

Аномалии теплоемкости вблизи квантовой критической точки в соединении $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$

Н. Е. Случанко¹⁾*, А. В. Богач*, В. В. Глушков^{*+}, С. В. Демишев^{*+}, С. Ю. Гаврилкин[∇], Н. Ю. Шицевалова[△], В. Б. Филипов[△], С. Габани²⁾□, К. Флахбарт²⁾□

*Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

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

∇Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

△Институт проблем материаловедения НАНУ, 03680 Киев, Украина

□Институт экспериментальной физики САН, SK-04001 Кошице, Словакия

Поступила в редакцию 27 ноября 2009 г.

Исследовано поведение теплоемкости вблизи квантовой критической точки $x \sim 0.3$ в системе $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$. Детальные измерения выполнены на монокристаллических образцах высокого качества состава $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ в широком диапазоне температур 1.9–300 К в магнитном поле до 9 Тл. Обнаружено поведение магнитного вклада в теплоемкость, характеризующееся при $T < 4$ К логарифмической расходимостью вида $C/T \sim \ln T$, которое может быть связано с режимом квантового критического поведения, подавляющимся внешним магнитным полем. Выполнен анализ аномалии Шоттки магнитного вклада в теплоемкость соединения $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$.

1. В последнее время значительный интерес исследователей концентрируется на изучении особенностей поведения соединений вблизи квантовых критических точек (ККТ), в которых при изменении внешнего управляющего параметра (давление, магнитное поле, состав) наблюдаются фазовые переходы при нулевой температуре [1, 2]. Наиболее известной и хорошо изученной системой с квантовым критическим поведением являются твердые растворы замещения $CeCu_{6-x}Au_x$, где вблизи $x \approx 0.1$ регистрируется антиферромагнитная (АФ) ККТ (температура Нееля $T_N = 0$) с необычным поведением физических характеристик. В частности, в $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ наблюдаются логарифмическая расходимость электронной теплоемкости ($C/T \sim \ln T$), нефермижидкостное поведение удельного сопротивления ($\rho \sim T$), а также отличная от кюри-вейссовской степенная зависимость магнитной восприимчивости ($\chi \sim T^{-0.8}$) [3, 4]. Исследования, выполненные методом неупругого рассеяния нейтронов, привели авторов [5] к выводу о понижении размерности спектра магнитных возбуждений вблизи ККТ в $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$. Аналогичный квазидвумерный характер спектра спиновых флуктуаций был обнаружен в [6] для YbB_{12} , – соединения с промежуточной валентностью ($\nu(Yb) \approx 2.95$ [7, 8]), располагающегося в ряду редкоземельных (РЗ) додека-

боридов между антиферромагнетиком TmB_{12} ($T_N \approx 3.2$ К) [9] и сверхпроводником LuB_{12} [10]. Комплексное исследование твердых растворов замещения $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ [11] позволило сделать вывод о развитии неустойчивости АФ состояния и возникновении ККТ ($T_N = 0$) вблизи $x \sim 0.3$ при приближении к состоянию с нестабильной $4f$ -оболочкой РЗ иона (см. вставку на рис.1). Учитывая отмеченную выше аналогию с системой $CeCu_{6-x}Au_x$, интересно детально исследовать поведение теплоемкости $C_p(T)$ для составов $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$, отвечающих непосредственной окрестности ККТ ($x \sim 0.3$). Поскольку магнитное поле является одним из управляющих параметров в квантовой критической области [1–5], представляется целесообразным также проведение измерений $C_p(T)$ в сильных магнитных полях.

2. В работе выполнено исследование поведения теплоемкости соединения $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$, располагающегося в непосредственной окрестности ККТ системы $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ ($x \sim 0.3$). Измерения проведены на монокристаллических образцах высокого качества в широком диапазоне температур 1.9–300 К в магнитном поле до 9 Тл на установке PPMS-9 компании Quantum Design (США). Для сравнения нами исследовались также монокристаллические образцы додекаборидов тулия (TmB_{12}) и лютеция (LuB_{12}). Монокристаллы для измерений были выращены методом вертикального бестигельного индукционного зонного плавления в атмосфере инертного газа [12].

¹⁾ e-mail: nes@lt.gpi.ru

²⁾ S. Gabani, K. Flachbart.

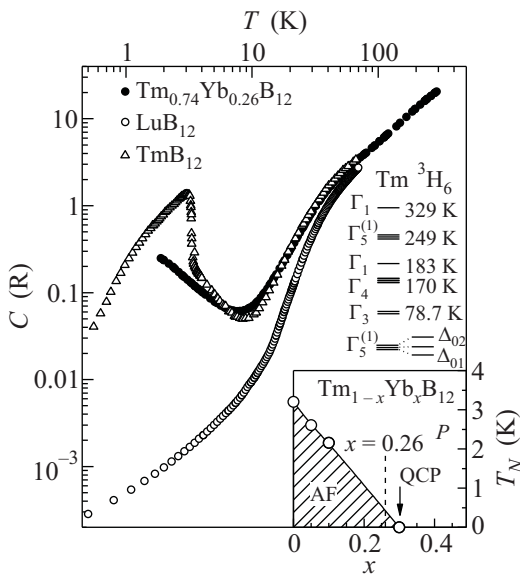


Рис.1. Температурные зависимости теплоемкости додекаборидов $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ ($x = 1$ и 0.74) и LuB_{12} в отсутствие внешнего магнитного поля. На вставках показаны магнитная фазовая диаграмма твердых растворов $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ с квантовой критической точкой (QCP) вблизи $x = 0.3$ (AF-антиферромагнетик, P-парамагнетик), а также схема расщепления кристаллическим полем 3H_6 состояния тулия (см. текст)

3. На рис.1 представлена температурная зависимость теплоемкости для состава $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ вблизи ККТ вместе с кривыми $C_p(T)$, измеренными для додекаборидов TmB_{12} и LuB_{12} . Последнее соединение с заполненной $4f$ -оболочкой ($4f^{14}$) редкоземельного иона является немагнитным аналогом твердого раствора $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ и используется в работе для оценки суммарного электронного и решеточного вкладов в теплоемкость $C_0(T)$ в рамках процедуры, предложенной для учета перенормировки температуры Дебая в многокомпонентных изоструктурных соединениях [13]. В рамках подхода [13] были рассчитаны коэффициенты k_D для TmB_{12} и $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ (0.985 и 0.988 соответственно), что позволило определить величину немагнитного вклада $C_0(T) = C_p^{LuB_{12}}(T/k_D)$ для обоих соединений.

На рис.2 представлены температурные зависимости магнитного вклада в теплоемкость $C_{mag}(T) = C_p(T) - C_0(T)$ соединения $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$, полученные в отсутствие внешнего магнитного поля (нижняя кривая) и в полях с индукцией $\mu_0 H = 3, 6$ и 9 Тл. Перестроение полученных данных в координатах $C_{mag}/T = f(\ln T)$ (вставка на рис.3) показывает, что при $T < 4$ К на кривой магнитного вклада, действительно, наблюдается близкий к линейному участку

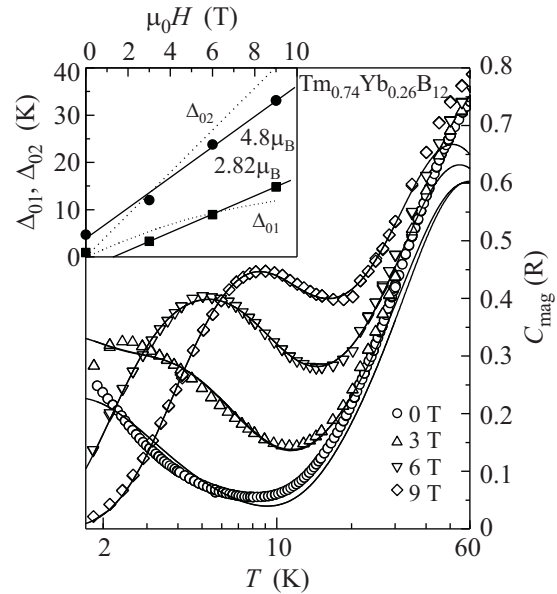


Рис.2. Температурные зависимости магнитного вклада в теплоемкость $C_{mag}(T)$ додекаборида $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ во внешнем магнитном поле до 9 Тл. Линиями показан результат аппроксимации кривых $C_{mag}(T)$ в рамках соотношений (1), (2). На вставке представлено изменение величины зеемановского расщепления (Δ_{01} , Δ_{02}) $\Gamma_5^{(1)}$ триплета 3H_6 состояния тулия во внешнем магнитном поле (см. текст)

ток роста электронной теплоемкости, который может быть сопоставлен с квантовым критическим поведением в $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$. Отметим, что для соединения в ККТ $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ внешнее магнитное поле с индукцией $\mu_0 H \geq 3$ Тл полностью подавляет квантовый критический режим [3]. В случае $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ введение внешнего магнитного поля с индукцией до 9 Тл приводит к появлению на зависимости $C_{mag}(T)$ аномалии в виде максимума, смещающегося с ростом магнитного поля в сторону высоких температур (рис.2).

Температурное изменение магнитной энтропии $S_{mag}(T) = \int (C_{mag}/T) dT$, приведенное к концентрации ионов Tm в соединении $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$, в магнитном поле с индукцией $\mu_0 H = 0, 3, 6$ и 9 Тл представлено на рис.3 вместе с зависимостью $S_{mag}(T)$ соединения TmB_{12} . Как видно из данных рис.3, в интервале между температурой Нееля $T_N(TmB_{12}) \approx 3.2$ К и $T \approx 20$ К изменение энтропии состава $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ в отсутствие внешнего магнитного поля достаточно точно определяется поведением $S_{mag}(T)$ додекаборида тулия. С ростом внешнего магнитного поля до 9 Тл в интервале температур $T < 20$ К происходит резкое подавление магнитного вклада в энтропию, причем выход

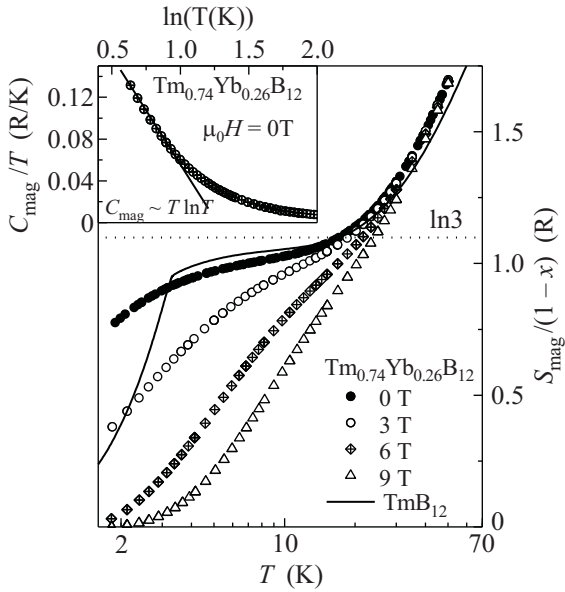


Рис.3. Температурные зависимости магнитного вклада в энтропию $S_{\text{mag}}(T)$, нормированного на концентрацию тулия, для состава $\text{Tm}_{0.74}\text{Yb}_{0.26}\text{B}_{12}$ во внешнем магнитном поле до 9 Тл и додекаборида TmB_{12} . На вставке в логарифмических координатах показан низкотемпературный участок зависимости магнитного вклада в теплоемкость $C_{\text{mag}}(T)/T$

на значение $R \ln 3$ (горизонтальная пунктирная прямая на рис.3), отвечающее триплетному состоянию $\Gamma_5^{(1)}$ в $\text{Tm}_{1-x}\text{Yb}_x\text{B}_{12}$, достигается при температурах 15–20 К, значительно превышающих $T_N \approx 3.2$ К в TmB_{12} .

Сопоставление полученных данных (рис.2,3) с результатами предварительных исследований теплоемкости TmB_{12} в магнитном поле свидетельствует об определяющей роли зеемановского расщепления триплета $\Gamma_5^{(1)}$, являющегося основным состоянием $^3\text{H}_6$ мультиплета тулия, в формировании аномалии Шоттки на кривых $C_{\text{mag}}(T)$ соединения $\text{Tm}_{0.74}\text{Yb}_{0.26}\text{B}_{12}$. Численный анализ магнитного вклада в теплоемкость $\text{Tm}_{0.74}\text{Yb}_{0.26}\text{B}_{12}$ $C_{\text{mag}}(T)$ проводился нами в рамках стандартной процедуры, определяемой соотношениями

$$C_{\text{mag}} = -T \left(\frac{\partial^2 F}{\partial T^2} \right) = \frac{R}{k_B^2 T^2} (\langle \Delta^2 \rangle - \langle \Delta \rangle^2), \quad (1)$$

$$\langle \Delta \rangle = \frac{\sum_{i=0}^n f_i \Delta_i \exp(-\Delta_i/k_B T)}{\sum_{i=0}^n f_i \exp(-\Delta_i/k_B T)}, \quad (2)$$

где Δ_i – энергия i -го возбужденного состояния мультиплета $^3\text{H}_6$ иона Tm^{3+} , f_i – кратность вырождения, F – свободная энергия, R – газовая постоянная. При

расчетах магнитного вклада $C_{\text{mag}}(T, H_0)$ все возбужденные состояния мультиплета $^3\text{H}_6$ учитывались в соответствии со схемой расщепления в кристаллическом поле $^3\text{H}_6$ -состояния тулия [14–16] (см. вставку на рис.1).

Результат аппроксимации экспериментальных данных $C_{\text{mag}}(T, H_0)$, представленный линиями на рис.2, показывает, что анализ в рамках соотношений (1), (2) обеспечивает достаточно хорошее приближение в температурном интервале $T \leq 30$ К в магнитном поле с индукцией $\mu_0 H \geq 3$ Тл. Значительное отклонение магнитного вклада $C_{\text{mag}}(T)$ в отсутствие внешнего магнитного поля (нижняя кривая на рис.2) обычно связывается с особенностями квантового критического режима и, в частности, с расходимостью электронной теплоемкости, возникающей вследствие расходимости эффективной массы квазичастиц вблизи ККТ. При этом подавление квантового критического режима в сильном магнитном поле $\mu_0 H \geq 3$ Тл представляется обусловленным магнитной поляризацией ЛММ РЗ ионов и спинов зонных носителей, препятствующей формированию многочастичных состояний в режиме локальных $4f$ - $5d$ -спиновых флуктуаций. В свою очередь, низкую точность аппроксимации $C_{\text{mag}}(T, H_0)$ соотношениями (1), (2) в температурном интервале $T \gtrsim 30$ К, по нашему мнению, следует связать с обнаруженной для LuB_{12} низкочастотной эйнштейновской модой ($\Theta_{E0} \approx 58$ К [14]), вклад в теплоемкость от которой, по-видимому, значительно усиливается в магнитных додекаборидах системы $\text{Tm}_{1-x}\text{Yb}_x\text{B}_{12}$.

В используемом нами приближении (1), (2) найденная величина зеемановского расщепления $\Delta_{0i} = \mu_{\text{eff}} H \Gamma_5^{(1)}$ -состояния тулия позволяет получить оценку значения эффективного магнитного момента μ_{eff} , который для состояний Δ_{01} и Δ_{02} оказывается равным $2.82 \mu_B$ и $4.8 \mu_B$, соответственно (см. вставку на рис.2). Отметим, что определенные из зависимостей $\Delta_{0i}(H)$ значения μ_{eff} заметно отличаются от расчетных для состояний $\Gamma_5^{(1)}$ триплета, которые составляют $\Delta_{01} = 1.15 \mu_B$ и $\Delta_{02} = 6.65 \mu_B$. Указанные отличия, по-видимому, могут быть связаны с уширением и перекрытием уровней $\Gamma_5^{(1)}$ триплета вследствие эффектов гибридизации электронных состояний РЗ ионов. Отметим также, что аппроксимация кривой $C_{\text{mag}}(T, H_0 = 0)$ соотношениями (1), (2) указывает на необходимость учета снятия вырождения $\Gamma_5^{(1)}$ триплета в отсутствие внешнего магнитного поля (обменное расщепление). При этом полученное нами значение $\Delta_{02} \approx 4.5$ К (см. вставку на рис.2) в пределах экспериментальной точности соответствует величине расщепления основного состояния иона

$Tm^{3+} \Delta_0 \approx 6 \pm 2$ К, определенной в экспериментах по эффекту Мессбауэра для TmB_{12} [17].

4. Выполненное исследование теплоемкости соединения $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ вблизи ККТ в ряду $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ позволяет обнаружить возрастание магнитного вклада $C_{mag}(T)$, которое в интервале $T < 4$ К может быть описано логарифмической зависимостью вида $C_{mag}/T \sim \ln T$. Внешнее магнитное поле $\mu_0 H \geq 3$ Тл подавляет указанный режим квантового критического поведения. Результаты анализа аномалии Шоттки теплоемкости и магнитного вклада в энтропию в $Tm_{0.74}Yb_{0.26}B_{12}$ свидетельствуют об определяющей роли тулиевой подсистемы в формировании особенностей поведения тепловых свойств в ряду $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$ с $x \leq 0.3$.

Авторы выражают признательность В.М. Пудалову, К.В. Мицену, О.Е. Омеляновскому и Г.Е. Гречневу за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке программы ОФН РАН “Сильнокоррелированные электроны в металлах, полупроводниках и магнитных материалах”, программы фундаментальных исследований Президиума РАН “Квантовая физика конденсированных сред”, программы сотрудничества между РАН и САН и проекта Российского фонда фундаментальных исследований.

-
1. G. S. Stewart, Rev. Mod. Phys. **78**, 743 (2006); Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001).
 2. С.М.Стишов, УФН **174**, 853 (2004).

3. H. von Lohneysen, J. Phys. Cond. Mat. **8**, 4889 (1996).
4. A. Schroder, G. Aeppli, R. Coldea et al., Nature **407**, 351 (2000).
5. O. Stockert, H. von Lohneysen, A. Rosch et al., Phys. Rev. Lett. **80**, 5627 (1998).
6. K. S. Nemkovski, J. M. Mignot, P. A. Alekseev et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 137204 (2007).
7. F. Iga, Y. Takakuwa, T. Takahashi et al., Sol. St. Commun. **50**, 903 (1984).
8. F. Iga, N. Shimizu, and T. Takabatake, J. Magn. Magn. Mat. **177-181**, 337 (1998).
9. S. Gabani, I. Bat'ko, K. Flachbart et al., J. Magn. Magn. Mat. **207**, 131 (1999).
10. K. Flachbart, S. Gabani, K. Gloos et al., J. Low Temp. Phys. **140**, 339 (2005).
11. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., Письма в ЖЭТФ **89**, 298 (2009).
12. Yu. Paderno, V. Filippov, and N. Shitsevalova, in: Eds. D. Emin, T. L. Aselage et al., Boron-Rich Solids, AIP Conference Proc. **230**, Albuquerque, 1991, p. 460.
13. M. Bouvier, P. Lethuillier, and D. Schmitt, Phys. Rev. B **43**, 13137 (1991).
14. A. Czopnik, N. Shitsevalova, V. Pluzhnikov et al., J. Phys.: Cond. Mat. **17**, 5971 (2005).
15. A. Czopnik, N. Shitsevalova, A. Krivchikov et al., J. Sol. St. Chem. **177**, 507 (2004).
16. A. Murasik, A. Czopnik, N. Shitsevalova et al., in: IAE Annual Report 1999, Otwock-Swierk, Poland, 1999, p.69.
17. P. C. M. Gubbens, A. M. van der Kraan, and K. H. J. Buschow, Physica B **130**, 412 (1985).