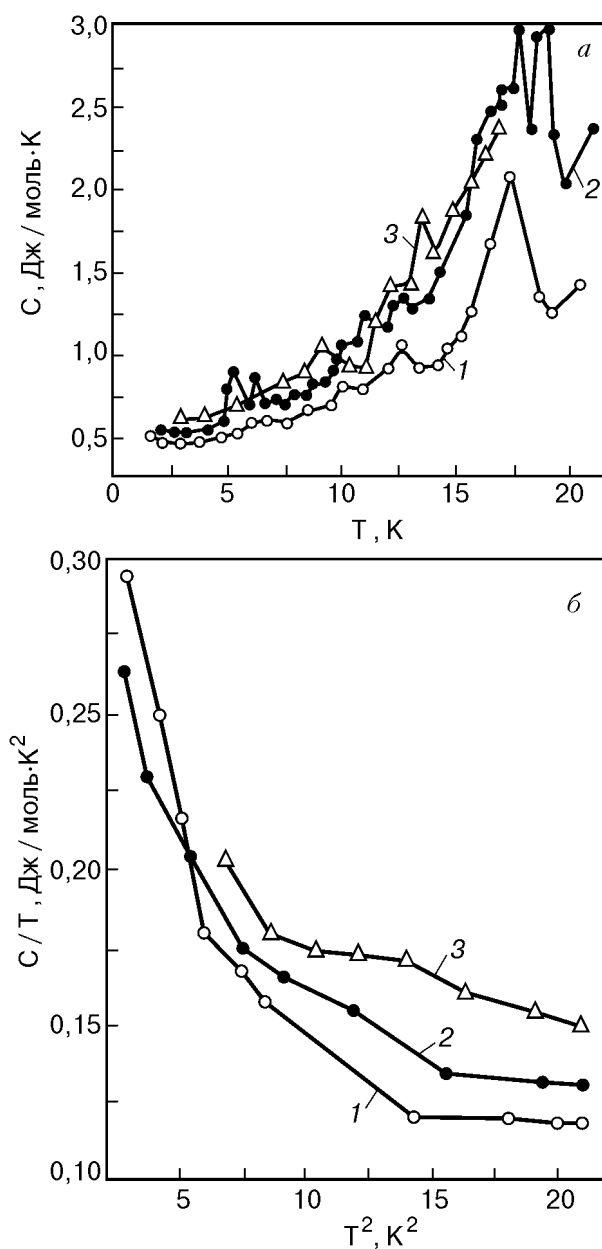


Рис. 3. Температурные зависимости теплоемкости соединения YCr_4Al_8 до отжига (1) и после него (2), а также YMn_4Al_8 после отжига (3) (а). Температурные зависимости теплоемкости отожженных соединений YCr_4Al_8 (1) YMn_4Al_8 (2) и $CeCr_4Al_8$ (3) в координатах $C/T(T^2)$ (б).

чает наличие гистерезиса, что позволяет определить фазовые превращения как переходы I рода.

На рис. 4 представлены данные по температурным зависимостям теплоемкости и сопротивления соединения YCr_4Al_8 . Как и в случае с $LuFe_4Al_8$, наблюдается корреляция между аномалиями теплоемкости и сопротивления. При температуре T_1 начинается влияние слабого магнитного поля на сопротивление (рис. 4,а, пунктир), при температуре T_2 влияние поля прекращается, а при T_c происходит образование сверхпроводящей фазы.

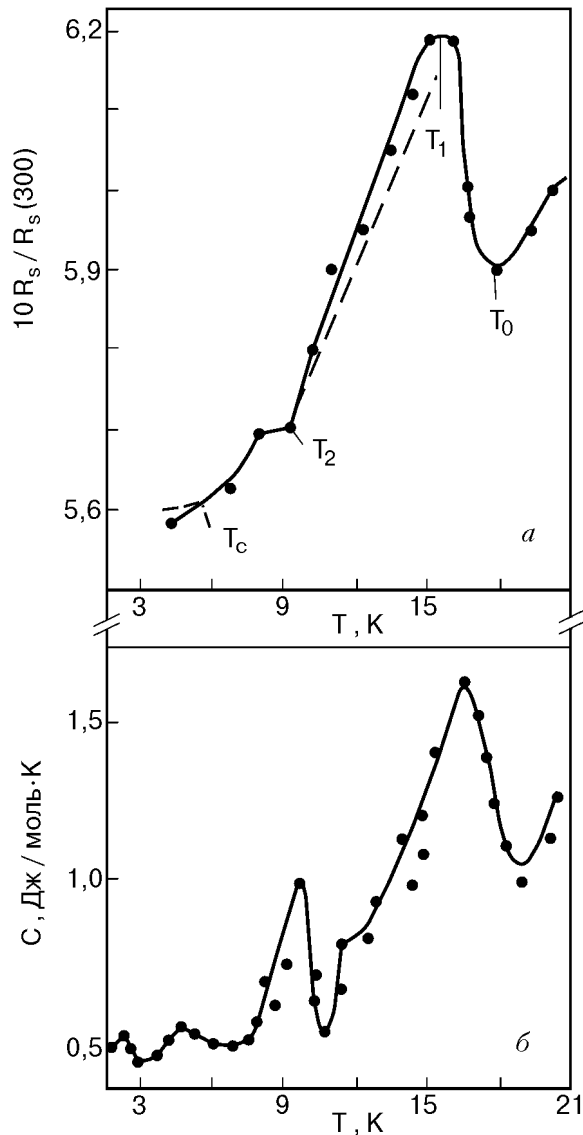


Рис. 4. Температурные зависимости $R_s/R_s(300)$ (а) и C (б) соединения YCr_4Al_8 .

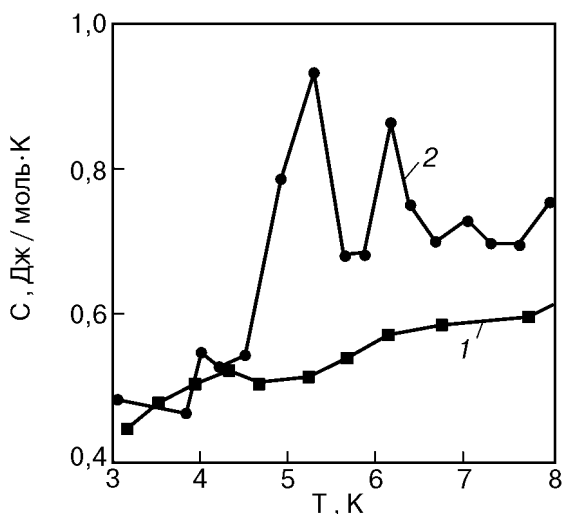


Рис. 5. Температурные зависимости теплоемкости соединения YCr_4Al_8 до отжига (1) и после него (2).

Именно при этих температурах наблюдаются особенности в поведении теплоемкости.

На рис. 5 приведены температурные зависимости теплоемкости соединения YCr_4Al_8 в области температур образования сверхпроводящей фазы до отжига образца (кривая 1) и после него (кривая 2). Из рисунка следует, что отжиг приводит к повышению T_c и увеличению амплитуды аномалии C . В то же время увеличение процента сверхпроводящей фазы в результате отжига, согласно измерениям R_s , не наблюдается, хотя влияние постоянного магнитного поля начинается при больших температурах (4,5 К до отжига и 4,9 К после термообработки).

На рис. 6 представлены температурные зависимости R_s (1) и реактивной компоненты полного импеданса X_s (2) соединения LuFe_4Al_8 при $H = 0$ и $H = 50$ Э: R_s (3) и X_s (4), приведенные к $R_s(85)$ и $X_s(85)$ соответственно. На рисунке хорошо видна корреляция зависимостей $R_s(T)$ и $X_s(T)$.

В работе [6] указано, что приложение постоянного магнитного поля ($H \sim 50$ Э) при $T < T_1$ практически полностью устраняет скачкообразное повышение поверхностного сопротивления соединения LuFe_4Al_8 . Однако исследовались и такие образцы LuFe_4Al_8 , в которых амплитуда аномалии R_s при $T = T_1$ велика. В них наблюдается скачкообразное снижение R_s с увеличением постоянного магнитного поля. На рис. 7 приведена зависимость $R_s(H)$ одного из таких образцов при $T = 30$ К.

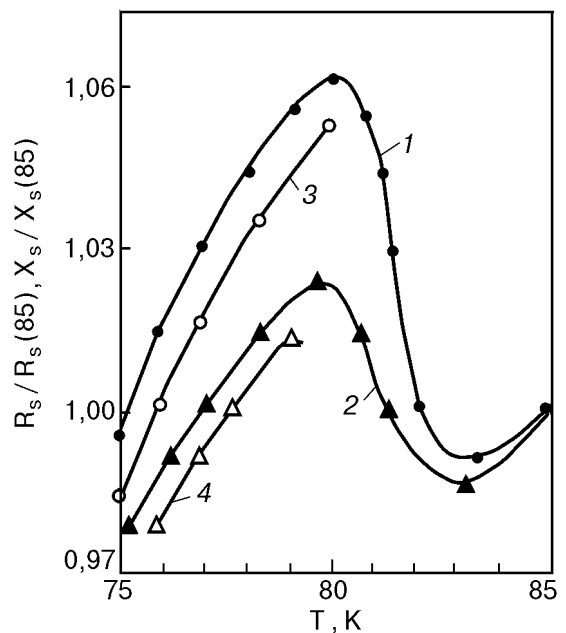


Рис. 6. Температурные зависимости активной R_s (1) и реактивной X_s (2) компонент импеданса соединения LuFe_4Al_8 при $H = 0$, то же при $H = 50$ Э R_s (3), X_s (4).

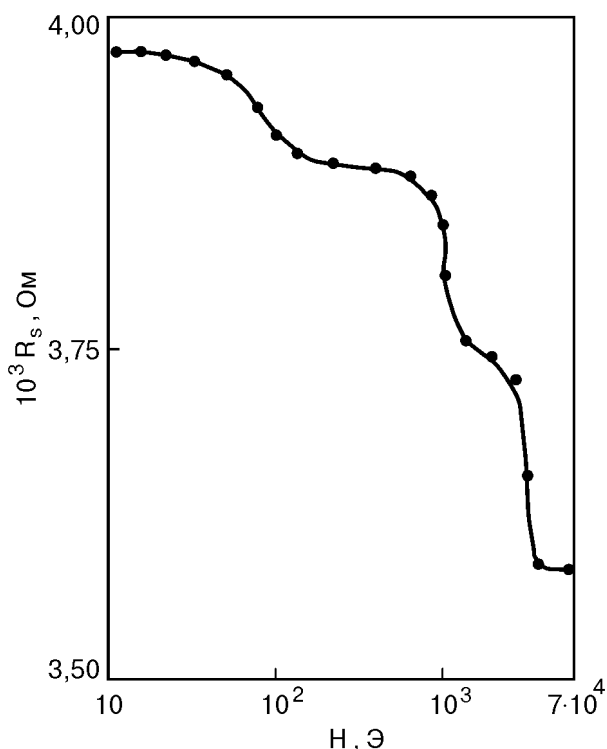


Рис. 7. Зависимость поверхностного сопротивления R_s соединения $LuFe_4Al_8$ от напряженности магнитного поля при $T = 30$ К.

Следует отметить, что в некоторых образцах (например, в $Y Mn_4 Al_8$) после отжига амплитуда скачкообразного увеличения R_s , а также влияние постоянного магнитного поля на омические потери снижаются.

Для сравнения характеристик зависимостей $C(T)$ и $R_s(T)$ соединений, выполненных на основе переходных и благородных металлов, проведено измерение $R_s(T)$ UCu_4Al_8 , а также соединений $LaAg_6In_6$ и $PrAg_6In_6$ в температурном интервале 4,5–300 К. Теплоемкость соединения UCu_4Al_8 измерена в интервале температур 2–95 К. Зависимости $R_s(T)/R_s(300)$ для этих соединений приведены на рис. 8: UCu_4Al_8 (а), $LaAg_6In_6$ (б) и $PrAg_6In_6$ (в), а кривая $C(T)$ для UCu_4Al_8 — на рис. 9. На вставке к рис. 8,б показаны зависимости $R_s(T)$ соединений $LaAg_6In_6$ (1) и $PrAg_6In_6$ (2) в температурном интервале их пересечения. На вставке к рис. 8,в показана температурная зависимость $R_s/R_s(300)$ $PrAg_6In_6$ в температурном интервале 5–9 К, измеренная при $H = 0$ (кривая 1) и в постоянном магнитном поле 500 Э (кривая 2).

Обсуждение результатов

Анализируя полученные результаты, прежде всего отметим общие особенности физических ха-

рактеристик исследованных соединений системы RM_4Al_8 .

Во всех исследуемых соединениях с переходными металлами на температурной зависимости R_s наблюдается линейный участок, что является

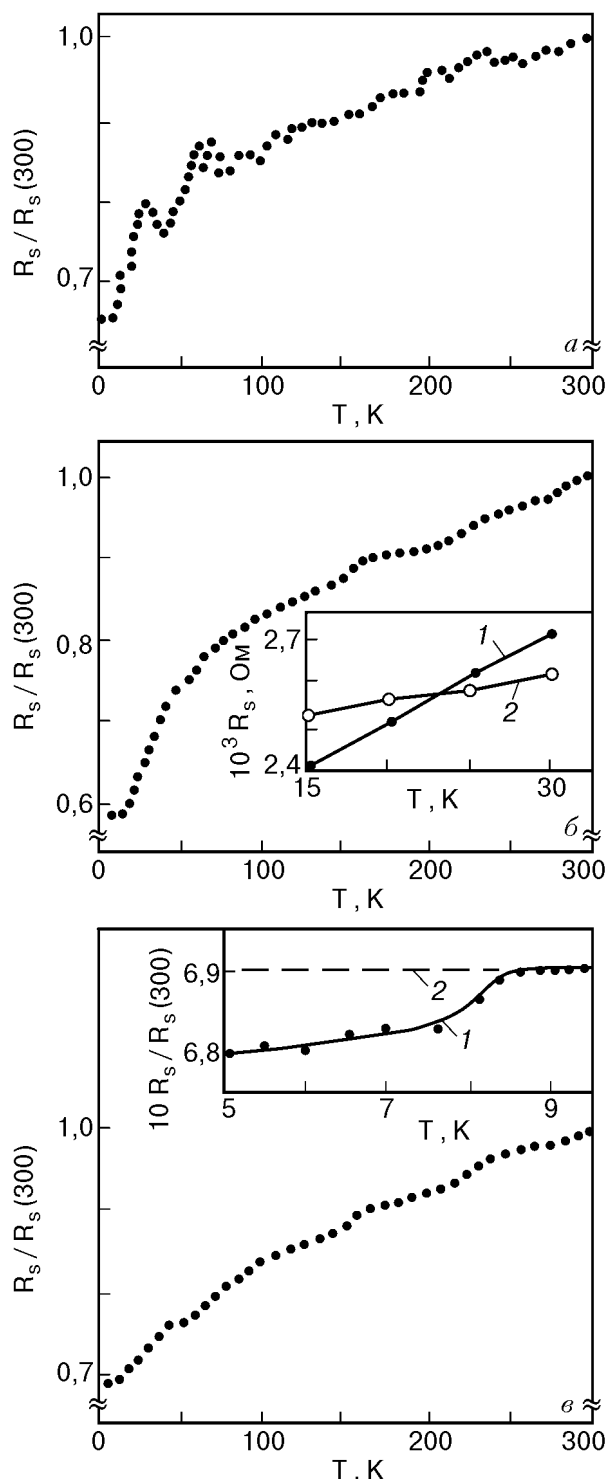


Рис. 8. Температурные зависимости $R_s/R_s(300)$ соединений UCu_4Al_8 (а), $LaAg_6In_6$ (б) и $PrAg_6In_6$ (в). На вставке к рис. 8,б: $R_s(T)$ соединений $LaAg_6In_6$ (1) и $PrAg_6In_6$ (2) в температурном интервале 15–30 К. На вставке к рис. 8,в: $R_s(T)/R_s(300)$ соединения $PrAg_6In_6$, $H = 0$ (1) и $H = 500$ Э (2).

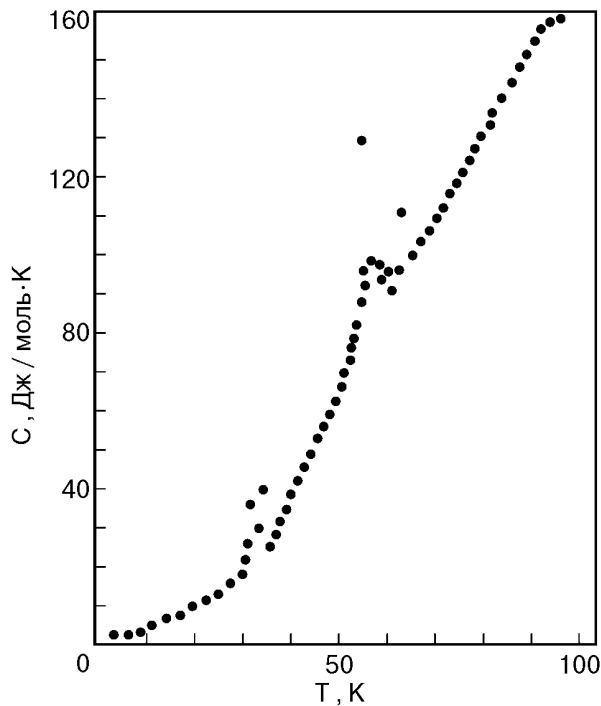


Рис. 9. Температурная зависимость теплоемкости соединения UCu_4Al_8 .

характерным признаком для соединений с редкоземельными элементами. Линейная зависимость наблюдается в области парамагнетизма. При $T < T^*$ происходит фазовый переход, сопровождающийся практически скачкообразным возрастанием сопротивления. При температурах ниже фазового перехода с понижением температуры сопротивление уменьшается, при этом крутизна изменения для различных образцов отличается. Тем не менее общим типичным признаком указанного фазового перехода является отрицательное магнитосопротивление, что наблюдается для всех исследованных образцов в интервале температур $T_1 - T_2$ в слабом (~ 50 Э) постоянном магнитном поле. Причем чувствительным к переходу и магнитному полю оказывается не только R_s , но и X_s и, следовательно, полный импеданс, как это видно на рис. 6.

По-видимому, описанные особенности поведения R_s при $T < T_1$ могут быть общими для всего семейства соединений RM_4Al_8 с переходными металлами.

Это связано с тем, что, согласно [1–3], все соединения данного типа имеют одинаковую магнитную структуру, состоящую из трех магнитных подрешеток: R- и двух M-подрешеток. При температуре Нееля T_N все они претерпевают антиферромагнитное упорядочение, а при $T_1 < T_N$ происходит фазовый магнитоструктурный переход, при котором формируются антиферромагнитно свя-

занные слои, разделенные слоями редкоземельного металла, который может быть немагнитным, слабомагнитным или магнитным. Другими словами, формируется сверхрешетка «магнетик — редкая земля — магнетик», электрические параметры которой чувствительны к слабому постоянному магнитному полю.

Если граничная область между антиферромагнитными слоями является немагнитной, то именно здесь может реализоваться сверхпроводимость и, таким образом, образуется сверхрешетка «магнетик — сверхпроводник — магнетик». Этим можно объяснить небольшое количество сверхпроводящей фазы. В различных соединениях магнитным моментом могут обладать как атомы M, так и атомы R, что изменяет условия возникновения сверхпроводящей фазы. Чем сильнее выражены магнитные свойства R, тем меньше образуется сверхпроводящей фазы. Действительно, в соединениях со скандием при сильномагнитном переходном металле Fe сверхпроводящая фаза образуется, хотя и в меньшем количестве, чем в соединении с Lu. В то же время в соединении с церием — сильным парамагнетиком — сверхпроводимость не наблюдается, по крайней мере при $T \leq 2$ К. Кроме того, по утверждению авторов [12], в $CeCr_4Al_8$ магнитное упорядочение не наблюдается. В [12] отмечается большое значение коэффициента Зоммерфельда γ , полученное при низких температурах и указывающее на присутствие тяжелых фермионов в этом соединении. На рис. 3,б (кривая 3) приведена полученная нами зависимость C/T от T^2 для образца $CeCr_4Al_8$. Наши результаты в пределах 10–15% совпадают с данными, приведенными в [12].

Интересным оказывается соединение YCr_4Al_8 , состоящее из немагнитного иттрия и слабого антиферромагнетика хрома. Для этого соединения $T_c = 4,5$ К. Но наши предварительные исследования монокристалла YFe_4Al_8 указывают на то, что замена Cr на Fe повышает T_c до 6 К.

Обращает на себя внимание и большое ($0,22$ Дж/моль·К²) значение γ в соединении YCr_4Al_8 (рис. 3,б кривые 1,2). Напомним, что в $LuFe_4Al_8$ γ равен $0,075$ Дж/моль·К².

Отметим, что в соединении YMn_4Al_8 сверхпроводящая фаза также не образуется. В это соединение входят практически немагнитный иттрий и слабомагнитный марганец. Марганец может быть как магнитным, так и немагнитным в зависимости от расстояния Mn–Mn. Критическое расстояние $d_c = 2,6$ Å, при $d < d_c$ магнитный момент исчезает. На это следует обратить внимание в связи со следующими обстоятельствами. Полученные на-

ми результаты для зависимости теплоемкости $C(T)$ и сопротивления $R(T)$ соединения YMn_4Al_8 отличаются от приведенных в работе [13], где не отмечено никаких аномалий в поведении теплоемкости в интервале 1,5–200 К. Исследуемый нами образец при низких температурах проявляет аномалии, которые сопровождаются гистерезисом. Такое расхождение результатов может быть вызвано существованием в исследуемом нами образце фазы с Mn, который обладает магнитным моментом и испытывает магнитное упорядочение при низких температурах.

И все-таки отметим, что поведение соединений $CeFe_4Al_8$, $CeCr_4Al_8$ и YMn_4Al_8 имеет те же характерные особенности, что и систем, проявляющих сверхпроводимость: скачкообразное возрастание электросопротивления при некоторой температуре, сопровождающееся при понижении температуры отрицательным магнитосопротивлением. (Не исключено, что в этих соединениях при более низких температурах может образовываться сверхпроводящая фаза.)

На рис. 8,а и 9 видно, что на регулярных зависимостях $R_s(T)$ и $C(T)$ соединения UCu_4Al_8 наблюдаются две заметные аномалии: в области 30–40 К и в области 60 К. Небольшие аномалии $R_s(T)$ обнаружены также в интервале температур 225–200 К. Известно, что для $UCu_{4+x}Al_{8-x}$ T_N чувствительна к концентрационному соотношению компонент. При $x = 0$ $T_N = 40$ К и уменьшается до 5 К при $x = 1,5$ [9]. Для исследованных нами образцов степень отклонения от стехиометрии неизвестна. Поэтому аномалии при $T = 30$ –40 К мы связываем с антиферромагнитным упорядочением. Поскольку эти температуры немного ниже 40 К, то, возможно, остальные аномалии связаны с несовершенством образцов.

Следует отметить, что, в отличие от систем типа RFe_4Al_8 , в системе UCu_4Al_8 отрицательное магнитосопротивление не наблюдается.

На температурных зависимостях R_s соединений $LaAg_6In_6$ и $PrAg_6In_6$ в интервале температур 5–300 К аномалий не наблюдается, как и на $\rho(T)$ в работе [10]. Это подтверждает, что в данном температурном интервале антиферромагнитное упорядочение отсутствует. Сравнение зависимос-

тей $R_s(T)$ и $\rho(T)$ из [10] показывает, что во всем исследованном температурном интервале выполняется обычное соотношение электродинамики: $R_s \sim \rho^{0,5}$.

Довольно неожиданным оказалось появление сверхпроводящей фазы в соединении $PrAg_6In_6$ с $T_c = 8,3$ К. Ее проявление показано на вставке к рис. 8,в. Ранее было известно о существовании сверхпроводящей фазы в псевдотройном соединении $Pr(Rh_{0,85}Ru_{0,15})_4B_4$ с $T_c = 2,3$ К [14] и в $PrRu_4As_{12}$ с $T_c = 2,4$ К [15]. Особенно интересные данные о высокотемпературном сверхпроводнике $PrBa_2Cu_3O_x$ приведены в [16–18]. В этих работах отмечены необычные свойства такого соединения, неоднородность его структурных и физических свойств и их сильная зависимость от технологических условий получения образцов. Так, образцы могут быть изолятором, металлом или сверхпроводником с T_c от нуля до 80 К. Количество сверхпроводящей фазы также колеблется в широких пределах. Это еще раз указывает на то, как важны дальнейшие комплексные исследования тройных редкоземельных соединений, изготовленных различными технологическими приемами. В образцах UCu_4Al_8 и $LaAg_6In_6$ сверхпроводящая фаза не обнаружена, по крайней мере выше 4,5 К.

Заключение

Таким образом, обнаружение сверхпроводимости в соединениях $LuFe_4Al_8$, $ScFe_4Al_8$, YFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 и $PrAg_6In_6$ позволяет говорить о новом классе сверхпроводников, сверхпроводимость которых связана с магнитным состоянием соединений*.

Следует отметить, что от технологии приготовления образцов во многом зависят их свойства, которые оказываются очень чувствительными к стехиометрии. Так, например, в соединении RFe_xAl_{12-x} антиферромагнетизм, который реализуется при $x = 4$, с возрастанием x трансформируется в спиновое стекло и затем в ферромагнетизм. Этим, возможно, могут быть объяснены некоторые противоречия, имеющиеся в литературе относительно свойств и параметров соединений этого семейства.

* Когда настоящая статья уже находилась в наборе, появились две работы (K. Shimizu, T. Kimura, S. Furomoto, K. Takeda, K. Kontani, Y. Onuki, and K. Amaya, *Nature*, **412**, 316 (2001); S. Saxena and P. Littlewood, *Nature*, **412**, 290 (2001)), в которых сообщалось о сверхпроводимости чистого железа при $T < 2$ К в условиях сильного сжатия. В связи с этим мы хотели бы заметить, что, например, в монокристалле $ScFe_4Al_8$ расстояние Fe–Fe составляет 2,52 Å вместо 2,86 Å в чистом металлическом железе (J. Stepien-Damm, частное сообщение). Таким образом, в кристаллической решетке типа $ThMn_{12}$ железо находится в условиях сильного химического сжатия (около 12%). Поэтому, возможно, что наблюдаемая нами сверхпроводимость связана со сверхпроводимостью химически сжатых подрешеток железа и хрома.

Следует отметить, что скачкообразное возрастание электрического сопротивления вблизи температуры Нееля наблюдалось ранее на бинарных соединениях RMn_{12} , также имеющих структуру типа ThMn_{12} [19]. Поэтому в дальнейшем представляет интерес выяснение общих и отличительных черт магнитного упорядочения в тройных и бинарных соединениях, имеющих одинаковую структуру.

Для того чтобы обсуждать вопросы о фермили нефермижидкостном поведении соединений, типе магнитных, структурных и сверхпроводящих переходов, значениях их характерных параметров, наличии тяжелых фермионов и других свойствах, нужны дальнейшие исследования на заведомо качественных образцах, желательны на монокристаллах.

Авторы выражают благодарность В. Н. Светлову, Е. Л. Кравченко и В. Б. Степанову за работы, связанные с отжигом некоторых из исследованных образцов.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Украины, договор № 2М/75-2000.

1. K. H. J. Buschow, J. H. N. Van Vucht, and W. W. Van der Hoogenhoff, *J. Less-Common Metals* **50**, 145 (1976).
2. A. M. Van der Kraan and K. H. J. Buschow, *Physica* **86**, 93 (1997).
3. K. H. J. Buschow, and A. M. Van der Kraan, *J. Phys.* **F8**, 921 (1978).
4. J. A. Paixao, S. Langridge, S. A. Sorensen, B. Lebech, A. P. Gonsalves, G. H. Lander, P. J. Provn, P. Burlet, and E. Talik, *Physica* **B234–236**, 614 (1997).
5. P. Schobinger-Papamantellos, K. H. J. Buschow, and C. Ritter, *J. Magn. Magn. Mater.* **186**, 21 (1998).
6. А. М. Гуревич, В. М. Дмитриев, В. Н. Еропкин, Л. А. Ищенко, Н. Н. Пренцлау, Л. В. Шлык, *ФНТ* **25**, 15 (1999).
7. А. М. Гуревич, В. М. Дмитриев, В. Н. Еропкин, Л. А. Ищенко, Н. Н. Пренцлау, Л. В. Шлык, *Тез. докл. XXXI совещ. по физ. низк. темп.*, Москва (1998), p. 142.
8. W. Suski, B. Kotur, and K. Wochowski, *Physica* **B281–282**, 81 (2000).
9. W. Suski, *Handbook of the Physics and Chemistry of Rare Earths*, Karl A. Gschneidner, Jr, and LeRoy Eyring (eds.), Elsevier, Amsterdam, Lausanne, New York, Oxford, Shannon, Tokyo (1996).

10. V. I. Zaremba, Ya. M. Kalychak, Ya. V. Galadzhun, W. Suski, and K. Wochowski, *J. Solid State Chem.* **145**, 216 (1999).
11. В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, *Радиотехника*, вып. **97**, 91 (1993).
12. H. Ido, T. Nishioka, and M. Kontani, *J. Magn. Magn. Mater.* **177–181**, 385 (1998).
13. I. H. Hagmusa, J. C. P. Klaasse, E. Bruk, F. R. de Boer, and K. H. J. Buschow, *J. Alloys and Compounds* **299**, 21 (2000).
14. D. C. Johnston, *Solid State Commun.* **24**, 699 (1977).
15. Jchimim Shirovani, Takanori Uchiumi, Katsuski Ohno, Chihiro Sekine, Yasuhiro Nakazawa, Kazushi Kanoda, Sakae Todo, and Takehiko Yagi, *Phys. Rev.* **B56**, 7866 (1997).
16. H. A. Blackstead, John D. Dow, B. B. Chrisey, J. S. Horwits, M. A. Black, P. J. McGinn, A. E. Klunzinger, and D. B. Pulling, *Phys. Rev.* **B54**, 6122 (1996).
17. Zhigang Zou, Jinhua Ye, Kunihiko Oka, and Yoshikazu Nishihara, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1074 (1998).
18. Jinhua Ye, Zhigang Zou, Akiyuki Matsushita, Kunihiko Oka, Yoshikazu Nishihara, and Takehiko Matsumoto, *Phys. Rev.* **B58**, 619 (1998).
19. Yasushi Amako, Hiroyuki Nagai, and Kendo Adachi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 3355 (1993).

Impedance and heat capacity of RM_4Al_8 and RAg_6In_6 compounds

A. M. Gurevich, V. M. Dmitriev, V. N. Eropkin,
B. Yu. Kotur, N. N. Prentslau, V. Suski,
A. T. Terekhov, and L. V. Shlyk

The experimental data on surface resistance and heat capacity of triple rare-earth compounds — LuFe_4Al_8 , ScFe_4Al_8 , CeFe_4Al_8 , CeCr_4Al_8 , YFe_4Al_8 , YCr_4Al_8 , YMn_4Al_8 , UCu_4Al_8 , LaAg_6In_6 and PrAg_6In_6 , of the ThMn_{12} type structure are presented. It is shown that the total impedance and the heat capacity exhibit a jump for a certain temperature which is typical of each compound with Fe, Cr and Mn and is below the Neel point. For lower temperatures there occurs a negative magnetoresistance in a weak magnetic field in these compounds. Superconducting phases are observed in the compounds ScFe_4Al_8 ($T_c = 6$ K), YCr_4Al_8 ($T_c = 4,5$ K), YFe_4Al_8 ($T_c = 6$ K), PrAg_6In_6 ($T_c = 8,3$ K).