

ФОРМИРОВАНИЕ ТЯЖЕЛЫХ ФЕРМИОНОВ В СИСТЕМЕ $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$

© 2014 г. М.А. АНИСИМОВ, В.В. ГЛУШКОВ, С.В. ДЕМИШЕВ, Н.А. САМАРИН,
Н.Ю. ШИЦЕВАЛОВА*, А.В. ЛЕВЧЕНКО*, В.Б. ФИЛИПОВ*, Н.Е. СЛУЧАНКО

Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, г. Москва,

*Институт проблем материаловедения им. И.М. Францевича НАНУ, г. Киев, Украина

e-mail: anisimov.m.a@gmail.com

В современной физике конденсированного состояния необычайно большой интерес вызывают так называемые соединения с тяжелыми фермионами (СТФ). Данные металлические системы характеризуются большим количеством аномалий, вызванных колоссальным ростом плотности состояний на уровне Ферми, во много раз превышающим плотность состояний в обычных металлах (см. верхнюю схему на Рис. 1, а). Как правило, СТФ образованы на основе церия (CeCu_2Si_2 , CeAl_3 , CeCu_6), урана (UB_{13} , UPt_3 , U_2Zn_{17} , UGd_{11}), нептуния (NpBe_{13} , NpSn_3) и иттербия (YbCuAl) [1-2]. Одними из наиболее простых по строению СТФ оказываются гексаборид церия (CeB_6) и твердые растворы замещения ($\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$) на его основе, которые, как и другие гексабориды, кристаллизуются в простую ОЦК-структуру типа CsCl. Примечательно, что два крайних соединения в ряду $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ – гексабориды лантана (LaB_6) и церия демонстрируют различные магнитные свойства. LaB_6 является немагнитным аналогом и используется в качестве реперной немагнитной системы для оценки магнитного вклада других гексаборидов. Напротив, в CeB_6 наблюдаются два последовательных магнитных фазовых перехода в так называемую антиферроквадрупольную фазу (или фазу II) при $T_Q \approx 3.3\text{K}$ и затем в антиферромагнитную фазу ниже $T_N \approx 2.3\text{K}$ [3]. Добавим, что природа фазы II до сих пор является объектом дискуссий. Тем самым популярность системы $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ вызвана именно возможностью дополнительного изучения механизмов основного состояния CeB_6 . Поэтому для $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ детально исследованной оказывается область $x \geq x_C \approx 0.5$, в то время как интервал малых концентраций магнитных центров остается в тени. На наш взгляд отдельного внимания заслуживает именно изучение предела малых концентраций ионов церия ($x \leq 0.1$) в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. По этой причине в настоящей работе в качестве объекта исследования выбрана система $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$, позволяющая изучить особенности формирования тяжелофермионных состояний в режиме магнитной примеси.

Заметим, что образование тяжелых фермионов традиционно объясняется в рамках модели Кондо [2], а CeB_6 принято считать концентрированной кондо-системой (см. [3]). Однако, для CeB_6 как и для $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ за последнее время накопилось множество экспериментальных результатов, противоречащих предсказаниям модели Кондо (см. текст далее). Поэтому в работе делается акцент на поиск альтернативного подхода, объясняющего формирование тяжелых фермионов в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$.

В работе проведено комплексное исследование удельного сопротивления и эффекта Холла $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$ в широком диапазоне температур 2-300K и магнитных полей $H \leq 8\text{T}$. Для исследований использовались монокристаллы высокого качества. Реальный состав концентрации магнитных ионов ($\text{Ce}_{0.011 \pm 0.001}\text{La}_{0.989 \pm 0.002}\text{B}_6$) определялся методом микрозондового анализа на установке JXA 8200 (JEOL, Япония). Подчеркнем, что одной из целей настоящего исследования также является сравнительный анализ полученных данных с результатами [3-5], опубликованными для синтезированных в ИПМ НАНУ составов $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x=0.03, 0.1, 1$).

На Рис. 1, а представлена температурная зависимость удельного сопротивления $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$. Полученные данные позволяют зарегистрировать участок роста кривой $\rho(T)$ в области низких температур $T < 20\text{K}$. Обнаружено, что удельное сопротивление не описывается логарифмической зависимостью вида $\rho(T) \sim \ln T$, как это предсказывает модель Кондо. Заметим, что проблема применимости закона $\ln T$ к анализу кривых удельного сопротивления в системах $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ прослеживается и в опубликованных ранее работах [6-7]. Напротив, данные $\rho(T)$ достаточно хорошо фитуются степенным законом $\rho(T) \sim T^{-\alpha}$ ($\alpha \approx 0.5$), который отвечает режиму слабой локализации носителей заряда (например, $\alpha = 4/11$, см. [3]). Указанный результат согласуется с выводами работ [3, 5], в которых для твердых растворов замещения $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x = 0.03, 0.1, 1$) кривая удельного сопротивления также анализировалась степенной асимптотикой $T^{-\alpha}$ с показателем степени, лежащем в интервале $\alpha \approx 0.37 \div 0.49$ (см. Табл. 1).

Переходя к описанию эффекта Холла в $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$ заметим, что в области температур $T < 10\text{K}$ обнаруживается значительный рост амплитуды R_H в сильных магнитных полях ($\Delta R_H/R_H \sim \Delta n/n_e \sim 50\%$, Рис. 1, б, аналогичный зарегистрированному ранее в твердых растворах замещения $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x = 0.03, 0.1$) в работе [4]). Одной из аномалий, наблюдаемых только в системе с малой концентрации магнитной примеси $x = 0.01$, оказывается нелинейная полевая зависимость коэффициента Холла в области гелиевых температур. Действительно, с ростом магнитного поля выше 5Т на кривых $R_H(H)$ формируется минимум, смещающийся в сторону более высоких полей с ростом температуры (Рис. 1, в). Этот эффект был обнаружен ранее в [8] на нескольких образцах $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ с малым содержанием церия ($x \leq 0.02$) и не воспроизводился для других соединений $\text{R}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($\text{R} = \text{Pr-Ho}$) с малой долей магнитной примеси $x \leq 0.05$. Тем самым данная аномалия наблюдается только в системе $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. Полученные в настоящей работе основные экспериментальные результаты приведены в Табл. 1.

Таблица 1

Параметры транспортных характеристик системы $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$,
взятые из статей [3-5] и полученные в настоящей работе (см. текст)

x	ρ_0 , мкОм·см	α	$\Delta\rho/\rho$, %	$\rho(0)/\rho(8\text{T})$	$R_H(1\text{T})$, см ³ /Кл	$\mu_H(1\text{T}, 20\text{K})$, см ² /В·с	$m^*(1\text{T})$, m_0	β
0	0.017	–	+547	0.2	$-4.0 \cdot 10^{-4}$	21600	–	–
0.01	0.42	0.5	-55	2.2	$-4.06 \cdot 10^{-4}$	842	25	1.08
0.03	0.89	0.49	-74	3.8	$-4.28 \cdot 10^{-4}$	486	51	1.22
0.1	2.43	0.47	-80	5	$-4.15 \cdot 10^{-4}$	164	161	1.23
1		0.39	-95	20	$-4.2 \cdot 10^{-4}$	12	520	0.8

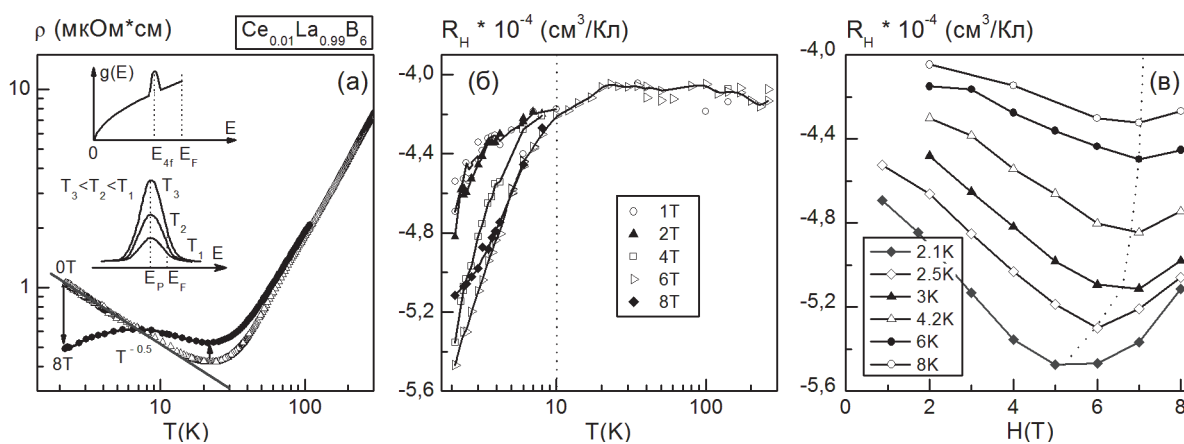


Рис. 1. (а) Температурная зависимость удельного сопротивления $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$ в магнитном поле 0 и 8Т. Сплошной линией выполнен анализ степенной зависимостью вида $\rho(T) \sim T^{-\alpha}$. На вставках схематично представлена плотность состояний $g(E)$ в СТФ (см. текст). (б) Температурная и (в) полевая зависимости коэффициента Холла R_H в $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$.

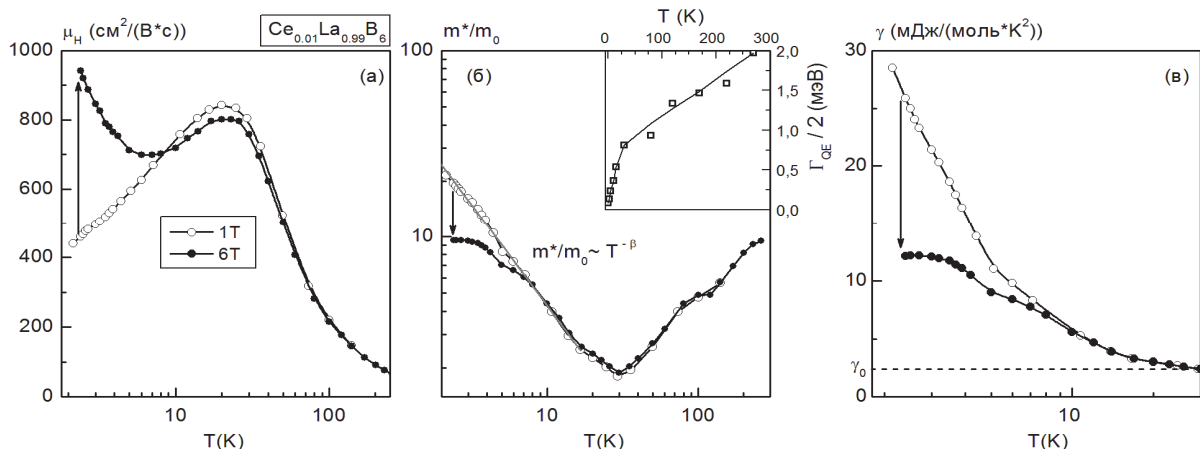


Рис. 2. Температурные зависимости (а) холловской подвижности $\mu_H(T)$, (б) эффективной массы $m^*/m_0(T)$ и (в) коэффициента Зоммерфельда $\gamma(T)$ $\text{Ce}_{0.01}\text{La}_{0.99}\text{B}_6$ в полях 1Т (○) и 6Т (●). Сплошной линией на панели (б) выполнен анализ степенной зависимостью вида $m^*/m_0 \sim T^{-\beta}$. На вставке представлена температурная зависимость полуширины квазиупругого пика $\Gamma_{QE}(T)/2$ в спектрах рассеяния нейтронов в CeB_6 , восстановленная по данным работы [12].

Сравнение аномалий транспортных характеристик, полученных в настоящей работе (Рис. 1), с данными теплоемкости, коэффициента термоэдс и поперечного магнитосопротивления, опубликованными ранее в статьях [3-5, 9], позволяет судить о наличии в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x \leq 0.1$) согласованного температурного диапазона $T < 20\text{K}$, отвечающего режиму магнитной примеси. Действительно, в этом интервале наблюдается также (i) отрицательный магниторезистивный эффект с амплитудой $-55\% \div -95\%$ (Рис. 1, а, Табл. 1) и (ii) логарифмический рост коэффициента термоэдс $S \sim -\ln T$ [3, 5]. Перечисленные аномалии (i-ii) в совокупности с результатами Рис. 1, а-б указывают на неприменимость модели Кондо к описанию системы $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. Заметим, что для концентрированного CeB_6 за последнее время также накопилось значительное число экспериментальных данных, противоречащих предсказаниям модели Кондо. Среди них особо стоит выделить обнаружение в CeB_6 магнитного резонанса [10] и открытие низкотемпературной резонансной магнитоэкситонной моды, обусловленной зонным магнетизмом [11]. В такой ситуации возникает вопрос о поиске новой парадигмы, объясняющей рост плотности состояний на уровне Ферми в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. Для интерпретации описанных выше аномалий низкотемпературного транспорта, на наш взгляд, более предпочтительным оказывается использование подхода, учитывающего формирование спин-поляронных состояний в 5d-полосе вследствие быстрых спиновых флуктуаций в непосредственной окрестности локализованных магнитных моментов церия в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. Действительно, авторами [3-5] было доказано образование спин-поляронных комплексов в $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ в области низких температур $T < 20\text{K}$. Учитывая особенности CeB_6 (см. [3]), представляется естественным предположить, что формирование тяжелых фермионов в данном случае происходит вследствие возникновения многочастичного спин-поляронного резонанса (E_P) в окрестности уровня Ферми E_F (см. нижнюю вставку к Рис. 1, а. В рамках такого подхода представляется естественным выполнить оценки некоторых параметров спин-поляронных состояний.

На Рис. 2, а приведена температурная зависимость холловской подвижности $\mu_H(T) = R_H(T)/\rho(T)$, рассчитанная в магнитном поле 1Т и 6Т. Основываясь на данных Рис. 2, а в работе выполнена оценка эффективной массы при помощи соотношения $m^* = e\tau_{\text{eff}}/\mu_H$, в котором τ_{eff} обозначает время релаксации. Для системы $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ в режиме магнитной примеси величина τ_{eff} может быть получена из полуширины $\Gamma_{QE}/2$ квазиупругого пика в спектрах рассеяния нейтронов в CeB_6 (см. вставку к Рис. 2, б. Используя соотношение $(\tau_{\text{eff}})^{-1} = \Gamma_{QE}/2\hbar$ можно определить соответственно величины времени релаксации $\tau_{\text{eff}}(2\text{K}, 1\text{T}) \approx 4.9 \cdot 10^{-12}\text{c}$ и эффективной массы $m^*(2\text{K}, 1\text{T}) \approx 25m_0$. Заметим, что найденные в работе значения m^* (Рис. 2, б) согласуются с результатами, полученными ранее для составов $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x=0.03, 0.1, 1$) в [3-5], см. Табл. 1. Тем са-

мым, увеличение концентрации магнитной примеси Ce естественным образом сопровождается ростом эффективной массы спин-поляронных комплексов. В качестве приема укажем значения эффективной массы спин-поляронных комплексов для других СТФ: $m^* \approx 24m_0$ в $Tm_{1-x}Yb_xB_{12}$, $m^*_{1,2} \approx (55-90)m_0$ в $CeAl_2$, $m^*_{1,2} \approx (45-90)m_0$ в $CeAl_3$, $m^*_{1,2} \approx (130-150)m_0$ в $CeCu_6$. В работе также выполнена оценка коэффициента Зоммерфельда γ , входящего в выражение для электронной теплоемкости $C_{el} = \gamma \cdot T$. Полученная температурная зависимость $\gamma(T)$ представлена на Рис. 2, в. Для простоты восприятия на Рис. 2, в пунктирной линией обозначена величина коэффициента $\gamma_0 \approx 2.4 \text{ мДж/мольК}^2$, определенная для немагнитного LaB_6 . Подчеркнем, что низкотемпературный ход кривой $\gamma(T)$ вызван ростом плотности состояний $g(E)$ на уровне Ферми и принимает типичный для всех СТФ вид (см. вставки на Рис. 1, а. При этом заметное уменьшение значений эффективной массы в магнитном поле 6Т, ровно как и величины коэффициента Зоммерфельда, следует связать с разрушением спин-поляронных комплексов с ростом магнитного поля.

В работе выполнено исследование удельного сопротивления и эффекта Холла $Ce_{0.01}La_{0.99}B_6$. Сравнение полученных данных с результатами, опубликованными ранее для $Ce_xLa_{1-x}B_6$ ($x=0.03, 0.1, 1$) указывает на неприменимость модели Кондо к описанию систем $Ce_xLa_{1-x}B_6$. В качестве альтернативы в работе предложен спин-поляронный подход, объясняющий образование тяжелофермионных комплексов. В качестве примера получены численные оценки эффективной массы m^* и коэффициента γ .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Stewart G.R.* Heavy-fermion systems // *Rev. Mod. Phys.* – 1984, v. 56, p. 755-787.
2. *Моцалков В.В., Брандт Н.Б.* Немагнитные кондо-решетки // *УФН.* – 1986, т. 149, с. 585-634.
3. *Sluchanko N., Bogach A., Glushkov V., Demishev S., Ivanov V., Ignatov M., Kuznetsov A., Samarin N., Semeno A., Shitsevalova N.* Enhancement of band magnetism and features of magnetically ordered state in the CeB_6 compound with strong electron correlations // *JETP* – 2007, v. 104, p. 120.
4. *Bogach A.V., Glushkov V.V., Demishev S.V., Sluchanko N.E., Shitsevalova N.Yu., Filipov V.B., Flachbart K.* Magnetic field enhancement of the Hall effect in diluted magnetic system $La_{1-x}Ce_xB_6$ ($x \leq 0.1$) // *Sol. St. Sci.* – 2012, v. 14, p. 1629-1631.
5. *Sluchanko N.E., Glushkov V.V., Demishev S.V., Samarin N.A., Bogach A.V., Gon'kov K.V., Khayrullin E.I., Filipov V.B., Shitsevalova N.Yu.* An adequate interpretation of charge transport for a dilute $La_{1-x}Ce_xB_6$ system // *Physica B* – 2008, v. 403, p. 1393-1394.
6. *Winzer K.* Giant Kondo resistivity in $(La,Ce)B_6$ // *Sol. St. Com.* – 1975, v. 16, p.521.
7. *Sato N., Sumiyama A., Kunii S., Nagano H., Kasuya T.* Interaction between Kondo states and the Hall effect of dense Kondo system $Ce_xLa_{1-x}B_6$ // *J. Phys. Soc. Jpn.* – 1985, v. 54, p. 1923-1932.
8. *Dreyer R., Winzer K.* Field dependent Hall coefficient in the Kondo-system $(La, Ce)B_6$ // *Sol. St. Commun.* – 1983, v. 46, p. 71-74.
9. *Anisimov M.A., Glushkov V.V., Bogach A.V., Demishev S.V., Samarin N.A., Gavrilkin S.Yu., Mitsen K.V., Shitsevalova N.Yu., Levchenko A.V., Filipov V.B., Gabani S., Flachbart K., Sluchanko N.E.* Specific heat of $Ce_xLa_{1-x}B_6$ in the low cerium concentration limit // *JETP* – 2013, v. 116, p. 760-765.
10. *Demishev S.V., Semeno A.V., Bogach A.V., Samarin N.A., Ischenko T.V., Filipov V.B., Shitsevalova N.Yu., Sluchanko N.E.* Magnetic spin resonance in CeB_6 // *Phys. Rev. B* – 2009, v. 80, p. 245106.
11. *Friemel G., Li Y., Dukhnenko A.V., Shitsevalova N.Yu., Sluchanko N.E., Ivanov A., Filipov V.B., Keimer B., Inosov D.S.* Resonant magnetic exciton mode in the heavy-fermion antiferromagnet CeB_6 // *Nature Com.* – 2012, DOI:10.1038/ncomms1821.
12. *Bouvet A.* Étude par diffusion inélastique de neutrons des propriétés magnétiques de bores de terre rare: CeB_6 , PrB_6 et YbB_{12} // *Ph.D. thesis* – Grenoble: L'Université Joseph Fourier – 1995, p. 1-207.