

СПИН-СТЕКольНЫЙ ПЕРЕХОД КАК ПРИЧИНА ЛОЖНОГО ТЯЖЕЛОФЕРМИОННОГО ПОВЕДЕНИЯ СИСТЕМЫ YbN_x

Е.Е.Котельникова, Н.М.Сулейманов, Г.Г.Халиуллин, Х.Друлис,
В.Ивасечко**

*Казанский физико-технический институт КНЦ РАН
420029 Казань, Российская Федерация*

**Институт низких температур и структурных исследований
Польской АН, 50-950 Вроцлав, Польша*

Поступила в редакцию 8 июля 1993 г.

Методом ЭПР установлено, что ионы иттербия в кубической фазе YbN_x имеют хорошо определенный магнитный момент. Обнаружен переход в состояние типа спинового стекла при $T \sim 8$ К. Найденные ранее низкотемпературные аномалии в теплоемкости и магнитной восприимчивости, на основании которых эта система предполагалась тяжелофермионной, по всей вероятности обусловлены магнитным переходом.

1. Плавный переход магнитной восприимчивости от кюри-вейссовского режима к паулиевскому при понижении температуры, максимум в теплоемкости и линейный ее ход при низких температурах являются характерными признаками наличия кондо-флуктуаций в соединениях редкоземельных элементов Се и Yb, в которых $4f$ -уровень достаточно близок к фермиевскому. Разумеется, указанные аномалии в поведении интегральных характеристик являются далеко не достаточными для однозначного заключения о тяжелофермионности конкретного вещества. Аналогичное поведение теплоемкости и статической восприимчивости на самом деле могут быть наблюдаемы и в системах с устойчивыми локальными моментами вблизи спин-стекольного магнитного перехода. Возможные примеры систем, где спин-стекольный магнитный переход может имитировать "тяжелофермионное" поведение в таком смысле, указывались в работе [1].

Сходное поведение термодинамических величин кондо-систем и спиновых стекол (а также и спиновых RVB-систем с ближним порядком [2]) не является удивительным. Становится ясным (см, например, работу [3]), что энтропия кондо-систем при температурах ниже кондовских T_K имеет почти чисто спиновую природу. При этом линейная теплоемкость может быть получена путем описания спиновой подсистемы в виде набора двухуровневых систем с распределенной в масштабе $\Delta E \leq k_B T_K$ разностью энергетических уровней [4], что сильно напоминает ситуацию в спиновых стеклах, где низкотемпературная (ниже температуры замерзания T_m) теплоемкость определяется фрустрированными спинами в случайных полях, распределенными в интервале $\omega < k_B T_m$ (k_B - постоянная Больцмана). Надежная идентификация конкретной системы возможна только на основании знания динамических характеристик локального момента. Эффективным способом в этом смысле является ЭПР; так, если наблюдается ЭПР-сигнал от $4f$ -электронов, это однозначно исключает тяжелофермионное поведение, так как при наличии квантовых кондо-флуктуаций с частотой $\omega \sim k_B T_m$ наблюдение ЭПР невозможно из-за уширения линии резонанса.

В данной работе сообщается, что в кубической фазе гидрида иттербия YbH_x ($2,25 < x < 2,6$), которая ранее предполагалась немагнитной тяжелофермионной системой на основании данных по теплоемкости и магнитной восприимчивости [5], наблюдается сигнал ЭПР на ионах иттербия. Данные ЭПР указывают также на наличие магнитного перехода при температурах ~ 8 К.

2. Дигидрид YbH_2 имеет орторомбическую структуру, основное состояние иттербия – двухвалентное немагнитное [6]. Добавление водорода переводит систему в кубическую фазу при $x > 2,25$, в которой наблюдается кюри-вейссовская зависимость при высоких температурах, насыщение восприимчивости и широкий максимум в теплоемкости [5] в области ~ 4 К. Подобное влияние допирования водородом связывается с тем, что при структурном переходе происходит резкое изменение положения $4f$ -уровня относительно фермиевского, в результате которого возникает магнитный момент.

3. Образцы $\text{YbH}_{2,37}$, $\text{YbH}_{2,41}$, $\text{YbH}_{2,55}$ и $\text{YbH}_{2,57}$ были получены прямым взаимодействием газообразного водорода с металлом (чистота $\text{Yb} \sim 99,9\%$) и представляли собой порошок, запечатанный в тонкостенную кварцевую ампулу. Рентгеноструктурный анализ показал, что все они однофазны и имеют кубическую гранецентрированную решетку. Измерения ЭПР проводились в трехсантиметровом диапазоне длин волн на спектрометре ВЕР-418"с" фирмы "BRUKER" в интервале температур $1,6 \div 300$ К.

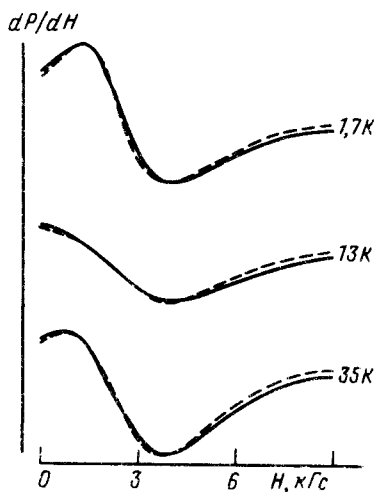


Рис.1

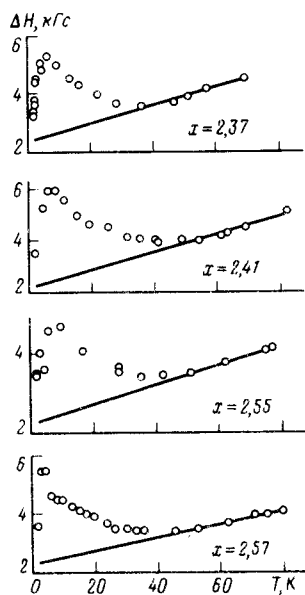


Рис.2

Рис.1. Спектры ЭПР образца $\text{YbH}_{2,37}$ при различных температурах. Пунктиром показана рассчитанная в соответствии с формулой (1) форма линии

Рис.2. Температурная зависимость ширины линии ЭПР гидридов YbH_x при различном содержании водорода

Во всех исследованных образцах в спектрах ЭПР регистрировалась широкая интенсивная линия поглощения. На рис.1 представлены типичные примеры этих линий. Наблюдаемые сигналы удается описать лоренцевой формой линии в соответствии с выражениями, записанными для случая, когда $\Delta H \geq H_0$, где ΔH – ширина линии, H_0 – резонансное поле [7]:

$$dP/dH \sim d(\chi'' + \alpha\chi')/dH, \quad (1)$$

$$\chi' = (\chi_0/2)[A^+ + A^- + H(a^-A^- - a^+A^+)/\Delta H],$$

$$\chi'' = (\chi_0 H_0/2\Delta H)(A^- + A^+),$$

$$A^\pm = [1 + (a^\pm/\Delta H)^2]^{-1}, \quad a^\pm = (H_0 \pm H)/\Delta H.$$

Здесь H – величина внешнего магнитного поля, χ_0 – статическая магнитная восприимчивость. Присутствие примеси дисперсии χ' в формуле (1) является характерным признаком проводящих систем [8]. Коэффициент α определяется конкретным распределением СВЧ поля; в исследованных образцах его величина оказалась равной $\sim 0,2$.

На рис.2 приведены температурные зависимости ширины линии ΔH , полученные путем моделирования спектров в соответствии с выражением (1). В области температур выше 90 К линия сильно уширялась и анализировать ее не представлялось возможным. Резонансное поле во всех образцах оказалось равным $(2,0 \pm 0,1)$ кГс и практически не зависело от температуры. Это значение соответствует g -фактору, равному 3,4, который близок к g -фактору иона Yb^{3+} в кубическом кристаллическом поле 3,428. Поведение ширины линии в области температур $T > 40$ К описывается линейным соотношением $\Delta H = \Delta H_{res} + bT$ (прямые линии на рис.2), что указывает на наличие корринговского механизма релаксации, характерного для локализованных магнитных моментов в металлах; ΔH_{res} – остаточная ширина линии, определяемая дипольными взаимодействиями и разбросом g -факторов. Температурная зависимость интегральной интенсивности, которая определяется магнитной восприимчивостью, имеет кюри-вейссовский характер при $T > 15$ К, с отрицательной температурой Кюри, которая меняется в пределах $10 \text{ К} \leq |\theta| \leq 20 \text{ К}$ в зависимости от содержания водорода. При температурах $T \leq 10$ К интенсивность линии ЭПР слабо зависит от температуры. Из изложенных результатов со всей очевидностью следует, что ионы иттербия в исследованных образцах имеют хорошо определенный локальный магнитный момент и обнаруженные ранее [5] аномалии в теплоемкости в кубических соединениях YbH_x в области температур ~ 4 К не связаны с кондо-флуктуациями. Верхний предел для эффективной температуры спиновых флуктуаций может быть оценен из ширины линии ЭПР как $T_K < g\beta\Delta H/k_B \sim 1 \text{ К}$ (β – магнетон Бора).

4. Как видно из рис.2, при $T < 40$ К температурная зависимость ширины линии ЭПР отклоняется от линейного закона и линия начинает уширяться. Такое поведение является характерным признаком появления ближнего спинового порядка в системе. При дальнейшем понижении температуры ширина линии достигает максимума при $T = T_M$ и далее резко сужается. В области температур $T_M < T < 30$ К рост ширины линии происходит по степенной зависимости $\Delta H(T) - \Delta H_{res} - bT \sim \{(T - T_M)/T_M\}^{-P}$ с критическим индексом $P \simeq 0,4$. Эти факты, а также плавный выход интегральной интенсивности ЭПР-сигнала на плато при $T \sim 10$ К указывает на переход в магнитоупорядоченную фазу

антиферромагнитного характера. При этом резонансное поглощение в упорядоченной фазе наблюдается примерно на той же частоте, что и сигнал ЭПР в парамагнитной области, что свидетельствует о малости полей анизотропии. Хотя данные результаты не позволяют сказать определенно о характере магнитного порядка, монотонное поведение интенсивности и параметров линии ЭПР, по-видимому, означает "мягкое" замерзание спиновой системы в стекольное состояние при $T \leq T_M$. Действительно, хотя ионы иттербия формально занимают регулярную кубическую решетку, в исследованной системе имеется сильный беспорядок, связанный со случайным распределением водорода по тетраэдрическим и октаэдрическим межузельным позициям в нестехиометрическом YbH_x . Дефектный характер локального водородного окружения иона иттербия может привести к случайному разбросу обменного взаимодействия между последними по величине и знаку, а также к хаотизации направлений легкого намагничивания, что является благоприятной предпосылкой для образования спинового стекла.

5. Таким образом, данные ЭПР обнаруживают наличие устойчивых магнитных моментов у ионов иттербия в кубической фазе YbH_x и позволяют сделать вывод, что "тяжелофермионное" поведение в теплоемкости этой системы [5] на самом деле связано, по-видимому, со спин-стекольным переходом. Необходимо отметить, что сказанное не исключает возможности того, что определенная часть ионов иттербия вследствие различия в локальном водородном окружении находится либо в двухвалентном, либо в промежуточно-валентном состоянии, так как хорошо определить абсолютную величину интегральной интенсивности сигнала ЭПР не удастся из-за неопределенности в величине скин-слоя. Более того, метод смещения рентгеновских линий дает [9] среднюю по образцу валентность иттербия 2,66; авторы работы [9] полагают, что в кубической фазе YbH_x имеет место негомогенная смесь ионов Yb^{2+} и Yb^{3+} . Наши ЭПР-данные не противоречат этой картине, а обнаруженное магнитное упорядочение ионов Yb^{3+} определенно означает, что на самом деле речь идет о чисто статической смеси, ибо при наличии заметных (с частотой $\geq k_B T_M$) квантовых или активационных процессов миграции валентного состояния по решетке следовало бы скорее ожидать не магнитного, а спин-жидкостного RVB-основного состояния.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-2578).

-
1. K.A.Gschneidner, Jr., J.Tang, S.K.Dhar, and A.Goldman, *Physica B* **163**, 507 (1990).
 2. P.W.Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
 3. Ю.Каган, К.А.Кикоин, Н.В.Прокофьев, *Письма в ЖЭТФ* **56**, 221 (1992).
 4. Г.М.Элиашберг, *Письма в ЖЭТФ* **45**, 28 (1987).
 5. M.Drulis, H.Drulis, and B.Stalinski, *J. Less-Common Met.* **141**, 207 (1988).
 6. A.Mustachi, *J. Phys. Chem. Solids* **35**, 1447 (1974).
 7. M.A.Garstens, *Phys. Rev.* **93**, 1228 (1954).
 8. N.Bloembergen, *J.Appl. Phys.* **23**, 1379 (1952).
 9. И.А.Смирнов и др., *ФТТ* **34**, 525 (1992).