

Особенности основного состояния в CeAl_3

В. Н. Лазуков⁺¹⁾, П. А. Алексеев⁺, Н. Н. Тиден⁺, К. Бек^{*}, Е. С. Клементьев^{+*}, И. П. Садиков⁺

⁺Российский научный центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

^{*}Laboratory of neutron scattering, ETHZ, Villigen, PSI, Switzerland

Поступила в редакцию 12 июля 2002 г.

Для выяснения особенностей основного состояния тяжелофермионного соединения CeAl_3 изучена зависимость интенсивности квазиупругого магнитного рассеяния нейтронов от температуры (3 К–60 К) и переданного импульса (0.3 \AA^{-1} – 2.3 \AA^{-1}) на поликристаллическом образце. Экспериментально обнаружены осцилляции интенсивности КУМРН от переданного импульса, что является свидетельством магнитных корреляций в f -электронной подсистеме, существующих в достаточно широком диапазоне температур.

PACS: 71.45.Gm, 71.70.Ch, 75.30.Mb

В тяжелофермионных соединениях масштаб взаимодействия $4f$ -электронов с кристаллическим электрическим полем (КЭП), как правило, заметно больше, чем гибридизации с электронами проводимости. Поэтому обычно предполагается, что гибридизация только усиливает релаксацию возбуждений КЭП и проявляется в физических свойствах лишь при низких температурах, сравнимых с температурой Кондо (T_K). Так, например, в недавней работе [1] утверждается, что влияние кристаллического поля на спектр магнитных возбуждений ограничивается случаем, когда расщепление в КЭП $-\Delta_{\text{CF}} \leq T_K$, в случае же $\Delta_{\text{CF}} > T_K$ единственным энергетическим масштабом является T_K , то есть роль эффектов КЭП сводится к изменению кратности вырождения основного состояния. Однако детальные исследования спектров магнитных возбуждений CeAl_3 ($T_K \approx 0.5 \text{ мЭВ}$) [2] (где реализуется случай $\Delta_{\text{CF}} \gg T_K$) при низких температурах с помощью неупругого рассеяния нейтронов позволили обнаружить сильные изменения как интенсивности, так и энергии перехода между основным и первым возбужденным уровнями основного мультиплета, расщепленного в КЭП. Оказалось, что при уменьшении температуры ниже величины масштаба Δ_{CF} энергия перехода ($E \approx 6 \text{ мЭВ}$) начинала постепенно увеличиваться и при дальнейшем понижении температуры до $T \sim T_K$ этот рост усиливался. При этом интенсивность этого перехода оставалась приблизительно постоянной, а при $T \sim T_K$ даже уменьшалась, несмотря на очевидный рост заселенности основного состояния при понижении температуры.

Другая особенность спектров магнитных возбуждений CeAl_3 – наличие заметного квазиупругого рассеяния при низких температурах [3], несмотря на то, что основное состояние в КЭП для CeAl_3 – дублет $|\pm 3/2\rangle$, в котором квазиупругий переход запрещен в дипольном приближении. Наблюдаемый при $T < T_K$ квазиупругий сигнал в тяжелофермионных (ТФ) системах обычно рассматривается как следствие релаксации спинов $4f$ -электронов на электронах проводимости за счет эффекта Кондо. То есть можно считать, что квазиупругое рассеяние при $T < T_K$ связано не с магнитодипольными переходами между состояниями $4f$ -электронов в КЭП, а отражает свойства нового, так называемого кондовского основного состояния. Тем не менее, в работе [2] упомянутые выше отклонения от одноионного режима наблюдались при существенно более высоких температурах, то есть с $T \sim \Delta_{\text{CF}}$, хотя собственно квазиупругий сигнал детально не изучался.

Таким образом, упомянутые экспериментальные результаты противоречат довольно распространенному описанию особенностей спектра магнитных возбуждения в ТФ системах, при котором используется единственный характерный энергетический масштаб $-T_K$. В связи с этим представляется интересным детально изучить температурную и импульсную зависимости интенсивности квазиупругого магнитного рассеяния нейтронов в интервале температур $T_K \leq T \leq \Delta_{\text{CF}}$. Это позволит лучше понять роль как кондовского взаимодействия, так и эффектов КЭП при формировании основного состояния ТФ систем.

Поликристаллические образцы CeAl_3 и LaAl_3 были те же, что и в работе [2]. Измерения спектров

¹⁾e-mail: lvn@issph.kiae.ru

ров квазиупругого магнитного рассеяния нейтронов (КУМРН) поликристаллического образца CeAl_3 проводились на спектрометре по времени пролета FOCUS на источнике нейтронов SINQ (Институт Пауля Шерера, Швейцария) в интервале температур 3–60 К. Начальная энергия нейтронов – $E = 3.1$ мэВ, разрешение на упругой линии – $\Delta E = 0.06$ мэВ. Интервал углов рассеяния нейтронов (2θ) составлял 10° – 130° , что соответствовало значениям переданных нейтронами импульсов ~ 0.3 – $\sim 2.3 \text{ \AA}^{-1}$. Вес образцов – ~ 20 г каждый. Пропускание образца CeAl_3 было лучше 90%. Характерное время измерений при одной температуре ~ 20 ч. Для оценки фоновое рассеяние и фона измерялся образец LaAl_3 . Сравнение нейтронных спектров CeAl_3 и LaAl_3 показало, что фоновая компонента в CeAl_3 в данных экспериментальных условиях существенно меньше вклада от магнитного рассеяния и в дальнейшем она не учитывалась. Эффективность детекторов калибровалась по ванадиевому стандарту.

Некоторые из полученных экспериментальных спектров при $T = 3$ К представлены на рис.1. Приведенные средние значения углов (переданных импульсов) получены усреднением в интервале $\pm 5^\circ$

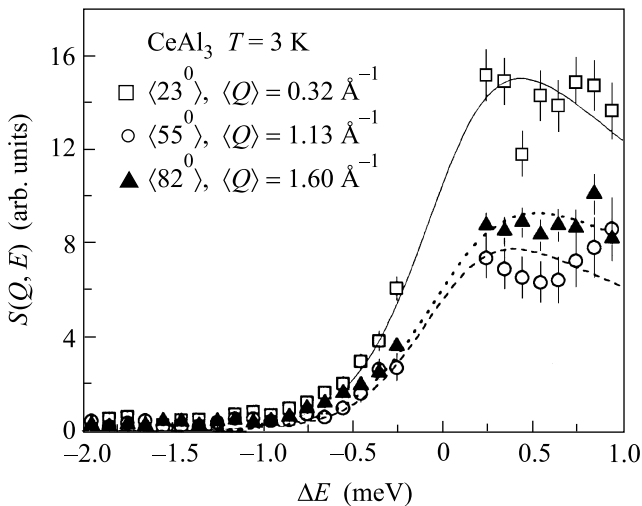


Рис.1. Спектры КУМРН для CeAl_3 при температуре $T = 3$ К для средних значений переданных импульсов (Q): \square – 0.32 \AA^{-1} , \circ – 1.13 \AA^{-1} , \blacktriangle – 1.60 \AA^{-1} . Линии – результаты подгонки

($\pm 0.1 \text{ \AA}^{-1}$). Следует обратить внимание, что интенсивность КУМРН меняется немонотонно с увеличением переданного импульса (сравните $Q = 1.13 \text{ \AA}^{-1}$ и 1.60 \AA^{-1}). Для получения температурной зависимости интенсивности КУМРН суммировались спектры, полученные под всеми углами. Форма линии КУМРН аппроксимировалась функцией Лоренца, умноженной

на температурный фактор. Экспериментальные данные для температурной зависимости ширины квазиупругого рассеяния хорошо совпадают с результатами [3] и представлены на рис.2а.

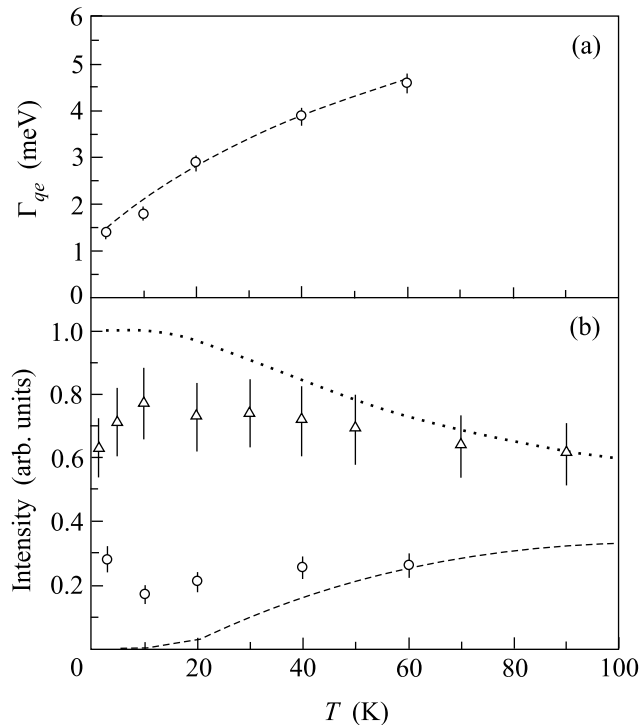


Рис.2. Температурные зависимости: (а) ширины на полувысоте (Γ_{qe}) КУМРН в CeAl_3 (\circ), пунктирная линия – данные работы [3]; (б) Интегральной интенсивности: \circ – КУМРН и Δ – НМРН [2]. Пунктирные и штриховые линии на (б) – расчет в одноионном приближении. Детали – см. текст

Интегральная интенсивность КУМРН была рассчитана на основе экспериментальных значений ширины и амплитуды лоренцевской функции. Так как ширина КУМРН меняется с температурой, то интегральная интенсивность была получена при интегрировании спектра в энергетическом интервале от -2 мэВ до $E = 10 \Gamma(T)$ (где $\Gamma(T)$ – ширина спектра на полувысоте), то есть от 15 до 40 мэВ, в зависимости от температуры. Найденная температурная зависимость представлена на рис.2б. Здесь же приведены данные работы [2] для интенсивности перехода $|\pm 3/2\rangle \rightarrow |\pm 1/2\rangle$ и результаты расчета температурной зависимости интенсивности неупругого и квазиупругого пиков, полученные с учетом вероятностей переходов и изменения заселенности уровней при измерении температуры в рамках одноионного рассмотрения эффектов КЭП. Поскольку измерения не абсолютизировались, для сравнения результатов работы [2] с полученными значениями использовалась

привязка полученных данных к расчету. Привязки осуществлялись по результатам, полученным при самой высокой температуре ($T = 60$ К для КУМРН).

Следует обратить внимание, что отклонения от одноионного расчета, как в случае неупругой, так и квазиупругой компонент, наблюдаются при температурах, соизмеримых с Δ_{CF} , и заметно усиливаются при температурах масштаба $2T_K$. Обращает на себя внимание тот факт, что уменьшение интенсивности квазиупругой компоненты, то есть происходит формирование нового основного состояния. Таким образом, можно заключить, что это новое основное состояние начинает формироваться не при $T \sim T_K$, а при $T \sim \Delta_{\text{CF}} \gg T_K$.

Наблюдаемые аномалии в поведении температурной зависимости интенсивности перехода $|\pm 3/2\rangle \rightarrow |\pm 1/2\rangle$ были объяснены в работе [4] специфическим для кондо-систем сильно анизотропным обменным взаимодействием, которое понижает симметрию решетки за счет динамического искажения окружения редкоземельного иона и, таким образом, изменяет симметрию гамильтониана основного состояния f -электрона. Результатом этого является изменение “чистых” состояний в КЭП на смешанные, так, например, состояние $|\pm 3/2\rangle$ переходит в $|\alpha|\pm 3/2\rangle + |\beta|\pm 1/2\rangle$, вследствие чего и уменьшается интенсивность рассматриваемого перехода. Аналогичным образом можно, видимо, объяснить и аномальное поведение температурной зависимости КУМРН (за счет “примесного” состояния $|\pm 1/2\rangle$).

Исследование импульсной зависимости интенсивности КУМРН проводилось для спектров, полученных при температурах $T = 3$ К, 10 К и 40 К (см. рис.3). Пунктирной линией показан формфактор иона Ce^{3+} . При температуре $T = 3$ К наблюдаются осцилляции интенсивности в зависимости от переданного импульса с периодом $\sim 1.0 \pm 0.2 \text{ \AA}$. При повышении температуры ($T = 10$ К) амплитуда осцилляций заметно уменьшается, а при $T = 40$ К уже сопоставима с погрешностью измерений. Таким образом, получено экспериментальное свидетельство наличия $f-f$ корреляций, существующих в достаточно широком диапазоне температур. В одноионный же режим ионы Ce переходят при температурах, больших или ~ 40 К, что значительно выше T_K . Следует отметить, что область температур, где существуют осцилляции интенсивности, то есть формфактора, совпадает с областью температур, при которых наблюдаются отклонения от “однoионности” в параметрах неупругого пика.

Один из возможных способов описания основного состояния системы в ТФ состоит в представле-

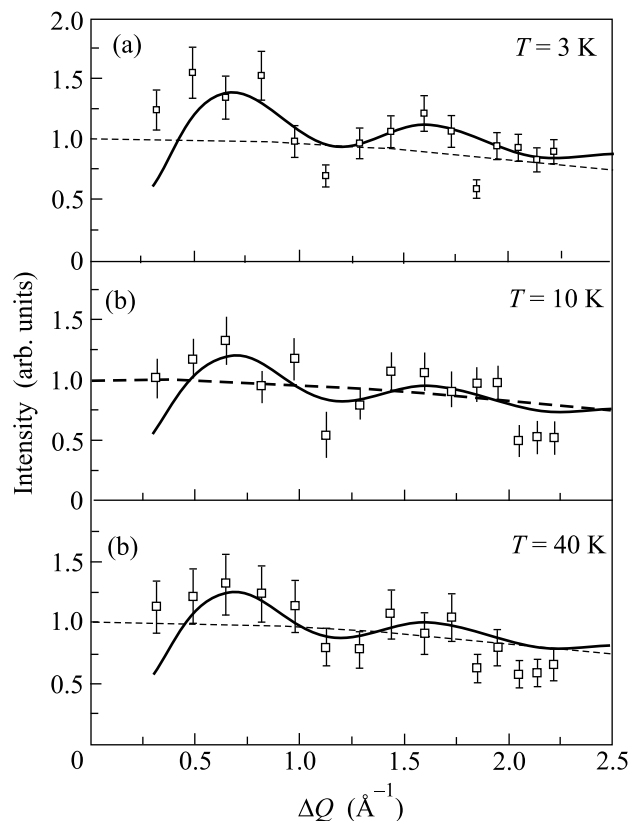


Рис.3. Импульсная зависимость интенсивности КУМРН для CeAl_3 , полученная при $T = 3$ К, 10 К и 40 К. Пунктирная линия – формфактор Ce^{3+} . Сплошная линия – результаты расчета по соотношениям из модели [7] с расстоянием между ионами $\text{Ce} - d = 6.55 \text{ \AA}$

нии его как состояния типа спиновой жидкости (СЖ) с резонирующими валентными связями (РВС) [5, 6]. Основная особенность состояния РВС характеризуется трансформацией при низких температурах системы локализованных спинов в полузаполненную зону спиновых возбуждений шириной порядка T_K и описанием возбуждений СЖ статистикой Ферми [7]. Результаты вычислений на основе этой модели [7] предсказывают появление осцилляций в зависимости интенсивности КУМРН от переданного импульса, которые “выживают” даже в поликристаллических образцах. Период осцилляций в модели связан с расстоянием между ионами церия ($\kappa = 2\pi/d$, где κ – период осцилляций, а d – расстояние между ионами, формирующими РВС). В результате аппроксимации экспериментальных данных соотношениями из [7] оказалось, что наилучшее описание эксперимента достигается при расстоянии $d = (6.5 \pm 1.3) \text{ \AA}$ (см. рис.3, сплошная линия), которое соответствует расстоянию между ионами Ce, равному параметру ре-

шетки **a**. Таким образом, на основании модели [7] оказывается, что ионы с РВС располагаются в узлах гексагональной кристаллической решетки вдоль направления **a**.

Итак, основными результатами данной работы являются, во-первых, наблюдение взаимосвязи изменения интенсивностей неупругой и квазиупругой составляющих спектра магнитных возбуждений и, во-вторых, были обнаружены спиновые корреляционные эффекты в ТФ соединениях в достаточно широком диапазоне температур ($\sim \Delta_{CF}$), значительно усиливающиеся при температурах $\sim T_K$. Это позволяет утверждать, что в ТФ системе температурная эволюция спектра магнитных возбуждений определяется не одним, а двумя физически значимыми энергетическими параметрами: T_K и Δ_{CF} . Следует отметить, что полученные результаты не противоречат описанию основного состояния системы с ТФ как состояния типа СЖ с резонирующими валентными связями и спектром возбуждений СЖ, подчиняющимся статистике Ферми [6].

Авторы выражают свою благодарность А. С. Мищенко за плодотворные дискуссии и ценные замечания и D. Rubio за помощь в проведении измерений. Работа поддерживается грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 00-15-96712 и ГНТП "Актуальные направления в физике конденсированных сред".

1. A. Tomiyama, S. Suga, and A. Okiji, Phys. Rev. **B63**, 024407 (2000).
2. P. A. Alekseev, W. Buhrer, V. N. Lazukov et al., Physica **B217**, 2416 (1996).
3. A. P. Murani, K. Knorr, K. H. J. Buschow et al., Sol. St. Comm. **36**, 523 (1980).
4. А. С. Мищенко, Письма в ЖЭТФ **66**, 460 (1997).
5. G. Baskaran, Z. Zou, and P. W. Anderson, Sol. St. Comm. **63**, 973 (1987).
6. К. А. Kikoin, М. N. Kiselev, and A. S. Mischenko, ЖЭТФ **85**, 399 (1997).
7. А. С. Мищенко, Письма в ЖЭТФ **68**, 480 (1998).