

Исследование тяжелофермионного соединения CeRu_2Si_2 методом малоуглового рассеяния нейтронов

Г. П. Копица¹⁾, С. В. Григорьев, В. В. Рунов, С. В. Малеев, В. М. Гарамус⁺, А. Г. Яшенкин

Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова РАН, 188300 Гатчина Ленинградской обл., Россия

⁺GKSS Research Centre D-21502 Geesthacht, Germany

Поступила в редакцию 11 мая 2005 г.

Проведено исследование монокристалла CeRu_2Si_2 методом малоуглового рассеяния нейтронов (SANS) с целью “прямого” наблюдения нейтронного рассеяния на тяжелофермионных (ТФ) квазичастицах при низких температурах. В ходе эксперимента обнаружено рассеяние нейтронов при $T = 0.85$ К в диапазоне переданных импульсов $q \leq 0.04 \text{ \AA}^{-1}$, которое интерпретируется как орбитальная часть магнитного рассеяния на ТФ квазичастицах. Было установлено, что включение магнитного поля $H = 1$ Тл приводит как к увеличению наблюдаемого рассеяния, так и к его анизотропии относительно направления поля. Кроме того, при измерениях в магнитном поле было обнаружено дополнительное рассеяние в диапазоне $q > 0.04 \text{ \AA}^{-1}$, которое хорошо описывается лоренцианом и интерпретируется как магнитное рассеяние нейтронов на флуктуациях спиновой плотности с радиусом корреляций $R_c \approx 30 \text{ \AA}$.

PACS: 61.12.Ex, 71.27.+a

В теоретических работах [1–3] показано, что орбитальная часть амплитуды магнитного рассеяния нейтронов содержит член сингулярный при $q \rightarrow 0$:

$$F_{\text{sing}} = -ir \frac{\sigma [\mathbf{q} \times \mathbf{p}]}{q^2}, \quad (1)$$

где $r = |\gamma| e^2/mc^2 = 5.4 \cdot 10^{-13}$ см и $\gamma = -1.91$ – магнитный момент нейтрона в ядерных магнетонах; σ – вектор Паули, $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$ – переданный импульс нейтрона (\mathbf{k}_i и \mathbf{k}_f – импульсы нейтрона до и после рассеяния, соответственно) и \mathbf{p} – оператор импульса электрона. В результате должно наблюдаться малоугловое рассеяние нейтронов на электронах проводимости, сечение рассеяния которого имеет вид [1–3]

$$\Sigma(q) = \frac{3n_0 r^2 k_i N}{2p_F \vartheta V} \left(\frac{m^*}{M_n} \right)^2 \begin{cases} 1; & 2E_n \vartheta \gg T \\ T/2E_n \vartheta; & 2E_n \vartheta \ll T \end{cases} \quad (2)$$

где N – число элементарных ячеек в объеме V рассеивателя, n_0 – число электронов проводимости, приходящихся на ячейку; m^* – эффективная масса электронов и M_n – масса нейтрона; p_F – импульс Ферми, $\vartheta \ll 1$ – угол рассеяния, T – температура рассеивателя и E_n – энергия нейтрона. Как следует из (2), величина рассеяния определяется фактором $(m^*/M_n)^2$, который для обычных металлов порядка $10^{-5} \div 10^{-6}$, и нейтрон-электронное рассеяние пренебрежимо мало. Однако для тяжелофермионных (ТФ) соединений $m^* \approx 100m_e$ [4] и $(m^*/M_n)^2 \sim 10^{-2}$. В таком

случае данное рассеяние может быть зарегистрировано. Кроссовер от одного режима рассеяния к другому должен наблюдаться при $\vartheta_c \cong T/2E_n$ и связан со следующим: при $2E_n \vartheta \ll T$ рассеяние происходит на термически возбужденных квазичастицах, а при $2E_n \vartheta \gg T$ температура не играет роли.

Если на электроны (подвижные носители заряда) в металле действует однородное магнитное поле \mathbf{H} , то выражение (1), в силу градиентной инвариантности [5], следует переписать как

$$F_{\text{sing}} = -ir \frac{\sigma [\mathbf{q} \times (\mathbf{p} - \frac{\varepsilon}{c} \mathbf{A}_q)]}{q^2}, \quad (3)$$

где \mathbf{A}_q есть фурье-образ векторного потенциала поля $\mathbf{A} = \frac{1}{2} [\mathbf{B} \times \mathbf{r}]$, а \mathbf{B} – магнитная индукция внутри образца. Тогда, с учетом фурье-преобразования, для дополнительного слагаемого в (3) имеем:

$$F_H \propto \frac{\sigma [\mathbf{q} \times [\mathbf{B} \times \mathbf{q}]]}{q^4} = \frac{\sigma (\mathbf{B}q^2 - (\mathbf{B}\mathbf{q})\mathbf{q})}{q^4} = \frac{\sigma \mathbf{B}_\perp}{q^2} \quad (4)$$

В этом случае в сечении рассеяния возникает вклад вида

$$\Sigma_H(q) = \Sigma_0 \left(\frac{\varepsilon B_\perp}{p_F k_i \vartheta} \right)^2 \begin{cases} 2/3; & 2E_n \vartheta \gg T \\ 2T/3E_n \vartheta; & 2E_n \vartheta \ll T \end{cases}, \quad (5)$$

где $\Sigma_0 = (3n_0 r^2 k_i N / 2p_F \vartheta V) (m^*/M_n)^2$. Кроме того, как следует из (4), данное рассеяние является анизотропным и оказывается максимальным при $\mathbf{q} \perp \mathbf{B}$, а при $\mathbf{q} \parallel \mathbf{B}$ – отсутствует.

¹⁾e-mail: kopitsa@mail.pnpi.spb.ru

Рассматриваемое рассеяние очень мало, поэтому для его наблюдения необходимо, во-первых, наличие в рассеивающей системе ТФ квазичастиц с достаточно большой эффективной массой $m^* \geq 100m_e$, и, во-вторых, отсутствие в ней дополнительных источников как магнитного, так и ядерного рассеяния при температурах порядка 1 К. В настоящей работе методом малоуглового рассеяния нейтронов (SANS) выполнены измерения на монокристалле CeRu_2Si_2 с целью “прямого” наблюдения малоуглового рассеяния нейтронов на ТФ квазичастицах и исследования влияния на него магнитного поля.

1. Образцы и методика измерений. Интерметаллическая система CeRu_2Si_2 , имеющая объемноцентрированную тетрагональную (ОЦТ) структуру типа ThCr_2Si_2 с параметрами элементарной ячейки $a = b = 4.197 \text{ \AA}$ и $c = 9.797 \text{ \AA}$ [6], является типичным ТФ соединением с температурой Кондо $T_K \approx 20 \text{ К}$ и значением константы Зоммерфельда $\gamma = C/T \approx 350 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2}$ вблизи $T \approx 1 \text{ К}$ [7, 8]. CeRu_2Si_2 является парамагнетиком (ПМ) вплоть до $T \approx 20 \text{ мК}$ [9]. В то же время, эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов на монокристаллах CeRu_2Si_2 [6, 10] показывают наличие ближних антиферромагнитных (АФМ) корреляций с длиной корреляций порядка 3 постоянных решетки при температурах $T \leq 20 \text{ К}$. Магнитное поле $H_m = 7.8 \text{ Тл}$ подавляет данные корреляции и система испытывает метамагнитный переход из ПМ в ферромагнитное (ФМ) состояние [6]. Согласно данным экспериментов по эффекту де Гааза – ван Альфена [11, 12], в этом соединении эффективная масса квазичастиц достигает $200m_e$. Исследовавшийся в нашей работе монокристалл CeRu_2Si_2 был выращен в трехдуговой печи с использованием метода Чохральского [6].

SANS измерения были выполнены на установке SANS-1 (реактор FRG1, GKSS, Геестхахт, Германия) [13], работающей в близкой к точечной геометрии. Измерения проводились на двух длинах волн $\lambda_1 = 8.1$ и $\lambda_2 = 10.5 \text{ \AA}$. Использование трех дистанций образец-детектор $SD = 0.7; 1.8$ и 4.5 м позволяло достигать в эксперименте диапазона переданных импульсов $1.1 \cdot 10^{-2} < q < 2.1 \cdot 10^{-1} \text{ \AA}^{-1}$. Рассеянные нейтроны регистрировались двухмерным позиционно-чувствительным ^3He детектором.

Образец был вмонтирован в криостат и измерения проводились при двух температурах $T = 0.85$ и 293 К . Долговременная температурная стабилизация образца была лучше чем $\simeq 0.01 \text{ К}$. Внешнее магнитное поле H , подаваемое криомагнитом, изменялось от 0 до 1 Тл. Монокристалл был ориентирован таким образом, что ось (001) была перпендикулярна как па-

дающему пучку нейтронов, так и приложенному магнитному полю H .

Исходные спектры для каждого из q -интервалов корректировались с учетом рассеяния криостатом, арматурой установки, а также фона зала с применением стандартной процедуры [14]. Полученные двухмерные спектры были приведены к абсолютным значениям путем нормировки на сечение некогерентного рассеяния нейтронов 1 мм H_2O с учетом эффективности детектора [14].

Анализируемая в данной работе низкотемпературная интенсивность рассеяния I_s определялась как превышение над ядерным рассеянием, в качестве которого принималось рассеяние образцом при комнатной температуре $T_r = 293 \text{ К}$:

$$I_s(q) = I(T, q) - I(T_r, q) \cdot R, \quad (6)$$

где $R = I(T = 0.85 \text{ К}, 0)/I(T = 293 \text{ К}, 0)$ – коэффициент трансмиссии нейтронов.

Индукцированная магнитным полем часть интенсивности рассеяния I_H определялась как

$$I_H(q) = I(H, q) - I(H = 0, q) \cdot R1, \quad (7)$$

где $R1 = I(H = 1 \text{ Тл}, 0)/I(H = 0, 0)$.

2. Результаты измерений. Импульсные зависимости сечения малоуглового рассеяния нейтронов $d\Sigma(q)/d\Omega$, измеренные при $T = 0.85 \text{ К}$ в нулевом магнитном поле и в поле $H = 1 \text{ Тл}$ для двух длин волн нейтронов $\lambda_1 = 8.1$ и $\lambda_2 = 10.5 \text{ \AA}$ приведены на рис.1. Как видно из данного рисунка, в случае нулевого поля низкотемпературное рассеяние имеет место для обоих значений λ при $q \leq q_0 \approx 0.04 \text{ \AA}^{-1}$. Это рассеяние очень мало (порядка 10^{-2} см^{-1} при $q \approx 0.015 \text{ \AA}^{-1}$), но статистически достоверно, и возрастает с уменьшением q . Оценки сечения рассеяния при $q = 0.015 \text{ \AA}^{-1}$, полученные из выражения (2) с параметрами: $n_0 = 1$, $(m^*/M_n)^2 \approx 0.012$, $N \approx 5.85 \cdot 10^{20}$, $V = 0.05 \text{ см}^3$ и $p_F = (3\pi^2 n_0 N_a / V_m)^{1/3} \approx 0.64 \text{ \AA}^{-1}$ ($N_a = 6.022 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$, $V_m = 51.7 \text{ см}^3 \cdot \text{моль}^{-1}$), дают $d\Sigma(q)/d\Omega \approx 0.6 \cdot 10^{-2}$ и $0.5 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ для λ_1 и λ_2 , соответственно. Ясно видно (рис.1), что данные оценки практически совпадают с экспериментальными значениями $d\Sigma(q)/d\Omega$.

Включение магнитного поля $H = 1 \text{ Тл}$ приводит к резкому росту сечения рассеяния и, кроме того, к появлению дополнительного рассеяния при $q > q_0$, которое имеет размытый, но ясно выраженный максимум при $q \approx 0.067 \text{ \AA}^{-1}$.

Импульсные зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, индуцированного магнитным полем, полученные с использованием выражения (6) для обоих

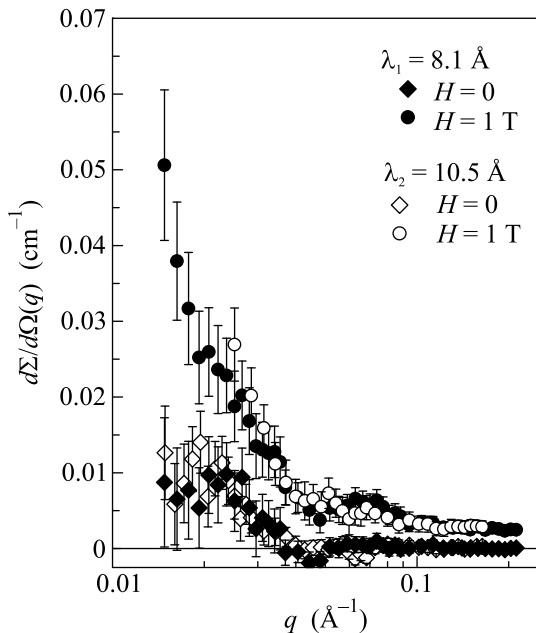


Рис.1. Импульсные зависимости сечения рассеяния $d\Sigma(q)/d\Omega$ для двух длин волн нейтронов λ , измеренные при $T = 0.85$ К в нулевом магнитном поле и в поле $H = 1$ Тл

длин волн показаны на рис.2 в двойном логарифмическом масштабе. Из рисунка хорошо видно, что в

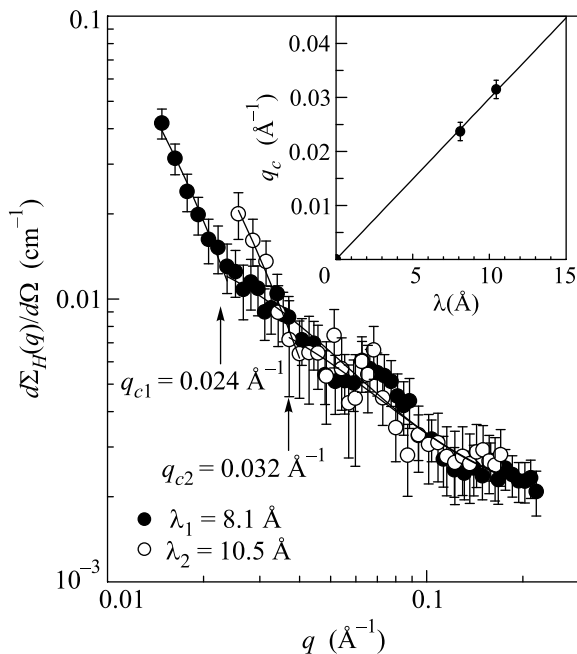


Рис.2. Импульсные зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, индуцированного магнитным полем $H = 1$ Тл, измеренные для разных длин волн нейтронов λ . Пунктирные и сплошные линии получены с использованием выражений (10) и (11), соответственно. На вставке приведены значения q_c в зависимости от λ

обоих случаях существуют два разных диапазона q , в которых $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ подчиняется разным законам рассеяния q^{-n} . В диапазоне $q \leq q_{c1,c2}$ (где $q_{c1} \approx 0.024$ и $q_{c2} \approx 0.032 \text{ \AA}^{-1}$ для λ_1 и λ_2 , соответственно, – точки перехода из одного режима рассеяния в другой) показатель степени $n \approx 4$, а в диапазоне $q \geq q_{c1,c2}$ $n \approx 2$. На вставке к рис.2 приведены значения q_c в зависимости от λ . Ясно видно, что данные значения хорошо ложатся на линейную зависимость $q_c(\lambda)$ (сплошная линия):

$$q_c = 2k \sin(\vartheta_c/2) \approx k(T/2E_n) \approx 0.0038 \cdot T\lambda, \quad (8)$$

где $k = 2\pi/\lambda$, $E_n = 81.81/\lambda^2$ и $\vartheta_c = T/2E_n$. Отметим, что оценка температуры образца, полученная из данной зависимости, оказалась равной $T_{ex} = 0.95 \pm 0.07$ К, что практически совпадает с реальной температурой образца $T = 0.85 \pm 0.01$ К.

Такое поведение сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, наряду с зависимостью q_c от E_n , в полной мере соответствует теоретически предсказанным свойствам малоуглового рассеяния нейтронов на подвижных носителях в магнитном поле (5). Необходимо отметить, что данные, представленные на рис.1 и 2, были азимутально усреднены для достижения лучшей статистической точности. Однако, как следует из (4), часть сечения нейтрон-электронного рассеяния, индуцированная магнитным полем, должна зависеть от угла α между направлением магнитного поля \mathbf{H} и переданным импульсом \mathbf{q} как $\sin^4 \alpha$.

Импульсные зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, измеренные параллельно (\parallel) и перпендикулярно (\perp) магнитному полю \mathbf{H} представлены на рис.3 для $\lambda_1 = 8.1 \text{ \AA}$. Ясно видно, что при $q < q_{c1}$ существует разница в поведении $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ для нейтронов с \mathbf{q} , параллельным и перпендикулярным магнитному полю. В данном диапазоне q индуцированное полем рассеяние демонстрирует резкий рост для $\mathbf{q} \perp \mathbf{H}$, тогда как в случае $\mathbf{q} \parallel \mathbf{H}$ оно спадает почти до нуля с уменьшением q . При $q > q_{c1}$ наблюдаемое рассеяние оказывается практически изотропным. Отметим, что аналогичная картина в поведении $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ наблюдалась и в случае $\lambda_2 = 10.5 \text{ \AA}$.

На рис.4 представлены α -зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, полученные для двух разных величин переданного импульса q . Значения q были выбраны так, что $q_1 = 0.018 \text{ \AA}^{-1} < q_c$ и $q_2 = 0.03 \text{ \AA}^{-1} > q_c$. Как видно на данном рисунке, сечение рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ зависит от угла α только при $q < q_c$, в то время как в области $q > q_c$ оно остается практически неизменным. Было найдено, что

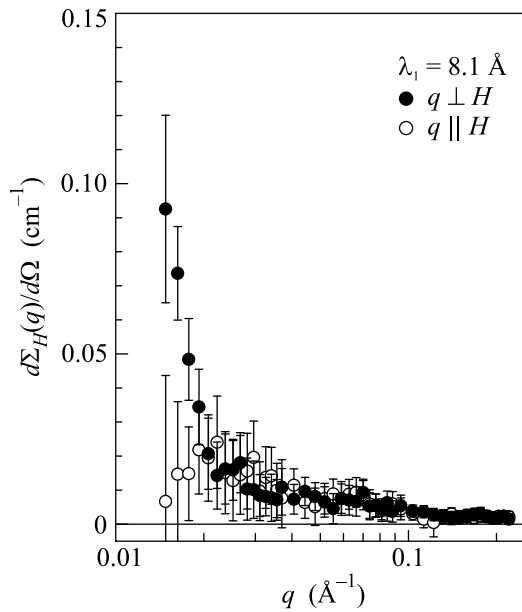


Рис.3. Импульсные зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$, измеренные параллельно (\parallel) и перпендикулярно (\perp) магнитному полю $H = 1$ Тл для $\lambda_1 = 8.1$ Å

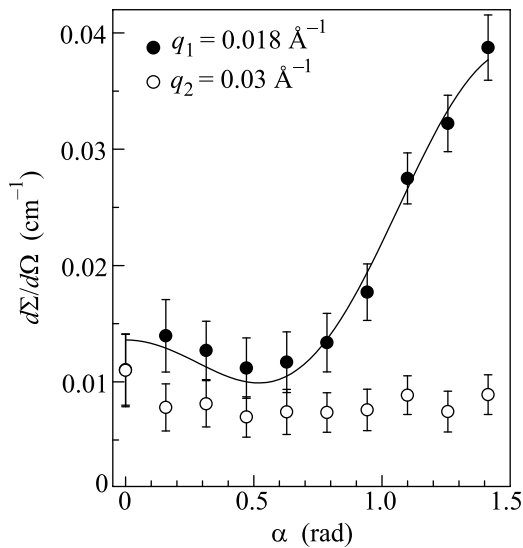


Рис.4. Зависимости сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ от угла α между направлением магнитного поля \mathbf{H} и переданным импульсом \mathbf{q} . Сплошная линия – расчет по формуле (9)

α -зависимость $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ для q_1 хорошо описывается формулой

$$\frac{d\Sigma_H(q, \alpha)}{d\Omega} = C \cdot \sin^4 \alpha - D \cdot \sin^2 \alpha + I_{iso}, \quad (9)$$

где C и D – свободные параметры, а I_{iso} – константа, которая не зависит от угла α и связана с изотропным

рассеянием на флуктуациях спиновой плотности (см. ниже).

Как было отмечено ранее, сечение $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ подчиняется разным законам рассеяния при $q < q_c$ и $q > q_c$. Было найдено, что в пределе малых q импульсная зависимость $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ для обеих длин волн хорошо описывается выражением

$$\frac{d\Sigma_H(q)}{d\Omega} = \frac{A_1}{q^4}, \quad (10)$$

где $A_1 = (A_0 \cdot q_c^4)/E_n$ – амплитуда рассеяния, а A_0 – свободный параметр, который, согласно (5), должен быть пропорционален квадрату магнитного поля.

Отметим, что данные результаты (q и α зависимости $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ при $q < q_c$) полностью согласуются с теоретическими предположениями относительно характера поведения нейтрон-электронного рассеяния в магнитном поле.

В пределе больших q поведение $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ хорошо описывается лоренцианом

$$\frac{d\Sigma_H(q)}{d\Omega} = \frac{A_2}{q^2 + \kappa^2} + I_{inc}, \quad (11)$$

где $\kappa = 1/R_c$ – обратный радиус корреляций, A_2 – свободный параметр и I_{inc} – константа, которая не зависит от q и связана с рассеянием на объектах с размерами, меньшими или порядка длины волны, падающих на образец нейтронов. Хорошо известно, что выражение (11) используется для описания магнитного рассеяния на термодинамических флуктуациях спиновой плотности, таких как, например, критические флуктуации в ферро магнетиках выше T_C [15]. Согласно [6, 10], в ПМ соединении CeRu_2Si_2 АФМ корреляции наблюдаются при температурах $T \leq 20$ К и магнитных полях $H < H_m = 7.8$ Тл. При $H = 0$ средний магнитный момент ПМ системы $M = \langle m_i \rangle = 0$ (где $m_i = \langle S_i \rangle$ – магнитный момент атома) и рассеяние на флуктуациях спиновой плотности отсутствует. Включение магнитного поля приводит к возникновению ненулевого среднего магнитного момента в системе и создает магнитный контраст $\Delta\rho = \rho_m - \langle \rho_m \rangle$ (где ρ_m и $\langle \rho_m \rangle$ – локальная и средняя спиновые плотности длин рассеяния в системе) между АФМ корреляциями с $\langle m_i \rangle = 0$ (нулевые “дырки”) и ПМ матрицей с $M \neq 0$, соответственно. Это означает, что дополнительное индуцированное полем рассеяние при $q > q_c$ может быть отнесено к спиновой части амплитуды магнитного рассеяния.

Для получения окончательных результатов выражения (10) и (11) сворачивались с функцией разрешения установки, которая аппроксимировалась функцией Гаусса. Экспериментальные данные $d\Sigma_H(q)/d\Omega$

Параметры подгонки сечения рассеяния $d\Sigma_H(q)/d\Omega$ по МНК

Длина волны $\lambda(\text{Å})$	Диапазон $q (\text{Å}^{-1})$	Закон рассеяния $\sim q^{-4}$	Лоренциан		
		$A_1(\cdot 10^{-8} \text{ см}^{-1})$	$A_2(\cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1})$	$R_c = 1/\kappa (\text{Å})$	$I_{inc}(\cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1})$
8.1	0.015 ÷ 0.023	0.24 ± 0.03	—		
	0.024 ÷ 0.22	—	1.66 ± 0.5	31 ± 12	0.167 ± 0.06
10.5	0.025 ÷ 0.032	1.07 ± 0.18	—		
	0.034 ÷ 0.17	—	1.44 ± 0.8	28 ± 12	0.205 ± 0.055

обрабатывались в диапазоне $q \in [0.015 \div 0.22] \text{ Å}^{-1}$ для λ_1 и $[0.025 \div 0.17] \text{ Å}^{-1}$ для λ_2 по методу наименьших квадратов. Полученные в результате обработки величины представлены в таблице и показаны на рис.2 сплошными и пунктирными линиями.

3. Заключение. В ходе SANS эксперимента на монокристалле CeRu_2Si_2 было обнаружено:

1. Наличие малоуглового рассеяния нейтронов при $T = 0.85 \text{ К}$ и $H = 0$ в диапазоне переданных импульсов $q \leq 0.04 \text{ Å}^{-1}$, которое, согласно теоретическим предсказаниям [3] и нашим оценкам $d\Sigma(q)/d\Omega$, может быть интерпретировано как орбитальная часть магнитного рассеяния на ТФ квазичастицах.
2. Включение магнитного поля $H = 1 \text{ Тл}$ приводит как к увеличению наблюдаемого рассеяния, так и к его анизотропии относительно направления поля.
3. Кроме того, при измерениях в магнитном поле было обнаружено дополнительное рассеяние в диапазоне $q > 0.04 \text{ Å}^{-1}$, которое хорошо описывается лоренцианом и интерпретируется как магнитное рассеяние нейтронов на флуктуациях спиновой плотности с радиусом корреляций $R_c \approx 30 \text{ Å}$.

Авторы благодарны S. Raymond за любезно предоставленный образец, А. И. Окорочкову за постоянный интерес к работе, Д. Ю. Чернышеву за полезные дискуссии.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты

04-02-16342, # 03-02-17340 и # 00-15-96814), Российских программ: “Квантовая макрофизика”, “Сильно коррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах” и “Нейтронные исследования вещества”, а также в рамках Президентского гранта “Научные школы” (проект # 1671-2003.2) и гранта Госконтракт # 40.012.1.1.1149.

1. R. J. Elliott, Proc. Roy. Soc. **235A**, 298 (1956).
2. С. Л. Гинзбург, С. В. Малеев, ФТТ **7**, 3065 (1965).
3. С. В. Малеев, УФН **172**, 617 (2002).
4. G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **56**, 755 (1984).
5. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч.1, М.: Наука, 1982.
6. L. P. Regnault, W. A. Erkelens, J. Rossat-Mignod et al., Phys. Rev. **B38**, 4481 (1988).
7. M. J. Besnus et al., Solid State Commun **5**, 779 (1985).
8. R. A. Fisher, C. Marcenat, N. E. Phillips et al., J. Low Temp. Phys. **84**, 49 (1991).
9. D. Takahashi, S. Abe, H. Mizuno et al., Physica **B329-333**, 489 (2003).
10. M. Sato et al., ISSP Report, Tokyo, 1997.
11. H. Aoki, S. Ujii et al., Phys. Rev. Lett **71**, 2110 (1993).
12. S. R. Julian, F. S. Tautz et al., Physica **199-200**, 63 (1994).
13. H. V. Shuhrmann, N. Burkhardt, G. Dietrich et al., Nucl. Instrum. Methods **A356**, 133 (1995).
14. G. D. Wignall and F. S. Bates, J. Appl. Crystallogr. **20**, 28 (1986).
15. С. В. Малеев, В. А. Рубан, ЖЭТФ **62**, 415 (1972).