Том 148, кн. 3

Физико-математические науки

2006

УДК 537.635

ЭФФЕКТ ЭЛЕКТРОННОГО УЗКОГО ГОРЛА В ТЯЖЁЛОФЕРМИОННОМ МЕТАЛЛЕ YbRh₂Si₂

В.А. Иваньшин

Аннотация

Обсуждаются возможные обменные взаимодействия, которые приводят к аномальному сужению линии электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) кондовского иона Yb³⁺ в концентрированных соединениях с Кондо-решёткой YbRh₂Si₂ и YbIr₂Si₂ при температурах ниже 17 К. Эффект электронного узкого горла предложен в качестве возможного механизма ЭПР-релаксации.

Введение

Магнитные и транспортные свойства тройных интерметаллических соединений вида $\operatorname{RT}_2 X_2$ (R = редкоземельный (P3) ион, T = металл переходной группы, X = элемент IV или V группы) определяются магнитными моментами P3 ионов и их обменным взаимодействием, которое ослаблено электронами проводимости, а также действием кристаллического электрического поля (КЭП) на сильно коррелированные 4f-электроны. Метод электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) позволяет получить важную информацию об электронной структуре и взаимодействии между P3 ионами и электронами проводимости.

 $YbRh_2Si_2$ является одним из немногих тяжёлофермионных (T Φ) соединений с Кондо-решёткой на основе иттербия, которые проявляют свойства так называемого не-ферми-жидкостного (НФЖ) поведения (см. работу [1] и ссылки в ней). Особый интерес оно представляет из-за существования квантовой критической точки, связанной с исчезновением антиферромагнитного (АФМ) порядка с $T_N \approx 70 \, \mathrm{mK}$ в сравнительно небольшом магнитном поле $H_c = 0.06$ Т. Спектр квантовых критических флуктуаций в $YbRh_2Si_2$ очень сложен и состоит как из $A\Phi M$, так и ферромагнитных (ФМ) составляющих, причём последние доминируют в большей части фазовой T - H диаграммы для температур T ниже 10 K и полей Н менее 10 Т. Процессы магнитного упорядочения вследствие взаимодействия типа Рудермана-Киттеля-Касуи-Иосиды (RKKY) при этом конкурируют с эффектом Кондо. Аномальное поведение сопротивления, удельной теплоёмкости и магнитных свойств этого интерметаллида свидетельствует о фундаментальном нарушении ферми-жидкостной картины. Следует особо отметить, что, в отличие от сверхпроводников с НФЖ поведением на основе церия, $YbRh_2Si_2$ не переходит в сверхпроводящее состояние, вплоть до наиболее низкой достижимой температуры измерений T = 10 mK, что может быть вызвано соперничеством между A Φ M и ФМ флуктуациями. Разгадка возможной связи между квантовыми фазовыми переходами и сверхпроводимостью остаётся ключевой проблемой физики твёрдого тела [2].



Рис. 1. Температурная зависимость ширины линии ЭПР ΔH_{pp} (вверху) и эффективного *g*-фактора (внизу) в YbRh₂Si₂. Сплошной линией представлены результаты расчёта с подгоночными параметрами, указанными на врезке

1. Экспериментальные данные и их обсуждение

Эффективная температура Кондо T_K порядка 15 \div 30 К была измерена в YbRh₂Si₂ в результате изучения его транспортных и магнитных свойств [1, 2]. В рамках существующих теоретических представлений об ЭПР в кондо-системах такое значение T_K соответствует ширине линии ЭПР в пределах 25 \div 40 Т [3]. Оценка диполь-дипольной ширины линии ЭПР, обусловленной лишь спинспиновыми взаимодействиями, даёт величину приблизительно 0.16 Т [4]. Обычно именно по этой причине невозможно наблюдать сигнал ЭПР непосредственно от спинов кондо-ионов. Для того чтобы получить пригодную для измерений ширину ЭПР-поглощения, очень небольшое количество ($\sim 1 \div 2\%$) РЗ ионов со стабильными магнитными моментами внедряется в исследуемый объект в качестве парамагнитных зондов. Так как структура $\operatorname{RT}_2 X_2$ соединений, как правило, достаточно сложна, чрезвычайно трудно получить информацию о магнитных обменных взаимодействиях в этих системах из теоретических расчётов. Кроме того, характер основного состояния в них часто определяется влиянием нескольких конкурирующих микроскопических взаимодействий (эффекта Кондо, межатомных магнитных взаимодействий, кристаллического электрического поля (КЭП)). Поэтому введение парамагнитных примесей ещё более усложняет, а иногда делает и невозможным детальный теоретический анализ данных ЭПР-экспериментов. Тем более неожиданным и перспективным является обнаружение ЭПР-поглощения в неразбавленных монокристаллах YbRh₂Si₂ при температурах ниже 25 K [4, 5]. Соответствующая ширина линии ЭПР, приписанной локализованным магнитным ионам Yb³⁺ $(4f^{13},$ J = 7/2), составила величину около 30 mT при T = 1.5 К. Изучение угловых и температурных зависимостей ширины ЭПР линии ΔH_{pp} и эффективного g-фактора позволило сделать оценку температуры Кондо $T_K \approx 17$ К [6]. Температурная зависимость этих ЭПР-параметров проявляла характерные особенности, наблюдавшиеся ранее [7] для систем с кондо-решёткой (рис. 1). Механизм Корринги,



Рис. 2. Температурная зависимость g-фактора в YbRh₂Si₂, частота ЭПР-измерений 34.1 GHz [4]. Сплошной линией представлены результаты расчёта с использованием формулы (1), где $g_{\perp}^{\text{exc}} = 1.0$, $\Delta g_{\perp}^{0} = -2.58$ и $\Delta \approx 9.91$ meV

ответственный за взаимодействие электронов проводимости (ЭП) с локализованными магнитными моментами, является наиболее вероятной причиной линейной температурной зависимости ΔH_{pp} ниже 17 К, что можно связать с существованием неэкранированных моментов Yb³⁺, релаксирующих сквозь коррелированную Ферми-жидкость [8]. Наличие таких моментов, по-видимому, обусловлено тем, что их экранировка вследствие эффекта Кондо частично снимается под действием магнитного поля H, когда энергия зеемановского расщепления $g\mu_BH$ становится сопоставимой с энергией кондовских флуктуаций k_BT_K [1].

Впрочем, детальное изучение эффекта Кондо в данной системе может быть осуществлено только после экспериментов при более низких температурах T < 1.5 K. В области высоких температур T > 17 К колебания кристаллической решётки модулируют КЭП лигандов и благодаря спин-орбитальной связи обусловливают спин-решёточную релаксацию (СРР), которая приводит к существенному уширению, ослаблению и исчезновению сигнала ЭПР при температурах выше 25 К. Можно предположить, что сильно-анизотропная ЭПР-релаксация в $YbRh_2Si_2$ является результатом совместного влияния СРР ионов Yb³⁺ [4, 5] и RKKY-взаимодействия с ЭП [6], как это и наблюдалось в различных ТФ соединениях с кондо-решёткой [3]. Механизм СРР, связанный с тепловыми флуктуациями нижних уровней иона ${
m Yb}^{3+}$ в КЭП [4], способен описать и температурную зависимость g-фактора для T > 17 К (рис. 2). В этом случае магнитные диполь-дипольные и обменные взаимодействия ионов Yb³⁺ с окружением вызывают их случайные переходы с нижнего крамерсового дублета на первый возбуждённый штарковский подуровень с энергией активации $\Delta \approx 9.91$ meV. Для g-факторов вклад этого механизма может быть представлен формулой

$$g_{\alpha}(T) = g_0(\alpha) + \Delta g_{\alpha}^0 \exp(-\Delta/T), \qquad (1)$$

где $g_0(\alpha)$ и g_{α}^{exc} – эффективные g-факторы нижнего и первого возбуждённого дублетов иона Yb³⁺, $\Delta g_{\alpha}^0 = g_{\alpha}^{\text{exc}} - g_{\alpha}(0)$, $\Delta \cong 9.91$ meV. Тетрагональное КЭП расщеп-

ляет f-мультиплет $(f_{7/2})$ иона Yb³⁺ на четыре крамерсовых дублета [9], при этом величина Δ достаточно близка к положению первого возбуждённого штарковского подуровня, измеренного в YbRh₂Si₂с помощью метода неупругого нейтронного рассеяния [10].

Недавние исследования [11–13] интерпретировали YbRh₂Si₂ и родственное соединение YbIr₂Si₂ в качестве интерметаллидов со смешанной валентностью иттербия, равной приблизительно 2.9, и значительной гибридизацией между f-электронами и ЭП d-типа. Стоит подчеркнуть, что ЭПР-поглощение (как и НФЖ поведение) было обнаружено только в этих двух концентрированных ТФ сплавах на основе иттербия [14]. Отклонение валентности Yb от значения 3+ в них может только в незначительной степени объяснить аномально узкие линии ЭПР ниже T_K .

Предварительный анализ [15] показал, что в качестве возможного релаксационного механизма может быть предложен эффект электронного узкого горла (ЭУГ), который вызывает резкое уменьшение скорости релаксации спинов иттербия в интервале температур $1\div10~$ К. Режим ЭУГ возникает, если скорость релаксации ЭП к локализованным моментам иттербия δ_{eS} становится сравнимой или даже больше скорости релаксации ЭП к решётке δ_{eL} , то есть ЭП эффективнее взаимодействуют со спинами Yb, чем с колебаниями решётки.

В ходе ЭПР-измерений характерное для ЭУГ поведение приводит к увеличению коэффициента механизма Корринги $b = d\Delta H_{pp}/dT$ и к сдвигу величины g-фактора при уменьшении концентрации РЗ ионов.

Эффект ЭУГ может возникнуть при уменьшении числа локализованных спинов, добавлении других магнитных примесей, а также при изменении характера и плотности ЭП. ЭУГ наблюдался, в частности, в ЭПР-исследованиях на ионах гадолиния, введённых в виде примеси в интерметаллические соединения типа $\mathrm{Gd}_{1-x}\mathrm{La}_x\mathrm{T}_2\mathrm{Si}_2$ (T = Cu, Ni) [16]. Для процессов ЭПР-релаксации замена Cu на Ni приводила к двум последствиям: повышалась плотность состояний на уровне Ферми (то есть возрастала δ_{eS}) и изменялся *d*-характер ЭП (увеличивалась δ_{eL}). Последний эффект существенно сильнее, и в том случае, когда количество *d*-электронов у элемента переходной группы увеличивается, ЭУГ усиливается. Другими словами, спины Gd в соединении с медью GdCu₂Si₂ были сильнее связаны с системой ЭП, чем в GdNi₂Si₂.

Таким образом, обменные взаимодействия между системами $\Im \Pi$, спинов Yb, а также Rh или Ir играют решающую роль при возникновении ЭУГ в YbRh₂Si₂ или в YbIr₂Si₂ соответственно. При этом возможные горловые эффекты должны быть выражены сильнее в YbRh₂Si₂. Сценарий ЭУГ нашёл подтверждение в недавних измерениях методом ЭПР чистого по изотопному составу иттербия образца 174 YbRh $_2$ Si $_2$ и разбавленных систем вида YbRh $_2$ (Si $_{1-x}$ Ge $_x)_2$ и Yb $_{1-x}R_x$ Rh $_2$ Si $_2$ (R = La, Lu) [17–19]. Так, в 174 YbRh $_2$ Si $_2$ наблюдалась меньшая остаточная ширина линии ЭПР и менее эффективное уширение сигнала при повышении температуры по сравнению с исходным соединением. Вносимый в результате внедрения примесей La или Ge беспорядок приводил к более эффективной ЭПР-релаксации Yb. При увеличении концентрации Lu или La в $Yb_{1-x}R_x Rh_2 Si_2 \exists \Pi P$ -сигнал от иттербия также заметно уширяется (до ~ 0.3 T при температуре около 15 K в Уb_{0.9}La_{0.1}Rh₂Si₂), что является характерным признаком эффекта ЭУГ. Это означает, что локализованные магнитные моменты Yb³⁺ становятся настолько сильно связанными с ЭП, что сигнал ЭПР в разбавленных соединениях в температурном интервале 1.5 ÷ 15 К определяется, главным образом, режимом ЭУГ.

Выводы

Конкуренция между эффектами Зеемана и Кондо, флуктуации валентности иттербия и релаксация в условиях ЭУГ предложены в качестве возможных причин наблюдения обменно-суженных линий ЭПР в YbRh₂Si₂ и YbIr₂Si₂. При T < 17 К ширина линии ЭПР и g-фактор проявляют особенности, характерные для эффекта Кондо и релаксационного механизма Корринги. Процессы СРР, обусловленные первым возбуждённым штарковским подуровнем иона Yb³⁺, определяют температурную зависимость этих ЭПР-параметров в YbRh₂Si₂ при более высоких температурах. Представляется целесообразным проведение дальнейших ЭПР-экспериментов при T < 1.5 К и на более высоких частотах ЭПР-регистрации с целью обнаружения возможных резонансных линий от ионов Yb, Rh или Ir, а также изучения возможной роли ФМ флуктуаций в ЭПР-релаксации ионов Yb³⁺ ниже T_K . Нет сомнения, что опыты подобного рода будут стимулировать новые теоретические исследования по особенностям ЭПР в кондо-системах с НФЖ поведением.

Summary

 $V.A. \ Ivanshin. \ {\rm ESR} \ {\rm bottleneck} \ {\rm effect} \ {\rm in \ the \ heavy-fermion \ metal \ YbRh_2Si_2} \, .$

Possible exchange interactions which lead to the unusual narrowed electron spin resonance (ESR) linewidths of the Kondo ion Yb^{3+} in the dense Kondo lattice systems $YbRh_2Si_2$ and $YbIr_2Si_2$ below 17 K are discussed. An approach related to the electron bottleneck effect is proposed as a possible mechanism of the ESR relaxation.

Литература

- Gegenwart P., Tokiwa J., Westerkamp T., Weickert F., Custers J., Ferstl J., Krellner C., Geibel C., Kerschl P., Müller K.-H., Steglich F. High-field phase diagram of the heavyfermion metal YbRh₂Si₂ // New J. Phys. - 2006. - V. 8. - Art. 171.
- 2. Steglich F. From Kondo impurities to heavy-fermion superconductivity and quantum critical points // Physica B. 2006. V. 378-380. P. 7-12.
- Krug von Nidda H.-A., Heinrich M., Loidl A. Dynamic susceptibility in heavyfermion systems and related materials, probed by electron spin resonance // Relaxation Phenomena: Liquid Crystals, Magnetic Systems, Polymers, High-Tc Superconductors, Metallic Glasses, Chapt. 2.2. / Eds. W. Haase, S. Wrobel. – Berlin: Springer, 2003.
- Иваньшин В.А., Аминов Л.К., Куркин И.Н., Зищельшмидт Й., Штокерт О., Ферстль Ю., Гайбель К. Электронный парамагнитный резонанс ионов Yb³⁺ в концентрированном соединении с тяжёлыми фермионами YbRh₂Si₂ // Письма в ЖЭТФ. – 2003. – Т. 77. – С. 625–628.
- Sichelschmidt J., Ivanshin V.A., Ferstl J., Geibel C., Steglich F. Low temperature electron spin resonance of the Kondo ion in a heavy-fermion metal: YbRh₂Si₂ // Phys. Rev. Lett. - 2003. - V. 91. - P. 156401-1-156401-4.
- Ivanshin V.A., Zverev D.G. ESR study of the undoped heavy-fermion compound YbRh₂Si₂ // Appl. Magn. Reson. - 2004. - V. 27. - P. 87-91.
- von Spalden Y., Tsang E., Baberschke K., Schlottmann P. ESR study of the Kondo effect in Au¹⁷¹Yb and Au¹⁷⁴Yb // Phys. Rev. B. - 1983. - V. 24. - P. 24-28.
- 8. Continentino M.A. Thermodynamic approach to obtaining a highly spin-polarized strongly correlated Fermi liquid // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. P. 113108-1-113108-4.

- Ivanshin V.A., Kurkin I.N., Leushin A.M., Aminov L.K. Crystal electric field excitations in the non-Fermy liquid compound YbRh₂Si₂ // J. Supercond. and Nov. Magnetism. – 2007. – V. 20. – P. 131–133.
- Stockert O., Koza M.M., Ferstl J., Murani A.P., Geibel C., Steglich F. Crystalline electric field excitations of the non-Fermi-liquid YbRh₂Si₂ // Physica B. - 2006. - V. 378-380. -P. 157-158.
- Norman M.R. Hall number in YbRh₂Si₂ // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. P. 220405(R)-1-220405(R)-4.
- Jeong T., Picket W.E. First-principles study of the electronic structure of heavy fermion YbRh₂Si₂ // J. Phys. C. - 2006. - V. 18. - P. 6289-6297.
- Danzenbächer S., Kucherenko Yu., Vyalikh D.V., Laubschat C., Hossain Z., Geibel C., Zhou X.J., Yang W.L., Mannella N., Hussain Z., Shen Z.-X., Molodtsov S.L. Energy Dispersion of 4f-Derived Emissions in Photoelectron Spectra of the Heavy-Fermion Compound YbIr₂Si₂ // Phys. Rev. Lett. - 2006. - V. 96. - Art. 106402.
- Sichelschmidt J., Hossain Z., Ferstl J., Geibel C., Steglich F. Electron spin resonance of heavy fermion metals: probing the quantum critical regime // Abst. of the Internat. Conf. "Nanoscale properties of condensed matter probed by resonance phenomena", Kazan, Russia. - Kazan, 2004. - P. 46.
- Mironov G.I., Ivanshin V.A. Spin dynamics in YbRh₂Si₂ probed by ESR // Physica B. -2005. - V. 359-361. - P. 47-49.
- 16. Kaczmarska K. ESR bottleneck effect in dilute $\operatorname{Gd}_{1-x} \operatorname{La}_x \operatorname{T}_2 \operatorname{Si}_2$ (T = Cu, Ni) systems // J. Alloys and Compd. 1996. V. 240. P. 88–95.
- 17. Sichelschmidt J., Ferstl J., Geibel C., Steglich F. Kondo ion electron spin resonance in $YbRh_2(Si_{1-x}Ge_x)_2(x = 0.05) // Physica B. 2005.- V. 359-361. P. 17-19.$
- Wykhoff J., Sichelschmidt J., MaQuilon S., Pham L., Fisk Z., Krellner C., Ferstl J., Krug von Nidda H.-A., Geibel C., Steglich F. How many Kondo-ions are seen by the electron spin resonance in Yb_{1-x} R_x Rh₂Si₂? // Abst. of the DPG Spring Meeting, Dresden, Germany. – Dresden, 2006.– P. TT.25.81.
- Wykhoff J., Sichelschmidt J., Ferstl J., Krellner C., Geibel C., Steglich F., Fazlishanov I., Krug von Nidda H.-A. Electron spin resonance inYbRh₂Si₂: The role of the residual linewidth // Physica C. - Submitted.

Поступила в редакцию 29.08.06

Иваньшин Владимир Алексеевич – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник лаборатории магнитной радиоспектроскопии Казанского государственного университета.

E-mail: Vladimir. Ivanshin@ksu.ru