

ПОГЛОЩЕНИЕ МИКРОВОЛНОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В КОНДО-РЕШЕТКЕ CeB₆ В СИЛЬНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

*H.E.Случанко, С.В.Демишин, А.В.Семено, Н.А.Самарин,
И.Б.Воскобойников, В.В.Мощалков¹⁾*

Институт общей физики РАН

117942 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 февраля 1996 г.

Исследованы особенности микроволнового (30–120 ГГц) магнитопоглощения в магнитной кондо-решетке CeB₆ при гелиевых температурах в сильных магнитных полях. Обнаружено, что структура поглощения возникает вследствие суперпозиции особенностей, связанных с переходами на магнитной фазовой диаграмме CeB₆, положение которых не зависит от частоты излучения, и ЭПР электронов 4f-оболочки церия, имеющего ярко выраженную дублетную структуру. Характер поглощения в окрестности ЭПР можно связать с расщеплением ²F_{5/2}-состояния в кристаллическом поле, причем величина *g*-фактора существенно перенормируется от *g* = 2.06 ± 0.03 до *g* = 1.83 ± 0.03 при понижении температуры от 4.2 К до 1.8 К, соответственно.

PACS 71.28.+d

1. В последнее время значительный интерес вызывает исследование концентрированных кондо-систем методами ИК и микроволновой спектроскопии [1–4], поскольку таким образом удается получить информацию о характере фермий-жидкостного взаимодействия квазичастиц [2, 3]. При этом наиболее изученным случаем является друдевская спектроскопия носителей в отсутствие внешнего магнитного поля [1, 2]. Существенно менее исследованной оказывается ситуация, когда образец помещается во внешнее магнитное поле; например, для концентрированных кондо-систем на основе церия имеются сообщения как об особенностях магнитопоглощения, положение которых не зависит от частоты излучения [3], так и о линиях, положение которых изменяется с магнитным полем, как в случаях электронного парамагнитного и циклотронного резонансов [4]. Таким образом, представляется весьма актуальным исследовать структуру поглощения микроволнового излучения в сильных магнитных полях в концентрированных кондо-системах и попытаться связать ее с особенностями фазовых диаграмм и магнитного состояния данных веществ, что и являлось задачей настоящей работы.

Для исследования были выбраны образцы гексаборида церия, обладающего необычным основным состоянием, претерпевающим ряд изменений в интервале температур 1.8–4.2 К [5, 6]. Магнитная фазовая диаграмма CeB₆ при низких температурах характеризуется существованием антиферромагнитного (АФМ) упорядочения при $T < 2.3$ К сменяющегося на антиферроквадрупольное (АФК) при $2.3 \text{ K} < T < 3.2 \text{ K}$ (для $T > 3.2$ К основное состояние парамагнитно), причем в области существования АФМ-фазы можно выделить целый ряд переходов, отвечающих, согласно результатам [5, 6], тонким особенностям в характере магнитного упорядочения (см. вставку на рис.1). Таким образом, для CeB₆ при гелиевых температурах можно легко варьировать тип основного состояния

¹⁾K.U.Leuven, Celestijnenlaan 200 D, B-3001 Leuven, Belgium.

и, следовательно, попытаться связать особенности поглощения микроволнового излучения с характерными точками на фазовой B – T -диаграмме, а также исследовать влияние характера магнитного упорядочения на возможные магнитные резонансы.

2. Существенной методической проблемой, затрудняющей проведение спектроскопических исследований концентрированных кондо-систем, зачастую является их высокая проводимость, что приводит к необходимости изучения или спектров отражения [2, 3], или использования резонаторных методов [1]. Однако в случае отражения в микроволновом диапазоне погрешность, как правило, оказывается довольно большой, а использование резонаторов ограничивает возможности перестройки частоты. С целью устранения данной трудности в настоящей работе была применена нерезонаторная методика исследования поглощения микроволнового излучения в магнитном поле, разработанная в [7, 8] для хорошо проводящих металлических образцов малого размера (меньшего или порядка длины волны излучения) и успешно примененная ранее к исследованию магнитных резонансов в монокристаллах органических металлов [7, 8].

Эксперименты были выполнены при $T = 4.2\text{ K}$ и $T = 1.8\text{ K}$ в диапазоне частот 30 – 120 ГГц в магнитном поле $B < 7\text{ Тл}$. Кристаллы CeB_6 имели характерные размеры $2.5 \times 1 \times 0.5\text{ мм}$. Подробное описание работы магнитооптического спектрометра и методика выделения магнитных резонансов даны в [8].

3. Кривые магнитопоглощения $P(B)$, записанные при различных частотах микроволнового излучения при $T = 4.2\text{ K}$ представлены на рис.1. В поглощении присутствуют два максимума, смещающиеся вверх по шкале магнитных полей с увеличением частоты (рис.1, линии S_1 и S_2). Кроме того, в спектрах наблюдается особенность (рис.1, линия Q_0), положение которой по магнитному полю практически не зависит от частоты. Сравнение характерного поля $B \approx 1.8\text{ Тл}$ для перехода из парамагнитной фазы в АФК-фазу при $T = 4.2\text{ K}$ показывает, что эта особенность, по-видимому, коррелирует с точкой перегиба функции $P(B)$ в окрестности магнитного перехода (см., например, кривую для 110 ГГц на рис.1).

Предположение о корреляции между особенностями магнитопоглощения микроволнового излучения и переходами на фазовой B – T -диаграмме подтверждается анализом кривых поглощения микроволновой мощности $P(B)$ при $T = 1.8\text{ K}$. Из данных рис.2 следует, что в поглощении наиболее отчетливо выражен основной переход АФМ-фаза→АФК-фаза (линия Q_2 , $B \approx 2.1\text{ Тл}$). Кроме того, в магнитооптических спектрах видны и переходы внутри АФМ-фазы, положение которых в пределах ошибки эксперимента совпадает с результатами [4] (ср. вставку на рис.1 и положение линий Q_2 и B_1 – B_3 на рис.2), однако эти особенности наблюдались не при всех частотах излучения, например, линии B_1 – B_3 наиболее отчетливо выражены при $\nu > 90$ – 100 ГГц , а переход Q_1 – в области $\nu < 60\text{ ГГц}$ (рис.2).

Отметим, что при $T = 1.8\text{ K}$ дублет S_1 , S_2 также сохраняется. Типичные значения ширины линий S_1 и S_2 составляют 0.3 – 0.4 Тл при гелиевой температуре, и 0.1 – 0.3 Тл при $T = 1.8\text{ K}$ (рис.1, 2). Положение различных особенностей магнитопоглощения при $T = 4.2\text{ K}$ и $T = 1.8\text{ K}$ суммировано на рис.3.

4. О наблюдении двойной линии магнитопоглощения, подобной обнаруженной в настоящей работе, сообщалось в [4] для случая немагнитной

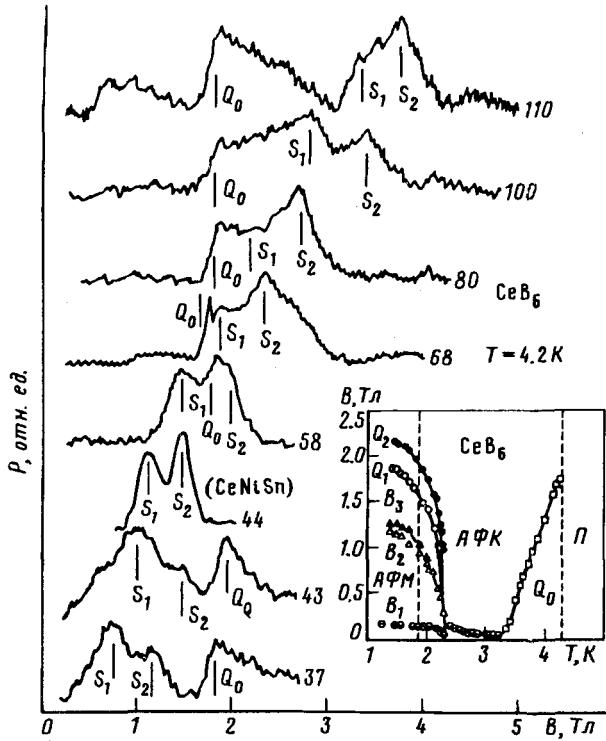


Рис.1. Магнитопоглощение микроволнового излучения в CeB_6 при $T = 4.2 \text{ К}$ для различных частот (цифры у кривых соответствуют частоте в ГГц). Для сравнения приведены данные для CeNiSn при 44 ГГц. На вставке показана магнитная фазовая диаграмма CeB_6 по данным работы [5]

кондо-системы CeNiSn , где эта особенность связывалась с ЭПР на электронах $4f$ -оболочки церия. Однако дублетная структура этой особенности не была однозначно интерпретирована. Нами были выполнены независимые измерения магнитопоглощения для образца CeNiSn (см. кривую для 44 ГГц на рис.1). В соответствии с данными [4] наблюдаются два аналогичных максимума поглощения (рис.1), положение которых практически совпадает с линиями S_1 и S_2 в CeB_6 (см. также рис.3). Таким образом, характерный дублет, наблюдаемый как в парамагнитной, так и в магнитоупорядоченной фазах, нельзя объяснить, например, с помощью антиферромагнитного резонанса в CeB_6 . В результате, принимая во внимание также характер температурной зависимости, возникновение этих особенностей магнитопоглощения действительно следует связать с ЭПР на электронах $4f$ -оболочки церия. В пользу такого предположения свидетельствуют также данные работы [9], где аналогичный дублет наблюдался при исследованиях этилсульфата церия $\text{Ce}(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ [9], являющегося широкозонным диэлектриком.

Поскольку линия S_1 проходит через начало координат, ее можно использовать для оценки эффективного g -фактора. Как следует из данных рис.3, величина g -фактора для CeB_6 существенно зависит от температуры и составляет $g(4.2 \text{ К}) = 2.06 \pm 0.03$ и $g(1.8 \text{ К}) = 1.83 \pm 0.03$. Значительное уменьшение величины g можно было бы связать с изменением характера магнитного упорядочения или с кондовским редуцированием магнитного момента при понижении температуры.

Следует подчеркнуть, что как в парамагнитной, так и в АФК- и АФМ-фазах CeB_6 сохраняется практическая одинаковая структура ЭПР сигнала

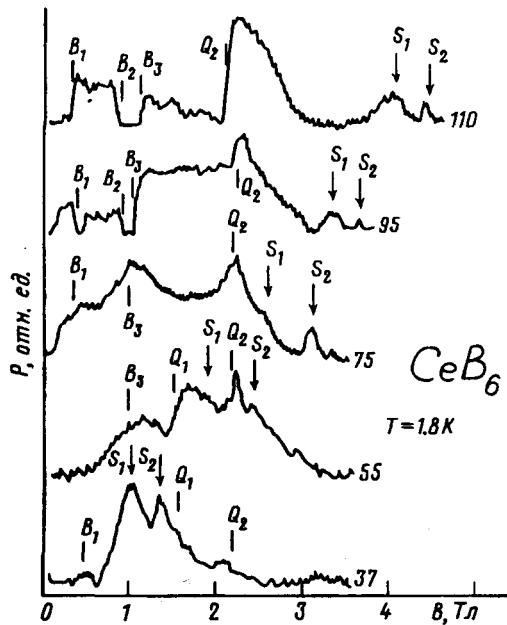


Рис.2. Магнитопоглощение микроволнового излучения в CeB_6 при $T = 1.8 \text{ К}$ для различных частот (цифры у кривых соответствуют частоте в ГГц)

(рис.1, 2). Зависимость $\omega(B)$ для резонансов S_1 и S_2 является линейной, причем наклоны линий S_1 и S_2 совпадают (рис.3). Кроме того, положение резонансов S_1 и S_2 в пределах точности эксперимента не испытывает отклонения от линейной зависимости в окрестности магнитных фазовых переходов (рис.1, 2). Отсюда, по-видимому, можно заключить, что у CeB_6 величина g -фактора определяется кондукторской экранировкой локализованных магнитных моментов, а не тем или иным типом магнитного упорядочения.

Анализируя природу возникновения двух пиков ЭПР поглощения в CeB_6 и CeNiSn , следует отметить, что одним из возможных объяснений может служить близость основного и первого возбужденного дублетов $^2F_{5/2}$ состояния церия в парамагнитной фазе CeNiSn и CeB_6 (см. вставку на рис.3). В пользу подобной интерпретации свидетельствует наличие особенности типа шоттки-аномалии на низкотемпературной теплоемкости [10, 11], а также результаты исследования магнитоупругих свойств [12]. При этом близкое к 2 значение g -фактора в парамагнитной фазе оказывается связанным с присутствием члена $|\pm 1/2\rangle$ в волновой функции нижнего дублета $^2F_{5/2}$ состояния церия, тогда как небольшая величина расщепления кристаллическим полем $\Delta_1 = 20 - 30 \text{ К}$ (вставка на рис.3) может обуславливать существенную заселенность, и следовательно, вклад в ЭПР сигнал от первого возбужденного состояния как для CeB_6 , так и для CeNiSn при гелиевой температуре. Подчеркнем, что найденная из результатов неупругого рассеяния нейтронов для CeNiSn величина Δ_1 составляет 2.1 мэВ [13]. В то же время, согласно [12], для объяснения всей совокупности низкотемпературных свойств гексаборида церия необходимо предположить расщепление основного состояния – квартета Γ_8 уже в парамагнитной фазе, причем величина Δ_1 ориентировочно составляет $30 - 40 \text{ К}$.

Таким образом, структура поглощения микроволнового излучения в сильном магнитном поле в концентрированной кондо-системе CeB_6 возникает вследствие

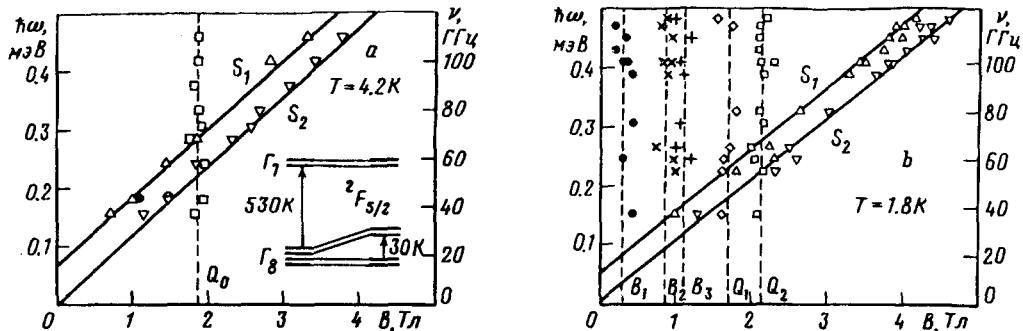


Рис.3. Положение различных особенностей магнитопоглощения в координатах магнитное поле – частота (энергия) микроволнового излучения (на рис.3а для линий S_1 и S_2 треугольники – CeB_6 , кружки – CeNiSn). Вертикальные штриховые линии соответствуют различным магнитным переходам (см. текст). На вставке показана структура $^2F_{3/2}$ состояния Ce в CeB_6 (по работам [10–12])

суперпозиции особенностей, связанных с переходами на магнитной фазовой диаграмме, положение которых не зависит от частоты излучения, и ЭПР электронов $4f$ -оболочки церия. Дублетную структуру поглощения в окрестности ЭПР можно связать с расщеплением основного состояния в кристаллическом поле, что открывает возможность прецизионной спектроскопии $4f$ -состояний в кондо-системах магнитооптическими методами.

Авторы благодарны Е.С.Коноваловой и Ю.Б.Падерно за предоставление образцов, а также У.Хейезу, Дж.Синглетону и Ф.Г.Алиеву за полезные дискуссии. Работа выполнена в рамках международных проектов Королевского общества Великобритании, INTAS 93-2400, INTAS 94-1788, INTAS 94-3562, а также при поддержке Российских национальных программ "Фуллерены и атомные кластеры" и "Физика микроволн".

-
1. A.Schwartz, M.Dressel, A.Blank et al., Rev. Sci. Instrum. **66**(4), 2943 (1995).
 2. L.Degiorgi, H.R.Ott, and F.Hulliger, Phys. Rev. B **52**, 42 (1995).
 3. G.Hampel, Phys. Rev. Lett. **72**, 3386 (1994).
 4. S.O.Hill, H.Matsui, W.Hayes et al., Physica B **211**, 220 (1995).
 5. N.B.Brandt, V.V.Moshchalkov, S.N.Pashkevich et al., Sol. St. Commun. **56**, 937 (1985).
 6. S.Nakamura, T.Goto, and S.Kunii, J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 3941 (1995).
 7. С.В.Демишин, Н.Е.Случанко, А.В.Семено и др., Письма в ЖЭТФ **61**, 299 (1995).
 8. С.В.Демишин, А.В.Семено, Н.Е.Случанко и др., Письма в ЖЭТФ **62**, 215 (1995).
 9. G.S.Bogle, A.H.Cooke, and S.Whitley, Proc. Phys. Soc. A **64**, 931 (1951).
 10. S.Kunii, J. Magn. Magn. Mat. **77-78**, 337 (1988).
 11. S.Nishigori, T.Suzuki, T.Fujita et al., Physica B **199**, 473 (1994).
 12. M.Sera, N.Sato, and T.Kasuya, J.Magn. Magn. Mat. **63-64**, 64 (1987).
 13. T.E.Mason, G.Aeppli, A.P.Ramirez et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 490 (1992).