Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 3, с. 152 – 159

Магнитные свойства топологического Кондо изолятора SmB_6: локализованные магнитные моменты и парамагнетизм Паули[1)]

С. В. Демишев[+*2)], *А. Н. Азаревич*[+], *А. В. Богач*[+*], *М. И. Гильманов*[+], *В. Б. Филипов*[×], *Н. Ю. Шицевалова*[×], *В. В. Глушков*[+*]

[+]*Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия*

[*]*НИУ "Высшая школа экономики", 101000 Москва, Россия*

[×]*Институт проблем материаловедения НАНУ, 03680 Киев, Украина*

Поступила в редакцию 4 октября 2018 г.
После переработки 22 ноября 2018 г.
Принята к публикации 26 ноября 2018 г.

Исследованы магнитные свойства топологического Кондо изолятора SmB_6 в области температур $T < 10$ К в магнитном поле до 5 Тл. Анализ нелинейной части полевой зависимости намагниченности позволил установить, что нелинейный вклад в намагниченность при низких температурах в общем случае связан не только с локализованными магнитными моментами, но и с парамагнетизмом Паули поверхностных электронов. Впервые показано, что понижение температуры в области $T^* \sim 5.5{-}6$ К индуцирует переход между двумя режимами, определяющими магнитные свойства SmB_6. В диапазоне $T > T^*$ намагниченность качественно соответствует модели распада кондовских синглетов и определяется парамагнетизмом Паули, включающим линейный и нелинейный вклад в намагниченность. В области $T < T^*$ к парамагнетизму Паули добавляется возникающий пороговым образом по температуре вклад локализованных магнитных моментов. Выполненная оценка величины эффективных магнитных моментов, образующихся при $T < T^*$, дает аномально большие значения $\mu^* \sim 7{-}14\,\mu_B$, существенно превышающие $\mu^* \sim 3{-}5\,\mu_B$, ожидаемые для изолированного магнитного иона Sm^{3+}, что указывает на возможную спин-поляронную природу локализованных магнитных моментов у топологического Кондо изолятора SmB_6.

DOI: 10.1134/S0370274X19030020

1. На протяжении многих лет гексаборид самария, SmB_6, был известен в физике сильно коррелированных электронных систем как классический пример соединения с однородной промежуточной валентностью, обусловленной быстрыми ($\sim 10^{-13}$ с) зарядовыми флуктуациями между состояниями Sm^{3+} и Sm^{2+} [1]. Для объяснения необычных низкотемпературных свойств этого соединения последовательно использовались модель вигнеровского кристалла [1], экситон-поляронная модель [2] и концепция Кондо изолятора (КИ) [3]. Развитие последнего подхода привело к предсказанию того, что зонная структура на поверхности SmB_6 может обладать нетривиальным Z_2 инвариантом и, таким образом, оказаться топологически защищенной [4, 5], если средняя валентность самария превышает некоторое критическое значение 2.56 [5]. Хотя в объеме образца это условие при низких температурах нарушается [6], оно может по-прежнему выполняться в приповерхностной области размером порядка нескольких нанометров [7]. В результате возникает интригующая возможность выделения гексаборида самария в новый класс сильно коррелированных электронных систем – топологических Кондо изоляторов (ТКИ). К настоящему моменту исследование проблемы ТКИ породило вал теоретических и экспериментальных работ, в подавляющем большинстве которых исследуются транспортные свойства (электропроводность, термоЭДС, эффект Холла, микроконтактные спектры) и энергетический спектр носителей заряда методом рентгеновской фотоэмиссии с угловым разрешением (ARPES).

В настоящее время наиболее популярной является точка зрения, согласно которой модель ТКИ является наиболее адекватной для описания совокупности низкотемпературных свойств SmB_6. Тем не менее, существуют исследования, опровергающие указанный подход [8], и наличие топологически защищенной поверхности у SmB_6 не может считаться окончательно доказанным.

[1)]См. дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

[2)]e-mail: demis@lt.gpi.ru

В связи с этим особую актуальность приобрело экспериментальное и теоретическое исследование магнитных свойств гексаборида самария, о чем свидетельствуют недавние публикации [9–15], в которых обсуждается существование локализованных магнитных моментов (ЛММ) у SmB_6 при низких температурах, в том числе в области поверхностной проводимости. Поскольку "топологическая защита" поверхности обусловлена симметрией по отношению к обращению времени, то рассеяние на ЛММ (нарушающее такую симметрию) сделает существование топологического изолятора невозможным. Иными словами, SmB_6 может обладать "встроенным механизмом" разрушения основного состояния типа ТКИ и исследование его магнитных свойств, по-видимому, оказывается ключевым для проверки применимости модели ТКИ.

Для общего описания магнитных свойств гексаборида самария в последнее время применяется модель разрушения кондовских синглетов у ТКИ (*Kondo breakdown* [16]), в которой доминирует поверхностный парамагнитный вклад в намагниченность образца паулиевского типа, обусловленный зонными электронами с неспаренными спинами, возникающими в результате распада кондовских синглетов на поверхности образца. Одновременно, для объема образца в состоянии Кондо изолятора характерна экранировка магнитных ионов Sm^{3+} с образованием немагнитных синглетных состояний, и, в результате, магнитный вклад от объема образца оказывается существенно меньше поверхностного [10, 15, 16]. Анализ литературы показывает, что для объяснения дополнительного к паулиевскому магнитного вклада ЛММ у SmB_6 используется несколько подходов. Согласно первому из них, ЛММ связаны с изотопической примесью гадолиния в гексабориде самария, которая, по мнению авторов работы [9], присутствует даже в номинально чистых нелегированных образцах. Кроме того, существование ЛММ рассматривается или как следствие эффектов беспорядка [10], или как результат того, что поверхность SmB_6 может описываться киральной моделью Андерсона с магнитным основным состоянием [10].

Однако, в недавней работе [11], в которой исследовался электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) на высококачественных монокристаллах гексаборида самария, было установлено, что на поверхности нелегированного SmB_6 температурная зависимость интегральной интенсивности, пропорциональной магнитной восприимчивости ЛММ в поле магнитного резонанса B_{res}, обнаруживает критическое поведение, $\chi_{\mathrm{LMM}}(T) = M_{\mathrm{LMM}}(B_{\mathrm{res}})/B_{\mathrm{res}} \sim (T^* - T)^{0.37}$, с характерной температурой магнитного перехода $T^* \sim 5.5\,\mathrm{K}$ (здесь $M_{\mathrm{LMM}}(B_{\mathrm{res}})$ – намагниченность подсистемы ЛММ в поле резонанса). Этот экспериментальный результат, очевидно, исключает вклад в намагниченность исследованных в [11] образцов каких-либо парамагнитных примесей, поскольку такие ЛММ должны давать вклад в магнитные свойства и при $T > T^*$. При этом предполагалось, что пороговое по температуре появление ЛММ можно связать со стабилизацией зарядового состояния 3+ для некоторой части ионов самария, в результате которой образуются ЛММ, наблюдаемые в ЭПР-экспериментах [11].

Таким образом, данные, полученные в [11], во-первых, ставят под вопрос качество кристаллов, исследованных в [9, 10] и, следовательно, обоснованность сделанных в этих работах выводов. Во-вторых, очевидно, возникает проблема идентификации вклада ЛММ, наблюдаемого в совершенных нелегированных монокристаллах SmB_6 не только в динамических, но и в статических магнитных свойствах, а также определение характеристик данных магнитных центров. Указанная задача, насколько нам известно, до сих пор не была решена корректно. Известные из литературы работы по изучению магнитных свойств SmB_6 в большинстве случаев ограничиваются анализом *температурной зависимости магнитной восприимчивости* в слабом магнитном поле [17, 18]. В такой ситуации выделение парамагнитного вклада требует дополнительных предположений, которые не всегда могут быть доказаны. Альтернативный (и более адекватный поставленной задаче) подход заключается в исследовании *зависимостей намагниченности от магнитного поля* $M(B,T)$ и анализе нелинейного вклада, обусловленного ЛММ [9, 11]. Однако опубликованные данные соответствуют или специально легированным образцам [9], или получены при единственной фиксированной температуре $T \sim 2\,\mathrm{K}$ [11]. Поэтому целью настоящей работы являлось исследование эволюции полевых зависимостей намагниченности с температурой у нелегированных монокристаллов SmB_6 в области температур $T < 10\,\mathrm{K}$, соответствующих поверхностной проводимости.

2. Измерения низкотемпературных магнитных свойств проводились на высококачественных монокристаллах SmB_6, идентичных исследованным ранее в работе [11]. Эксперименты проводились с помощью сквид-магнитометра MPMS-5 (Quantum Design) в магнитном поле B до 5 Тл в интервале температур $2.5 < T < 10\,\mathrm{K}$. Магнитное поле было направлено вдоль кристаллографического направления [110].

Поверхность образца подготавливалась путем шлифовки и полировки до зеркального блеска алмазными порошками, размер зерна которых последовательно уменьшался от 7 до 1 мкм, без применения последующего химического травления. Как было показано ранее [11], такая обработка позволяет получить максимальный сигнал ЭПР, связанный с ЛММ на поверхности образца, и одновременно исключает появление дополнительных дефектов на поверхности, возникающих в результате химического травления.

3. Экспериментальные данные по полевым и температурным зависимостям намагниченности для SmB_6 свидетельствуют о том, что во всем исследованном диапазоне температур зависимость $M(B,T) \approx \chi_1 \cdot B$ практически линейна по магнитному полю, причем восприимчивость χ_1 слабо зависит от температуры (типичный пример такой зависимости показан на вставке к рис. 1). Как следует из

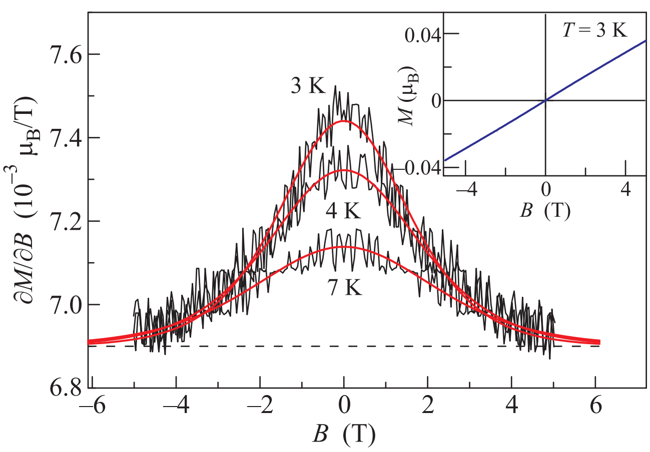

Рис. 1. (Цветной онлайн) Типичная зависимость намагниченности от магнитного поля $M(B)$ в нелегированном гексабориде самария (вставка) и производные $\partial M/\partial B$ при различных температурах (основной рисунок). Плавные кривые соответствуют модельной аппроксимации с помощью формулы (3), пунктирная линия обозначает общую для всех кривых магнитную восприимчивость χ_1 (подробности в тексте)

модели разрушения кондовских синглетов [16], такое поведение обусловлено парамагнетизмом Паули зонных электронов на поверхности образца, на фоне которой парамагнитный вклад ЛММ $M_p(B,T)$ в нелегированных образцах является относительно малой добавкой. Тогда для описания полевой зависимости намагниченности $M(B,T)$ можно выбрать аппроксимацию

$$M(B,T) = \chi_1 \cdot B + M_{\mathrm{LMM}}(B,T), \tag{1}$$

в которой, согласно сделанному предположению, нелинейная часть обусловлена локализованными магнитными моментами. В системах с сильными электронными корреляциями парамагнитный вклад в намагниченность от ЛММ можно представить в виде

$$M_{\mathrm{LMM}}(B,T) = M_s\varphi(\mu^* B/k_{\mathrm{B}}\theta(T)) = M_s\varphi(B/B_0(T)), \tag{2}$$

где функция $\varphi(x)$ описывает выход полевой зависимости на насыщение и удовлетворяет соотношениям $\varphi(x \to 0) = \alpha x$, $\varphi(x \to \infty) = 1$ и $d\varphi/dx > 0$. В формуле (2) M_s – момент насыщения для подсистемы ЛММ, $B_0(T) = k_{\mathrm{B}}\theta(T)/\mu^*$, $\theta(T)$ обозначает некоторую эффективную температуру, μ^* – эффективный магнитный момент. Однако в рамках существующих теоретических моделей функция $\varphi(x)$ не только не известна, но и часто отсутствует корректный подход к ее вычислению [19]. Указанная трудность имеет место как в концентрированном случае, когда взаимодействием ЛММ друг с другом нельзя пренебречь, так и в разбавленном случае, когда механизм взаимодействия ЛММ с окружением в сильно коррелированной матрице или точно неизвестен, или не поддается аналитическому описанию.

В экспериментальной практике в качестве $\varphi(x)$ обычно выбирают функцию Бриллюэна $B_J(x)$, задавшись (“из общих соображений”) тем или иным значением квантового числа J. Таким образом, в описание процесса намагничивания изначально закладывается приближение изолированного магнитного иона, в котором функция $\theta(T)$ должна совпадать с абсолютной температурой $\theta(T) = T$. Однако для описания экспериментальных данных приближение $\theta(T) = T$ часто оказывается недостаточным, и лучшая аппроксимация достигается в случае $\theta(T) = T - T_0$, где T_0 – эмпирически определенная парамагнитная температура [10, 19]. В этом случае выражение (2), как правило, понимается как интерполяционная формула, соответствующая закону Кюри–Вейсса в слабом магнитном поле и передающая тенденцию к насыщению намагниченности при $B \to \infty$. Однако, возможна ситуация, когда формула типа (2) с $\theta(T) = T - T_0$ может оказаться точной, например, при описании намагничения в системе спиновых поляронов [19].

Для выделения нелинейной части целесообразно проанализировать производные полевых зависимостей намагниченности $\partial M(B,T)/\partial B$ при фиксированных температурах. Так как $d\varphi/dB(B \to 0) = \mathrm{const} > 0$ и $d\varphi/dB(B \to \infty) = 0$, кривые $\partial M(B, T = \mathrm{const})/\partial B$ приобретают характерный для присутствия парамагнитного вклада колоколообразный вид (рис. 1).

Дальнейший анализ данных производился следующим образом. Задавался модельный вид функции $\varphi(x) = B_J(x)$ и вычислялась производная $\partial M(B,T)/\partial B$, которая, согласно формулам (1) и (2), дается выражением

$$\partial M/\partial B = (M_s/B_0)\cdot([1/2J\sinh(B/2J\cdot B_0)]^2 - $$
$$- [(1+1/2J)/\sinh((1+1/2J)B/B_0)]^2 + \chi_1, \quad (3)$$

в котором параметры M_s, B_0 и χ_1 являются подгоночными. Установлено, что практически совпадающая наилучшая аппроксимация экспериментальных данных может быть получена при любых значениях J из набора $J = 1/2$, $J = 3/2$ и $J = 5/2$ (см. плавные зависимости, показанные сплошными линиями на рис. 1, далее указанный выбор квантовых чисел J будет пояснен дополнительно). При этом величина χ_1 в пределах погрешности не зависела от выбора J и температуры (пунктир на рис. 1). В результате задача описания экспериментальных данных у SmB_6 сводится к двухпараметрической подгонке с помощью формулы (3), позволяющей найти параметры M_s и B_0. В рассматриваемой модели магнитная восприимчивость ЛММ в нулевом магнитном поле, задающая амплитуду максимума производной $\partial M/\partial B$ принимает вид $\chi_0(T) = \partial M_p(B = 0,T)/\partial B = M_s(J+1)/3J\cdot B_0$.

Анализ экспериментальных данных показал, что для любой фиксированной температуры подгонка дает совпадающие и не зависящие от J в пределах ошибки значения намагниченности насыщения. Кроме того, для любого J из указанного набора температурные зависимости $B_0(T)$ остаются подобными. Поэтому далее на рисунках мы приведем результаты для случая $J = 1/2$, когда $\varphi(x) = \mathrm{th}(x)$, $d\varphi/dx = 1/\mathrm{ch}^2(x)$ и $\chi_0(T) = M_s/B_0$.

Температурная зависимость $\chi_0(T)$ демонстрирует типичное для магнитной восприимчивости парамагнетика поведение и монотонно возрастает при понижении температуры, не имея каких-либо резких особенностей (рис. 2a). Для перестроенной в координатах $\chi_0(T)^{-1} = f(T)$ кривой характерно отклонение от закона Кюри–Вейсса, которое можно связать или с влиянием антиферромагнитных корреляций или с образованием спиновой щели [18]. Кроме того, основываясь исключительно на анализе магнитной восприимчивости, естественно считать, что ЛММ существуют во всем исследованном интервале температур в противоречии результатам ЭПР-эксперимента [11].

Однако в действительности ситуация оказывается более сложной. Рассмотрим теперь влияние температуры на намагниченность насыщения M_s и на параметр B_0, задающий аргумент функции $\varphi(x)$ (рис. 2b). Прежде всего, обращает на себя внимание тот факт, что намагниченность насыщения у SmB_6 увеличивается в 2.6 раза при уменьшении температуры от 10 до 2.5 K (рис. 2b). При этом низкотемпературный рост M_s происходит и в области $T < T^*$, где, согласно данным [11], g-фактор и, следовательно, эффективный магнитный момент μ^* не зависят от температуры. Для парамагнитных примесей с концентрацией N намагниченность насыщения равна $M_s = N\cdot\mu^*$ и, следовательно, при $T < T^*$ должно выполняться условие $M_s(T) = \mathrm{const}$, в то время как в интервале $2.5\,\mathrm{K} < T < T^*$ величина M_s изменяется в 1.4 раза (рис. 2b). Этот результат не позволяет связать нелинейную часть намагниченности с присутствием какой-либо парамагнитной примеси в исследованных образцах. Действительно, согласно данным рис. 2, у SmB_6 концентрация парамагнитных центров должна зависеть от температуры, что исключает интерпретацию данных намагни-

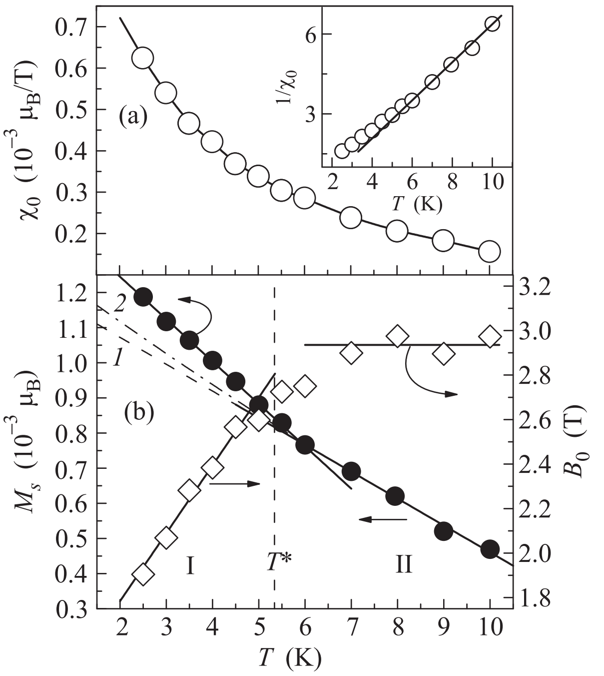

Рис. 2. (a) – Температурная зависимость магнитной восприимчивости локализованных магнитных моментов χ_0 (основная панель) и зависимость $\chi_0^{-1} = f(T)$ (вставка). (b) – Температурные зависимости параметров M_s и B_0 для случая $J = 1/2$. Кривые *1* и *2* обозначают экстраполяцию данных $M_s(T)$ из области II ($T > T^*$) линейной зависимостью и полиномом второго порядка, соответственно, на область I ($T < T^*$) (подробности в тексте)

ченности, основанную на предположении о неустранимом и неконтролируемом загрязнении номинально чистых образцов [9].

В свете наблюдаемой температурной зависимости $M_s(T)$, весьма необычной оказывается область $T > T^*$, где согласно данным ЭПР локализованные магнитные моменты отсутствуют. В то же время нелинейный насыщающийся вклад в статическую намагниченность присутствует и в данном интервале температур (рис. 1, 2). Для выяснения причины необычного поведения рассмотрим изменение с температурой параметра B_0. Из рисунка 2b видно, что кривая $B_0(T)$ имеет два участка. На участке I ($T < 5\,\mathrm{K}$) величина $B_0(T)$ зависит от температуры практически линейно, $B_0(T) \sim \theta(T) = T - T_0$, в соответствии с ожидаемым для ЛММ поведением (формула (2)). Однако на участке II ($T > 7\,\mathrm{K}$) параметр B_0 перестает зависеть от температуры, $B_0(T) = \mathrm{const}$. Интересно, что область кроссовера между участками I и II хорошо согласуется с характерной температурой T^*, при которой, согласно работе [11], в объеме образца возникают ЛММ (пунктир на рис. 2b). Отметим, что при $T \approx T^*$ на кривой $M_s(T)$ наблюдается излом, соответствующий изменению наклона $\partial M_s/\partial T$ на 20 % (рис. 2b).

Полученный результат позволяет по-новому рассмотреть проблему температурной зависимости намагниченности SmB_6 в низкотемпературной области. Согласно данным ЭПР, у SmB_6 величины g-факторов не зависят от температуры, что соответствует фиксированным значениям эффективных магнитных моментов $\mu^*(T) = \mathrm{const}$. Для таких парамагнитных центров, аргумент функции $\varphi(x)$ всегда будет зависеть от температуры, что связано с общей структурой статистической суммы по зеемановским уровням магнитного центра [20]. Таким образом, не зависящий на участке II от температуры коэффициент B_0 свидетельствует о том, что в данной области температур модель ЛММ неприменима и магнитные свойства SmB_6 в диапазоне $T > T^*$ имеют иную природу. При этом температурная эволюция формы кривой $\partial M/\partial B$ в диапазоне $T > T^*$ определяется исключительно параметром $M_s(T)$, а в интервале $T < T^*$ как параметром $M_s(T)$, так и параметром $B_0(T)$.

Обнаруженный в настоящей работе переход между зависимостями $B_0(T) \sim T - T_0$ и $B_0(T) = \mathrm{const}$, несмотря на свой необычный характер, может быть непротиворечиво интерпретирован в модели магнитных свойств ТКИ [16] с учетом результатов исследования ЭПР [11]. В области температур $T > T^*$ магнитные свойства SmB_6 определяются парамагнетизмом Паули электронов на поверхности образца, а возможный вклад от ЛММ или мал, или полностью отсутствует. В этом случае магнитная восприимчивость $\partial M/\partial B = \rho \cdot \mu_\mathrm{B}^2$ определяется плотностью поверхностных электронных состояний на уровне Ферми ρ [21], а температурная и полевая зависимости намагниченности могут возникать в результате перенормировки $\rho = \rho_0 + \Delta\rho(B, T)$. Подобные эффекты перенормировки плотности состояний хорошо известны в сильно коррелированных электронных системах [3, 22], однако возможный механизм такого эффекта в случае SmB_6 требует проведения дополнительного теоретического исследования, выходящего за рамки настоящей работы. Как следует из результатов [11], при низких температурах $T < T^*$, помимо паулиевского вклада, необходимо учитывать вклад от локализованных магнитных моментов (формула (1)), которые могут находиться как на поверхности, так и в объеме образца.

Из проведенного анализа следует, что в общем случае намагниченность SmB_6 содержит два вклада: вклад ЛММ M_LMM и паулиевский вклад $M_\mathrm{Pauli} = \chi_1(B, T) \cdot B$, причем в области экспериментальных параметров магнитное поле – температура достигается как насыщение намагниченности локализованных магнитных моментов, так и нелинейной части намагниченности Паули для поверхностных электронов. Тогда

$$M_s(T) = M_{s\mathrm{LMM}}(T) + M_{s\mathrm{Pauli}}(T), \qquad (4)$$

причем $M_s(T) = M_{s\mathrm{Pauli}}(T)$ и $M_{s\mathrm{LMM}}(T) = 0$ в интервале $T > T^*$, а в диапазоне $T < T^*$ оба члена в формуле (4) отличны от нуля, что естественным образом объясняет изменение наклона кривой $M_s(T)$ при $T \sim T^*$ (рис. 2b).

Таким образом, для того чтобы выделить вклад ЛММ из полевых зависимостей намагниченности при различных температурах, недостаточно вычесть линейную часть, и, поэтому, обработка экспериментальных данных $M(B, T)$, выполненная ранее в [9, 11], оказывается некорректной. В результате задача разделения магнитных вкладов требует знания о поведении нелинейной паулиевской намагниченности в области $T < T^*$, однако соответствующая теория в настоящее время отсутствует, и какие-либо аналитические выражения для $M_\mathrm{Pauli}(B, T)$ неизвестны. Поэтому экспериментальные данные $M(B, T)$ SmB_6 позволяют лишь произвести приближенную *оценку* параметров локализованных магнитных моментов.

4. Для приближенного разделения магнитных вкладов можно использовать насыщающийся характер нелинейной части полевых зависимостей $M(B, T)$ (рис. 1). Тогда, исходя из формулы (4), следует экстраполировать данные $M_s(T)$ (рис. 2b) из интервала $T > T^*$ на область $T < T^*$. Для оценки мы рассмотрели две возможные полиномиальные экстраполяции: линейную (рис. 2b, кривая *1*) и полиномом второго порядка (рис. 2b, кривая *2*), которые позволяют оценить $M_{s\mathrm{LMM}}(T) = M_s(T) - M_{s\mathrm{Pauli}}(T)$. Найденные таким образом температурные зависимости намагниченности насыщения для вклада ЛММ качественно согласуются с данными [11], свидетельствующими о пороговом по температуре возникновении локализованных магнитных моментов в объеме образца (рис. 3).

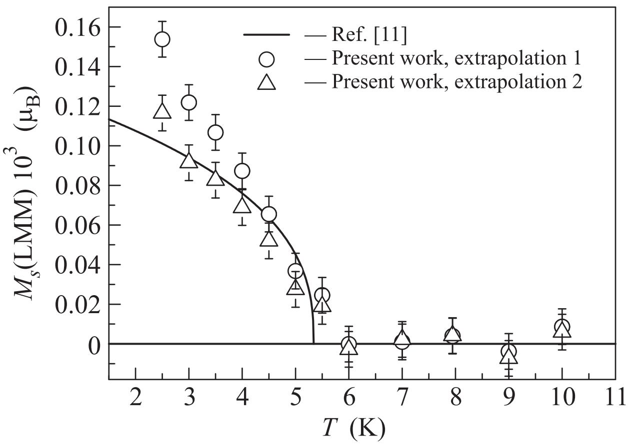

Рис. 3. Температурные зависимости намагниченности насыщения для вклада локализованных магнитных моментов $M_{s\mathrm{LMM}}$ при различных вариантах экстраполяции, показанных на рис. 2b (точки). Для сравнения приведена зависимость намагниченности, следующая из данных по электронному парамагнитному резонансу [11] для поверхности SmB_6 [110] (сплошная линия)

Несомненный интерес представляет оценка эффективного магнитного момента μ^*, характеризующего ЛММ у SmB_6. Температурная зависимость $B_0(T)$ для $J = 1/2$ на рис. 2b при $T < T^*$ соответствует эффективной парамагнитной температуре $T_0 \approx 3.3$ K и $\mu^* = 4.5\,\mu_\mathrm{B}$. При этом для изолированного магнитного центра с $J = 1/2$ и g-фактором $g \approx 2$ [11] следует ожидать существенно меньшей величины эффективного магнитного момента $\mu^* = g \cdot J\mu_\mathrm{B} \sim \mu_\mathrm{B}$. Однако приведенная выше оценка $\mu^* = 4.5\,\mu_\mathrm{B}$ в действительности занижает величину μ^* у SmB_6. Действительно, в рамках принятой процедуры анализа, разделение магнитных вкладов при $T < T^*$ и нахождение M_LMM $(B, T = \mathrm{const})$ сводится к вычитанию из колоколообразной кривой $\partial M/\partial B$ другой колоколообразной кривой $\partial M/\partial B$, описывающей паулиевский вклад в намагниченность. Очевидно, что независимо от выбранной процедуры экстраполяции, разностная кривая будет выходить на насыщение с ростом поля быстрее, по сравнению с исходными данными $\partial M/\partial B$ (рис. 1), что соответствует увеличению μ^*.

Данная процедура выделения $M_\mathrm{LMM}(B, T)$ и следующие из нее оценки подробно рассмотрены в приложении к статье (см. дополнительный материал). Для изолированного магнитного иона Sm^{3+} квантовое число составляет $J = 5/2$ и, с учетом g-фактора $g \sim 2$ [11], получаем оценку $\mu^* = gJ\mu_\mathrm{B} \sim 5\,\mu_\mathrm{B}$. В недавней работе [23] было показано, что основным состоянием иона Sm^{3+} в матрице SmB_6 является квартет Γ_8 и можно ожидать эффективное квантовое число $J = 3/2$, для которого $\mu^* \sim 3\,\mu_\mathrm{B}$. Как уже отмечалось выше, в случае некоторого парамагнитного центра с $J = 1/2$ эффективный магнитный момент будет еще меньше, $\mu^* \sim \mu_\mathrm{B}$. В то же время выделение вклада ЛММ из данных $\partial M/\partial B$ дает существенно бо́льшие значения: $\mu^* \sim 14\,\mu_\mathrm{B}$ $(J = 5/2)$, $\mu^* \sim 12\,\mu_\mathrm{B}$ $(J = 3/2)$, $\mu^* \sim 7\,\mu_\mathrm{B}$ $(J = 1/2)$ (см. дополнительный материал). При этом даже при самой низкой температуре $T = 2.5$ K концентрация ЛММ, оцененная из соотношения $N(T) = M_{s\mathrm{LMM}}(T)/\mu^*$ лежит в пределах $(2.2{-}4.5) \cdot 10^{-5}$ от концентрации ионов самария, и, следовательно, магнитные центры у нелегированного SmB_6, по-видимому, следует рассматривать как изолированные.

Неожиданно большие величины эффективных магнитных моментов μ^*, следующие из выполненных нами оценок, едва ли могут быть полностью отнесены к неточности выбранной нами процедуры экстраполяции паулиевского вклада в намагниченность, и, вероятно, связаны с природой необычных ЛММ у SmB_6. Например, значения эффективного момента, превышающие стандартную величину для изолированного магнитного иона $\mu^* = gJ\mu_\mathrm{B}$ могут свидетельствовать об образовании спиновых поляронов [19]. Для редкоземельных гексаборидов и Кондо систем поляронные эффекты не являются чем-то экзотическим. В частности, известно, что спин-поляронные эффекты определяют магнитные и транспортные свойства EuB_6 [24, 25]. В случае SmB_6 поляронные эффекты рассматривались в ряде теоретических работ [2, 26], однако это направление исследований не получило заметного развития по сравнению с моделями КИ и ТКИ. Полученные в настоящей работе оценки μ^* указывают на возможность реализации спин-поляронных эффектов у SmB_6, и, по-видимому, дальнейшее изучение этой проблемы может оказаться весьма перспективным. В частности, в рамках спин-поляронной природы ЛММ естественную интерпретацию может получить температура T^*, которую можно связать с образованием магнитных поляронных состояний [25]. Однако подробное исследование возможных спин-поляронных эффектов у SmB_6, которые, очевидно, не сводятся к предполагавшейся в [11] стабилизации зарядового состояния 3+ для некоторой части ионов самария, представляет собой самостоятельное теоретическое исследование, выходящее за рамки настоящей экспериментальной работы.

Большие значения $\mu^* \sim 7{-}14\,\mu_B$ приводят к тому, что полевые зависимости $M_{LMM}(B,T)$ при $T < T^*$ выходят на насыщение уже в области полей $B \sim \sim 2$ Тл (см. дополнительный материал), соответствующих полю магнитного резонанса B_{res} [11]. Поскольку у SmB_6 B_{res} не зависит от температуры, то следует ожидать, что интегральная интенсивность сигнала ЭПР, пропорциональная $M_{LMM}(B_{res})$ будет следовать температурной зависимости $M_{sLMM}(T)$. Сопоставление данных ЭПР [11] (сплошная линия на рис. 3) и оцененных зависимостей $M_{sLMM}(T)$, полученных в настоящей работе (точки на рис. 3) показывает, что результаты исследования статических и динамических магнитных свойств достаточно хорошо согласуются между собой, причем экстраполяция с помощью полинома второго порядка дает лучший результат по сравнению с линейной экстраполяцией (рис. 2b). При этом, помимо очевидной неточности экстраполяционной процедуры, в качестве источника небольшого расхождения между статическими и динамическими данными на рис. 3 можно отметить то обстоятельство, что в работе [11] была исследована лишь поверхность [110], в то время как в измеренную статическую намагниченность дают вклад все грани и, возможно, объем образца. Однако, поскольку сигнал ЭПР связан исключительно с топологической поверхностью образца [11], для объяснения соответствия между различными данными на рис. 3 необходимо предположить, что пороговое по температуре образование ЛММ не зависит от места в образце (различные поверхности и объем). Если объем образца не вносит вклада в наблюдаемую намагниченность ЛММ, и она имеет исключительно поверхностный характер, то в этом случае модель распада кондовских синглетов на поверхности должна включать возможность образования локализованных магнитных моментов, что, вероятно, потребует уточнения результатов теоретического исследования [16]. Если же $M_{LMM}(B,T)$ содержит вклад от объемных ЛММ, то они также должны появляться в образце в результате того же магнитного перехода с той же критической температурой, что и поверхностные ЛММ, и демонстрировать сходное критическое поведение. Таким образом, данные, полученные в настоящей работе, свидетельствуют в пользу универсального характера магнитного перехода при $T^* \sim 5.5{-}6$ К у SmB_6 (рис. 3), который должен включаться в модель ТКИ, или в любую другую теоретическую модель, претендующую на описание низкотемпературных свойств гексаборида самария.

5. В заключение отметим, что выполненный в настоящей работе анализ нелинейной части полевой зависимости намагниченности у ТКИ SmB_6 позволил установить, что нелинейный вклад в намагниченность при низких температурах в общем случае связан не только с локализованными магнитными моментами, но и с парамагнетизмом Паули поверхностных электронов. Впервые показано, что понижение температуры в области $T^* \sim 5.5{-}6$ К индуцирует переход между двумя режимами, определяющими магнитные свойства SmB_6. В диапазоне $T > T^*$ намагниченность качественно соответствует модели распада кондовских синглетов и определяется парамагнетизмом Паули, включающим линейный и нелинейный вклад в намагниченность. В области $T < T^*$ к парамагнетизму Паули добавляется возникающий пороговым образом по температуре вклад локализованных магнитных моментов. Выполненная оценка величины эффективных магнитных моментов, образующихся при $T < T^*$, дает аномально большие значения $\mu^* \sim 7{-}14\,\mu_B$, существенно превышающие $\mu^* \sim 3{-}5\,\mu_B$, ожидаемые для изолированного магнитного иона Sm^{3+}, что указывает на возможную спин-поляронную природу локализованных магнитных моментов у ТКИ SmB_6.

Работа выполнена при поддержке проектом РФФИ # 17-02-00127-а и Программами РАН "Электронный спиновый резонанс, спин-зависимые электронные эффекты и спиновые технологии" и "Электронные корреляции в сильно взаимодействующих системах".

1. T. Kasuya, K. Takegahara, T. Fujita, T. Tanaka, and E. Bannai, J. de Physique, Colloque C5 **40**, 308 (1979).
2. K. A. Kikoin and A. S. Mishchenko, J. Phys.: Condens. Matter **7**, 307 (1995).
3. P. S. Riseborough, Phys. Rev. B **45**, 13984 (1992).
4. M. Dzero, K. Sun, V. Galitskii, and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **104**, 106408 (2010).
5. V. Alexandrov, M. Dzero, and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **111**, 226403 (2013).
6. M. Mizumaki, S. Tsutsui, and F. Iga, J. Phys.: Conf. Ser. **176**, 012034 (2009).
7. M. Aono, R. Nishitani, C. Oshima, T. Tanaka, E. Bannai, and S. Kawai, Surface Science **86**, 631 (1979).

8. P. Hlawenka, K. Siemensmeyer, E. Weschke, A. Varykhalov, J. Sanchez-Barriga, N. Y. Shitsevalova, A. V. Dukhnenko, V. B. Filipov, S. Gabani, K. Flachbart, O. Rader, and E. D. L. Rienks, Nat. Commun. **9**, 517 (2018).
9. T. W. Fuhrman, J. R. Chamorro, P. A. Alekseev, J.-M. Mignot, T. Keller, J. A. Rodrigues-Riuvera, Y. Qui, P. Nikolić, T. M. McQueen, and C. L. Broholm, Nat. Commun. **9**, 1539 (2018).
10. X. He, H. Gan, Z. Du, B. Ye, L. Zhou, Y. Tian, S. Deng, G. Guo, H. Lu, and H. He, Advan. Sci. **5**, 1700753 (2018).
11. S. V. Demishev, M. I. Gilmanov, A. N. Samarin, A. V. Semeno, N. E. Sluchanko, N. A. Samarin, A. V. Bogach, N. Yu. Shitsevalova, V. B. Filipov, M. S. Karasev, and V. V. Glushkov, Sci. Rep. **8**, 7125 (2018).
12. R. Peters, T. Yoshida, and N. Kawakami, Phys. Rev. B **98**, 075104 (2018).
13. J. L. Pixley, R. Yu, S. Paschen, and Q. Si, Phys. Rev. B **98**, 0855110 (2018).
14. S. Nui and X.-J. Liu, Phys. Rev. B **98**, 125141 (2018).
15. K. Chen, T.-C. Weng, G. Schemerber, V. N. Gurin, J.-P. Kappler, Q. Kong, F. Baudelet, A. Polian, and L. Nataf, Phys. Rev. B **97**, 235153 (2018).
16. V. Alexandrov, P. Coleman, and O. Erten, Phys. Rev. Lett. **114**, 177202 (2015).
17. R. L. Cohen, M. Eibschütz, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **24**, 383 (1970).
18. V. V. Glushkov, A. V. Kuznetsov, O. A. Churkin, S. V. Demishev, Yu. B. Paderno, N. Yu. Shitsevalova, and N. E. Sluchanko, Physica B **378–380**, 614 (2006).
19. С. В. Демишев, Т. В. Ищенко, А. Н. Самарин, Физика низких температур **41**, 1243 (2015).
20. И. А. Квасников, *Термодинамика и статистическая физика. Т.1. Теория равновесных систем: Термодинамика*, Эдиториал УРСС, М. (2002).
21. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, М. (1972).
22. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, М. (1987).
23. M. Sundermann, H. Yavas, K. Chen, D. J. Kim, Z. Fisk, D. Kasinathan, M. W. Haverkort, P. Thalmeier, A. Severing, and L. H. Tjeng, Phys. Rev. Lett. **120**, 016402 (2018).
24. R. R. Urbano, P. G. Pagliuso, C. Rettori, S. B. Oseroff, J. L. Sarrao, P. Schlottmann, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **70**, 140401(R) (2004).
25. U. Yu and B. I. Min, Phys.Rev. B **74**, 094413 (2006).
26. C. Curnoe and K. A. Kikoin, Phys. Rev. B **61**, 15714 (2000).