

Спиновая динамика в системах с немагнитным основным состоянием на основе Yb и Sm

© К.С. Немковский, П.А. Алексеев, Ж.-М. Миньо*, В.Н. Лазуков

Российский научный центр „Курчатовский Институт“,
Москва, Россия

* Лаборатория Леона Бриллюэна,
Сакле, Франция

E-mail: kirnem@issph.kiae.ru

Методом неупругого рассеяния нейтронов выполнено разностороннее исследование природы и условий формирования основного состояния и динамического магнитного отклика (спектр магнитных возбуждений) в системах с немагнитным основным состоянием YbB_{12} и $\text{Sm}(\text{Y})\text{S}$.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 08-02-00430.

1. Введение

Кондо-изоляторы (КИ) образуют особый класс редкоземельных (РЗ) соединений, в которых при понижении температуры открывается узкая щель в плотности электронных состояний вблизи уровня Ферми и одновременно происходит полное подавление локального магнитного момента РЗ-иона [1]. Вопрос о природе и условиях формирования немагнитного диэлектрического основного состояния КИ является одним из наиболее актуальных для современной физики РЗ-систем с сильными электронными корреляциями.

Класс КИ включает в себя ряд промежуточно-валентных (ПВ) интерметаллидов на основе церия ($\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$, CeNiSn и т.д.), додекаборид иттербия YbB_{12} и две системы на основе самария — SmB_6 и SmS (в SmS ПВ-режим и связанное с ним поведение типа КИ реализуются при приложении внешнего или так называемого „химического“ давления, например замещения Sm ионами Y). В настоящей работе кратко обсуждаются результаты недавних исследований спиновой динамики в единственном КИ на основе Yb — YbB_{12} [2–6], а также допированного сульфида самария $\text{Sm}(\text{Y})\text{S}$ [7], выполненных методом неупругого рассеяния нейтронов (НРН).

2. Спиновая динамика в YbB_{12}

В экспериментах по НРН на поликристаллическом образце было установлено [2], что при низкой температуре ($T < 20$ К) динамический магнитный отклик YbB_{12} демонстрирует спиновую щель ~ 10 meV и тонкую структуру, образованную тремя пиками с энергиями $E \sim 15$, ~ 20 и ~ 38 meV. Детальные исследования на монокристалле (в том числе с поляризационным анализом) показали [4–6], что эти пики соответствуют трем дисперсионным возбуждениям (рис. 1, *a*), обозначенным далее как $M1$, $M2$ и $M3$ соответственно. На рис. 2 представлены зависимости энергии, интегральной интенсивности и ширины соответствующих пиков в спектрах НРН от волнового вектора. Видно, что $M1$ локализовано вблизи L -точки ($\mathbf{q} = (0.5, 0.5, 0.5)$), соответствующей

границе зоны Бриллюэна вдоль направления $[111]$. L -точка соответствует также минимуму энергии $M1$. $M2$ и $M3$ хотя и демонстрируют заметную дисперсию, распределены в обратном пространстве более равномерно.

При сравнительно небольшом повышении температуры (до ~ 50 – 80 К) $M1$, $M2$ и $M3$ подавляются и замещаются не зависящим от волнового вектора сигналом спин-флуктуационного типа. При $T > 120$ К (рис. 1, *b*) динамический магнитный отклик YbB_{12} имеет

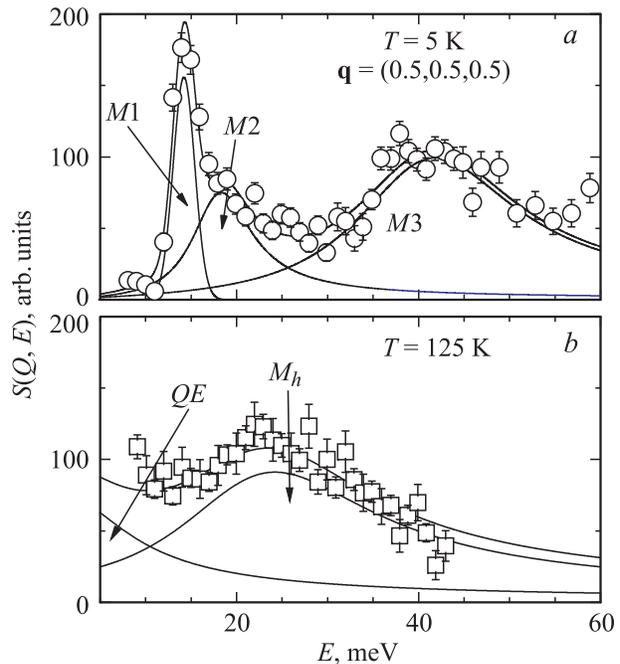


Рис. 1. Спектры магнитных возбуждений в YbB_{12} , измеренные на монокристаллическом образце в экспериментах с анализом поляризации нейтронов при $T = 5$ (*a*) и 125 К (*b*). Спектр при $T = 5$ К измерен с переданным импульсом $\mathbf{Q} = (1.5, 1.5, 1.5)$ ($\mathbf{q} = (0.5, 0.5, 0.5)$). Спектр при $T = 125$ К получен путем усреднения данных по точкам L ($\mathbf{Q} = (1.5, 1.5, 1.5)$, $\mathbf{q} = (0.5, 0.5, 0.5)$), X ($\mathbf{Q} = (1, 1, 2)$, $\mathbf{q} = (0, 0, 1)$), Γ ($\mathbf{Q} = (1, 1, 3)$, $\mathbf{q} = (0, 0, 0)$). Символы — эксперимент, линии — подгонка.

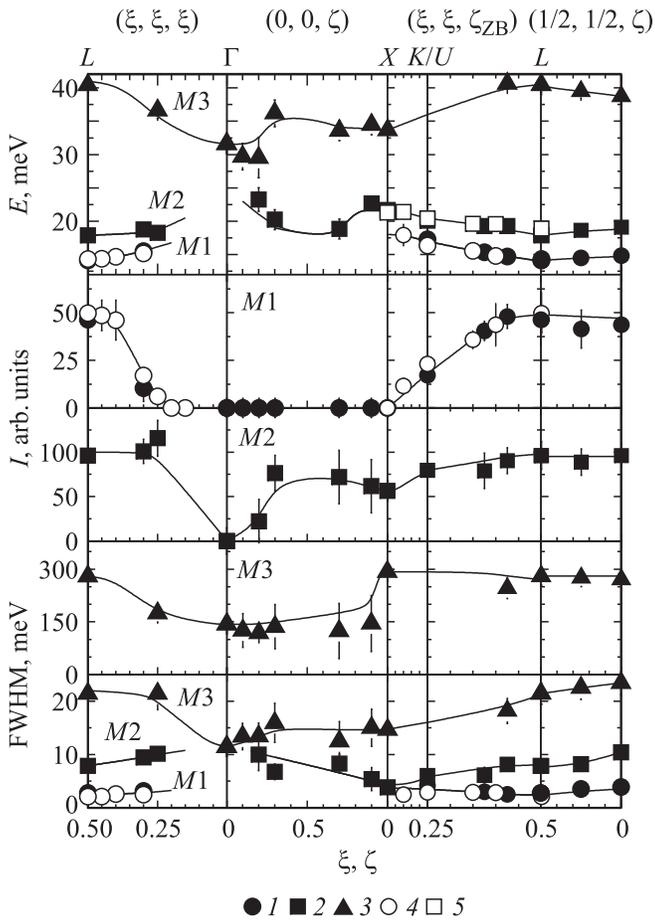


Рис. 2. Зависимость энергии, интегральной интенсивности и ширины пиков в спектрах YbB_{12} от приведенного волнового вектора для $M1$ (1, 4), $M2$ (2, 5) и $M3$ (3) при $T = 5$ К. Значения ξ и ζ приведены в единицах обратной решетки. 1–3 — данные, полученные с использованием поляризационного анализа, 4, 5 — без использования поляризационного анализа. Линии проведены на глаз для удобства восприятия представленных данных.

всего две спектральные компоненты: одну неупругую с $E \sim 21$ meV (M_h) и квазиупругую (QE). Переход в высокотемпературный режим происходит путем „перекачки“ интенсивности из $M1$, $M2$ и $M3$ в M_h и QE-сигнал (рис. 3) без изменения энергетического положения всех перечисленных возбуждений. При дальнейшем росте температуры структура спектра остается неизменной.

Роль кооперативных эффектов в формировании спектра спиновых возбуждений в YbB_{12} проясняют эксперименты по НРН на серии поликристаллических образцов, в которых „магнитная“ регулярность РЗ-подрешетки нарушена за счет частичного замещения Yb немагнитными ионами Lu [3,5]. Оказалось, что введение Lu сравнительно слабо влияет на $M2$ и $M3$, но приводит к заметному демпфированию $M1$ (рис. 4, a). При этом щель в спектре сохраняется вплоть до довольно низких ($\sim 10\%$) концентраций Yb. Можно предположить, что формирование спиновой щели, а также возбуждений $M2$ и $M3$

обусловлено в основном одноузельными эффектами, а их дисперсия носит вторичный характер. Возбуждение же $M1$ является кооперативным. При температурах выше 100 К магнитный отклик при допировании не

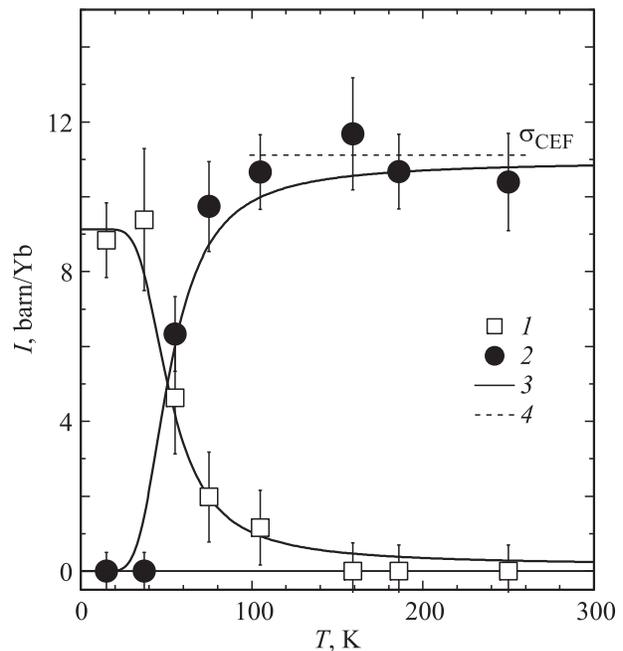


Рис. 3. Температурная зависимость парциальных сечений для YbB_{12} . 1 — сумма $M1$, $M2$ и $M3$, 2 — сумма M_h и QE-сигнала, 3 — расчет (см. текст), 4 — полное сечение переходов кристаллического электрического поля (CEF) для Yb^{3+} .

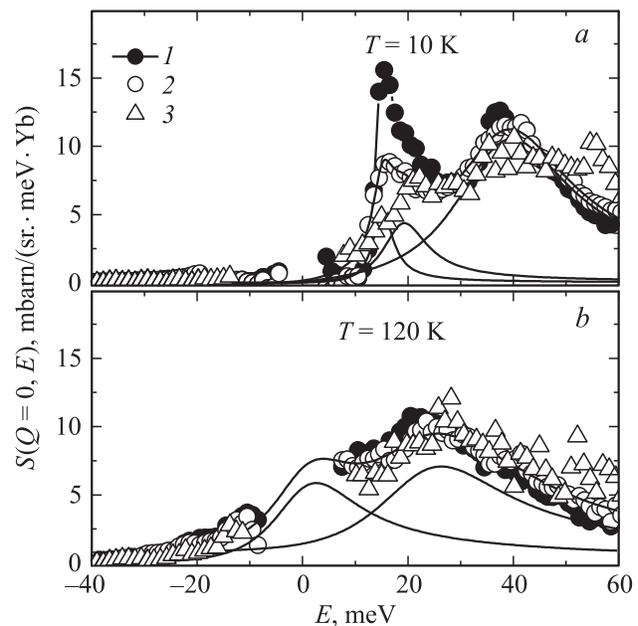


Рис. 4. Спектры магнитных возбуждений в $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$ при $T = 10$ (a) и 120 К (b). $x = 0$ (1), 0.25 (2), 0.75 (3). Спектры приведены к $Q = 0$ в соответствии с магнитодипольным формфактором иона Yb^{3+} . Линии — подгонка данных для $\text{Yb}_{0.75}\text{Lu}_{0.25}\text{B}_{12}$.

изменяется (рис. 4, *b*), что согласуется с отсутствием у высокотемпературных возбуждений зависимости от волнового вектора и подтверждает их одноузельный характер.

Учитывая последнее обстоятельство, естественно попытаться интерпретировать наблюдаемые возбуждения на основе эффектов кристаллического электрического поля (КЭП). Структура спектра при $T > 120$ К ($QE + M_h$) может быть описана [6] в рамках схемы уровней КЭП, полученной методом примесной парамагнитной метки [3], при дополнительном условии, что за счет сильной $f-d$ -гибридизации в YbB_{12} имеет место перенормировка энергий уровней КЭП, сводящая структуру спектра к двум особенностям (пикам).

Для объяснения низкотемпературных особенностей динамического магнитного отклика была привлечена модель, предложенная в работе [8]. В этой модели за счет совокупного действия $f-d$ -гибридизации и кулоновского притяжения на каждом РЗ-ионе формируется синглетное локальное связанное состояние d -электрона проводимости и f -оболочки иона Yb^{3+} , что приводит к появлению спиновой и зарядовой щели в спектрах возбуждений. Возбужденное состояние системы — гибридный с d -зоной и расщепленный в КЭП „основной“ спин-орбитальный (СО) мультиплет иона $Yb^{3+} 2F_{7/2}$. В этой схеме $M2$ и $M3$ можно соотнести с переходами из „нового“ синглетного основного состояния в гибридные состояния КЭП. Это объясняет устойчивость $M2$ и $M3$ к нарушению регулярности РЗ-подрешетки. Их дисперсия может быть обусловлена дисперсией соответствующих зон проводимости и/или влиянием обменного взаимодействия $Yb-Yb$. При этом поведение кооперативного возбуждения $M1$ хорошо вписывается [4,6] в рамки концепции спинового экситона [9], отщепляющегося от континуума спиновых возбуждений внутрь щели за счет антиферромагнитного взаимодействия между ионами Yb .

При повышении температуры связанное $f-d$ -состояние разрушается, и система переходит в спин-флуктационный режим, основное состояние которого определяется схемой уровней КЭП. Можно было бы ожидать [8], что температура этого перехода окажется порядка величины щели (т.е. ~ 200 К), однако фактически переход происходит при гораздо более низких температурах. Наблюдаемый в нейтронных экспериментах процесс перехода формально можно описать [6] в предположении о высокой (~ 10) кратности вырождения d -зоны проводимости, участвующей в формировании синглетного основного состояния (кривые 3 на рис. 3). Следует, однако, отметить, что это предположение малореалистично, и, скорее всего, обнаруженное поведение указывает на существование какого-то дополнительного механизма распада $f-d$ -синглетов.

3. Спиновая динамика в $Sm(Y)S$

Детальные нейтронные исследования структуры спектров магнитных возбуждений в ряду растворов

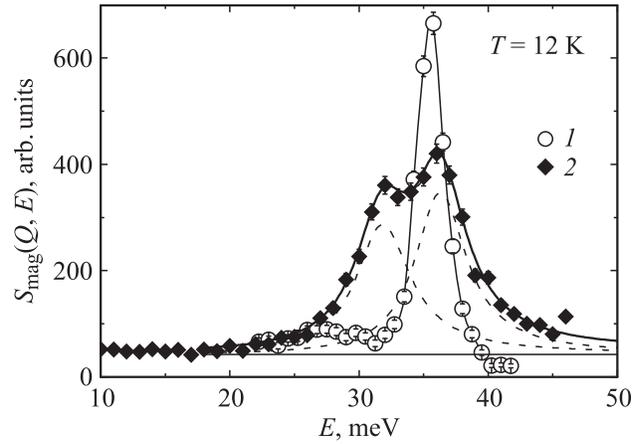


Рис. 5. Спектр магнитных возбуждений $Sm_{1-x}Y_xS$, $Q = (1.3, 1.3, 1.3)$, $T = 12$ К. x : 1 — 0, 2 — 0.17. Линии — подгонка.

$Sm_{1-x}Y_xS$ ($x = 0.17-0.45$) [7] показали, что, хотя валентность Sm заметно отклоняется от целочисленной (и составляет от 2.2 до 2.6 в зависимости от концентрации Y и температуры), спектральный вес в магнитном отклике сосредоточен в основном в области СО-переходов конфигурации Sm^{2+} , а вклад от конфигурации Sm^{3+} сильно демпфирован. При этом в области энергий СО-перехода ${}^7F_0 \rightarrow {}^7F_1$ спектральный магнитный отклик $Sm(Y)S$ (рис. 5) в отличие от стабильно валентного SmS имеет тонкую структуру, образованную двумя магнитными модами (далее M_{SO} и M_{exc}). Обе моды демонстрируют заметную дисперсию энергии сходного типа, а также взаимный обмен интенсивностями между ними при изменении приведенного волнового вектора q (рис. 6). Рост валентности Sm при увеличении концентрации Y приводит к уменьшению и изменению характера энергетической дисперсии для обеих мод, перекачке части полной интегральной интенсивности из M_{SO} в M_{exc} и некоторому увеличению среднего расщепления между двумя ветвями.

Наиболее последовательное объяснение всех наблюдаемых особенностей спектра магнитных возбуждений в $Sm(Y)S$ было получено [7] на основе экситонной модели ПВ-состояния [10], успешно примененной для описания динамики решетки и структуры спектра магнитных возбуждений в SmB_6 , а также термодинамических и транспортных свойств и фононных аномалий в $Sm(Y)S$. В рамках этих представлений более высокоэнергетическая мода M_{SO} в спектре $Sm(Y)S$ соотносится с СО-возбуждением $J = 0 \rightarrow J = 1$ электронной конфигурации Sm^{2+} , дисперсия которого обусловлена косвенным (через d -зону) обменным взаимодействием $Sm-Sm$. Вторая мода M_{exc} соответствует переходу между экситоноподобными состояниями $J^* = 0 \rightarrow J^* = 1$, имеющими ту же симметрию, что и „родительские“ состояния 7F_0 и 7F_1 . Учет косвенного обменного взаимодействия $Sm-Sm$, а также взаимодействия между модами позволяет количественно описать зависимость

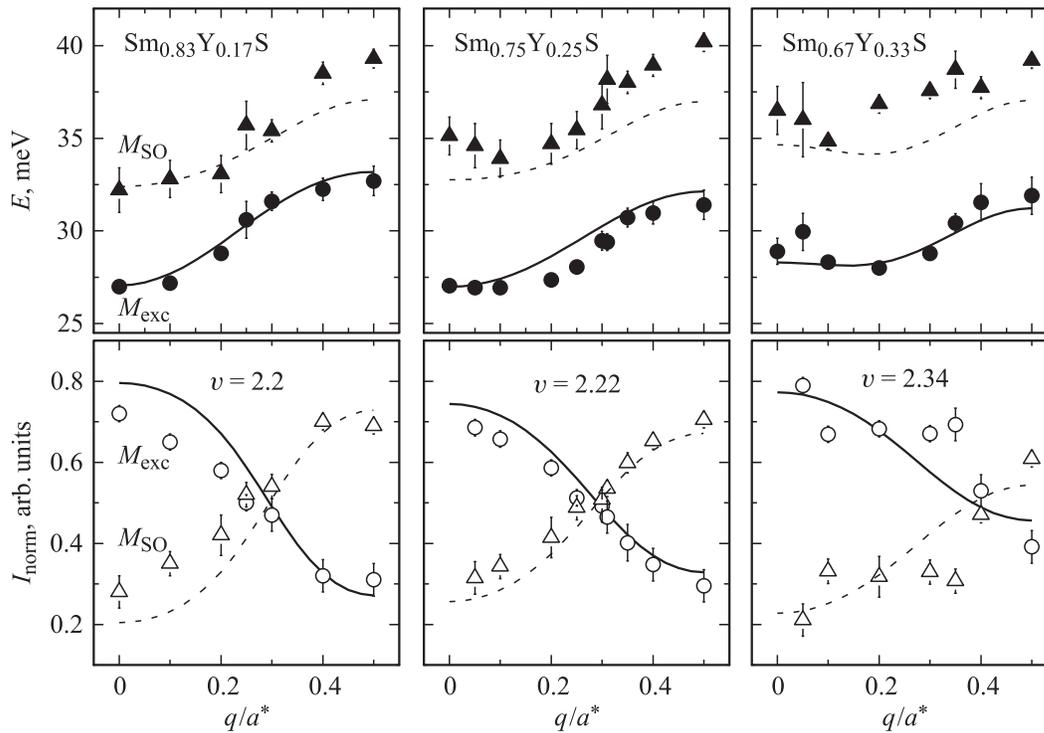


Рис. 6. Зависимость энергии E и нормированной интенсивности I_{norm} от приведенного волнового вектора для возбуждений M_{SO} и M_{exc} в $\text{Sm}_{1-x}\text{Y}_x\text{S}$ ($x = 0.17, 0.25, 0.33$) вдоль направления $[111]$ при $T = 12$ К (a^* — параметр обратной решетки). Для каждого из составов $\text{Sm}_{0.83}\text{Y}_{0.17}\text{S}$, $\text{Sm}_{0.75}\text{Y}_{0.25}\text{S}$ и $\text{Sm}_{0.67}\text{Y}_{0.33}\text{S}$ указаны значения валентности ионов самария v (2.2, 2.22 и 2.34 соответственно). Величина нормированной интенсивности I_{norm} при заданном векторе \mathbf{q} получена как отношение экспериментальных значений интенсивности M_{SO} (M_{exc}) к сумме интенсивностей M_{SO} и M_{exc} : $I_{\text{norm}}^{SO} = \frac{I_{SO}}{I_{SO} + I_{\text{exc}}}$, $I_{\text{norm}}^{\text{exc}} = \frac{I_{\text{exc}}}{I_{SO} + I_{\text{exc}}}$. Линии — модельный расчет (см. текст).

от волнового вектора как энергии, так и интенсивности обоих возбуждений для всех исследуемых образцов (рис. 6).

4. Заключение

Таким образом, синглетное основное состояние исследованных систем формируется в результате сложной конкуренции гибридизации f -орбиталей с зонными p - и d -состояниями, косвенного обменного взаимодействия и эффектов КЭП. При этом в отличие от цериевых КИ, основное состояние которых является когерентным, системы на основе Sm и Yb, напротив, демонстрируют тенденцию к формированию основного состояния локального типа. И хотя в условиях регулярной решетки могут проявляться кооперативные эффекты, в своей основе оно является одноузельным.

В YbB_{12} все три перечисленных выше взаимодействия имеют один масштаб. В системах с сильной валентной нестабильностью $\text{Sm}(\text{Y})\text{S}$ и SmB_6 доминирующим взаимодействием является гибридизация, а эффекты КЭП подавлены как в силу ПВ-состояния, так и за счет специфики волновых функций СО-мультиплетов. Вместе с тем в случае $\text{Sm}(\text{Y})\text{S}$, когда строение кристалличе-

ской и зонной структуры создает предпосылки для наличия достаточно сильного обменного взаимодействия Sm–Sm, оно приводит к формированию специфического кооперативного синглетного состояния.

В заключение авторы считают своим долгом выразить благодарность Н.Ю. Шицеваловой, Ю.Б. Падерно, Ф. Иге, Т. Такабатаке, А.В. Голубкову и А. Очаю за изготовление образцов, а также И.П. Садикову, Е.В. Нефедовой, А.С. Иванову, Е.С. Клементьеву, Н.Н. Тидену, Р. Бюли, Л.-П. Ренью, Н.М. Плакиде, Ю.М. Кагану, К.А. Кикоину, П. Райзборо, С. Лью, Б. Дорнеру и Ф. Буржу за плодотворные обсуждения.

Авторы благодарны Лаборатории Резерфорда–Эплтона, Лаборатории Леона Бриллюэна и Институту Лауэ–Ланжевена за поддержку при проведении экспериментов.

Список литературы

- [1] P.S. Riseborough. Adv. Phys. **49**, 257 (2000).
- [2] E.V. Nefedova, P.A. Alekseev, J.-M. Mignot, V.N. Lazukov, I.P. Sadikov, Yu.B. Paderno, N.Yu. Shitsevalova, R.S. Eccleston. Phys. Rev. B **60**, 13 507 (1999).

- [3] P.A. Alekseev, J.-M. Mignot, K.S. Nemkovski, E.V. Nefeodova, N.Yu. Shitsevalova, Yu.B. Paderno, R.I. Bewley, R.S. Eccleston, E.S. Clementyev, V.N. Lazukov, I.P. Sadikov, N.N. Tiden. *J. Phys.: Cond. Matter* **16**, 2631 (2004).
- [4] J.-M. Mignot, P.A. Alekseev, K.S. Nemkovski, L.-P. Regnault, F. Iga, T. Takabatake. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 247 204 (2005).
- [5] J.-M. Mignot, P.A. Alekseev, K.S. Nemkovski, E.V. Nefeodova, A.V. Rybina, L.-P. Regnault, N.Yu. Shitsevalova, F. Iga, T. Takabatake. *Physica B* **383**, 16 (2006).
- [6] K.S. Nemkovski, J.-M. Mignot, P.A. Alekseev, A.S. Ivanov, E.V. Nefeodova, A.V. Rybina, L.-P. Regnault, F. Iga, T. Takabatake. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 137 204 (2007).
- [7] P.A. Alekseev, J.-M. Mignot, E.V. Nefeodova, K.S. Nemkovski, V.N. Lazukov, N.N. Tiden, A.P. Menushenkov, R.V. Chernikov, K.V. Klementiev, A. Ochiai, A.V. Golubkov, R.I. Bewley, A.V. Rybina, I.P. Sadikov. *Phys. Rev. B* **74**, 035 114 (2006).
- [8] S.H. Liu. *Phys. Rev. B* **63**, 115 108 (2001).
- [9] P.S. Riseborough. *J. Magn. Magn. Mater.* **226–230**, 127 (2001).
- [10] K.A. Kikoin, A.S. Mishchenko. *J. Phys.: Cond. Matter* **7**, 307 (1995).