

## КВАЗИУПРУГОЕ МАГНИТНОЕ РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ НА СИСТЕМАХ С ТЯЖЕЛЫМИ ФЕРМИОНАМИ

А.С.Мищенко

Российский научный центр "Курчатовский институт"

123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 12 августа 1998 г.

Построена теория квазиупругого рассеяния на спиновой жидкости с резонирующими валентными связями. Продемонстрировано, что зависимость сечения рассеяния на спиновой жидкости от переданной энергии совпадает с экспериментально наблюдаемой в тяжелофермионных системах формой квазиупругого пика. Показано, что следствием статистики Ферми, которой подчиняются возбуждения спинжидкостного состояния, являются осцилляции полного сечения квазиупругого рассеяния как функции переданного импульса.

PACS: 74.70.Tx

1. С тех пор, как в ряде работ было предложено описывать состояние с тяжелыми фермионами (ТФ) в рамках формализма спиновой жидкости (СЖ) типа резонирующих валентных связей (РВС) [1–3], не утихают дискуссии об адекватности предложенной модели. Не смотря на то, что идея РВС достаточно плодотворна в описании как термодинамических свойств [4], так и низкоэнергетического спектрального отклика [5] ТФ систем, однозначного доказательства существования корреляций типа РВС до сих пор не получено. Основной проблемой, затрудняющей идентификацию СЖ, является отсутствие решающего эксперимента, позволяющего принять или отвергнуть достаточно хорошо разработанную концепцию РВС.

Основной особенностью состояния с РВС является наступающая при низких температурах трансформация системы локализованных спинов в полузаполненную зону спиновых возбуждений, ширина которой  $T^*$  порядка температуры Кондо  $T_K$  [3, 6, 7]. При этом основным отличительным свойством коррелированного состояния РВС является *статистика Ферми*, которой подчиняются возбуждения СЖ. Изменение характерной для системы локализованных спинов статистики Больцмана на статистику Ферми в состоянии СЖ является тем обстоятельством, детальное изучение которого может выявить свойства, характерные только для сильно коррелированного состояния с РВС.

В данной работе предлагается теория квазиупругого магнитного рассеяния нейтронов на СЖ и показывается, что статистика Ферми спиновых возбуждений в системах с РВС приводит к осцилляциям зависимости полного сечения квазиупругого рассеяния от переданного импульса  $\kappa$ .

2. Базисным гамильтонианом, описывающим состояние с ТФ, является гамильтониан решетки Андерсона для  $f$ -ионов, которые гибридизованы с электронами проводимости. Каноническое преобразование Кокблена – Шриффера [8, 9] учитывает гибридизацию во втором порядке, и эффективный гамильтониан, описывающий нижний дублет состояния кристаллического поля  $\sigma = \pm$ , принимает вид обменного взаимодействия  $I_{\mathbf{m}\mathbf{m}'}^{\sigma\sigma'}$  между спиновыми состояниями различных узлов  $\mathbf{m} = 1, \xi$  ( $1$  – вектора

элементарных ячеек,  $\xi$  – вектора базиса):

$$H_{ex} = \sum_{\mathbf{m} \neq \mathbf{m}'} \sum_{\sigma \sigma'} J_{\mathbf{m}\mathbf{m}'}^{\sigma\sigma'} f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger f_{\mathbf{m}\sigma'} f_{\mathbf{m}'\sigma} f_{\mathbf{m}'\sigma'}^\dagger. \quad (1)$$

Операторы  $f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger$  ( $f_{\mathbf{m}\sigma}$ ) являются фермиевскими операторами рождения (уничтожения) состояния со спином  $\sigma$  в узле  $\mathbf{m}$  и подчиняются констрейнту  $\sum_{\sigma} f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger f_{\mathbf{m}\sigma} = 1$ .

Состояние с РВС, возникающее при низких температурах, характеризуется в приближении среднего поля возникновением межузельных аномальных средних  $\langle f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger f_{\mathbf{m}'\sigma} \rangle$ . В результате состояние СЖ определяется эффективным гамильтонианом

$$H_{ex}^{ef} = \sum_{\mathbf{m} \neq \mathbf{m}'} \sum_{\sigma} A_{\mathbf{m}\mathbf{m}'} f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger f_{\mathbf{m}'\sigma}, \quad (2)$$

описывающим спектр незаряженных ферми-возбуждений в спиновой подсистеме. Константы  $A_{\mathbf{m}\mathbf{m}'}$  определяются значениями обменных интегралов и аномальных средних [5]. Химический потенциал  $\mu$  определяется из глобального констрейнта для  $N$  узлов  $N^{-1} \sum_{\mathbf{m}} \sum_{\sigma} \langle f_{\mathbf{m}\sigma}^\dagger f_{\mathbf{m}\sigma} \rangle = 1$  и, следовательно, состояние с РВС описывается полузаполненной зоной ферми-частиц с шириной  $\sim T^*$ , спектр которой формально аналогичен зонному спектру в приближении сильной связи. Собственные состояния  $|\lambda\rangle$  гамильтониана (2) с помощью собственных векторов  $\Xi_{\xi\sigma}^\lambda$  можно представить в виде суперпозиции [5]

$$|\lambda\rangle = \sum_{\mathbf{k}\xi\sigma} \exp(i\mathbf{k}\lambda) \Xi_{\xi\sigma}^\lambda \varphi(\mathbf{r} - \mathbf{l} - \xi) |\sigma\rangle, \quad (3)$$

где  $\varphi(\mathbf{r} - \mathbf{l} - \xi)$  – пространственные волновые функции локализованных  $f$ -электронов,  $|\sigma\rangle$  – спиновая компонента, а  $\mathbf{k}\lambda$  – волновой вектор состояния  $|\lambda\rangle$ . При температуре  $T$  статистическая заселенность состояний  $|\lambda\rangle$  с энергиями  $\epsilon_\lambda$  определяется числами заполнения  $n_\lambda = \{1 + \exp[(\epsilon_\lambda - \mu)/T]\}^{-1}$ .

3. Стандартная формула для функции магнитного рассеяния нейтронов [10] на один магнитный ион с передачей импульса  $\kappa$  и потерей энергии  $\hbar\omega$  выражается через матричные элементы оператора  $\hat{Q} = \sum_{\mathbf{k}\xi} \exp\{i\kappa(\mathbf{l} + \xi)\} \hat{\mathbf{J}}$  и декартовы компоненты единичных векторов  $\hat{\kappa}_\alpha = \kappa_\alpha / |\kappa|$ :

$$S(\kappa, \hbar\omega) = b^2 N^{-1} \sum_{\alpha\beta}^{xyz} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{\kappa}_\alpha \hat{\kappa}_\beta) \sum_{\lambda\lambda'} \Omega_{\lambda,\lambda'} \langle \lambda | \hat{Q}_\alpha^\dagger | \lambda' \rangle \langle \lambda' | \hat{Q}_\beta | \lambda \rangle \delta(\hbar\omega - \epsilon_{\lambda'} + \epsilon_\lambda) \quad (4)$$

( $b$  – магнитная длина рассеяния [10],  $\hat{\mathbf{J}}$  – оператор полного магнитного момента). Статистическая функция  $\Omega_{\lambda,\lambda'}$  в случае рассеяния на локальных состояниях кристаллического поля зависит только от заполнения начальных состояний  $\lambda$  и определяется статистикой Больцмана. В случае присущей СЖ статистики Ферми играет роль и заполнение конечных состояний. В результате  $\Omega_{\lambda,\lambda'}$  принимает вид

$$\Omega_{\lambda,\lambda'} = n_\lambda (1 - n_{\lambda'}). \quad (5)$$

Подставляя собственные состояния (3) в выражение (4) и пренебрегая, ввиду сильной локализации пространственных волновых функций  $f$ -электронов, недиагональными по узлу матричными элементами операторов  $\hat{\mathbf{J}}$ , получаем, что функция рассеяния

нейтронов на спиновой жидкости определяется следующей формулой:

$$S_{sl}(\kappa, \hbar\omega) = B(\kappa) \sum_{\alpha\beta}^{\alpha\gamma\delta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{\kappa}_\alpha \hat{\kappa}_\beta) \sum_{\lambda\lambda'} \Omega_{\lambda,\lambda'} \Theta_{\lambda\lambda'}^{\alpha\beta}(\kappa) \delta(\hbar\omega - \varepsilon_{\lambda'} + \varepsilon_\lambda), \quad (6)$$

где

$$\Theta_{\lambda\lambda'}^{\alpha\beta}(\kappa) = I_\alpha^{\lambda\lambda'}(\kappa) \left( I_\beta^{\lambda\lambda'}(\kappa) \right)^*, \quad (7)$$

$$I_\alpha^{\lambda\lambda'}(\kappa) = \sum_{\xi} \exp(-i\kappa\xi) \sum_{\sigma\sigma'} (\Xi_{\xi\sigma}^\lambda)^* \Xi_{\xi\sigma'}^{\lambda'} \langle \sigma | \hat{J}_\alpha | \sigma' \rangle. \quad (8)$$

В вышеприведенных формулах  $B(\kappa) = b^2 (g_J F(\kappa)/2)^2$ , где  $g_J$  – фактор Ланде,  $F(\kappa)$  – магнитный формфактор иона.

4. Прежде всего следует отметить, что зависимость функции рассеяния (6) от переданной энергии  $\hbar\omega$  и температуры практически неотличима от наблюдаемой в ТФ соединениях зависимости [11], которая обычно интерпретируется в рамках феноменологического выражения  $S_{ph}(\hbar\omega, T) = [1 - \exp(-\hbar\omega/T)]^{-1} \hbar\omega / [\Gamma(T)^2 + (\hbar\omega)^2]$ . Особенностью нейтронного отклика систем с ТФ является ненулевая ширина квазиупругого пика  $\Gamma(T)$  при нулевой температуре [11].

Для количественного анализа рассмотрим симметричную спиновую зону ширины  $2T^*$  с постоянной плотностью состояний  $\mathcal{D}(\varepsilon) = 1$  при  $\varepsilon \in [-T^*, T^*]$  и  $\mathcal{D}(\varepsilon) = 0$  вне указанного интервала. Химический потенциал в спиновой зоне такой формы равен нулю. Усредняя функцию рассеяния (6) по углам (что соответствует случаю рассеяния на поликристалле), получаем выражение

$$S_{sl}(\kappa, \hbar\omega) = R(\kappa) \int_{-T^*}^{T^*} d\varepsilon \mathcal{D}(\varepsilon + \hbar\omega) n(\varepsilon) (1 - n(\varepsilon + \hbar\omega)), \quad (9)$$

в котором зависимость от модуля переданного импульса выделена в отдельный множитель  $R(\kappa)$ . Зависимость сечения от переданного импульса будет рассмотрена отдельно и мы сосредоточимся на зависимости функции рассеяния от переданной энергии, которая для принятой модельной плотности состояний имеет вид

$$S_{sl}(\kappa, \hbar\omega) = \frac{R(\kappa)}{2} T \exp\left(\frac{\hbar\omega}{2T}\right) \sinh^{-1}\left(\frac{|\hbar\omega|}{2T}\right) \ln \left\{ \frac{1 + \cosh[T^*/T]}{1 + \cosh[(T^* - |\hbar\omega|)/T]} \right\}. \quad (10)$$

Приведенные на рис.1 кривые находятся в качественном соответствии с экспериментально наблюдаемым в ТФ системах откликом и трудноотличимы при  $\hbar\omega < T^*$  от взвешенной фактором детального равновесия функции Лоренца  $S_{ph}(\hbar\omega, T)$ . Практикуемая при анализе экспериментальных данных подгонка  $S_{sl}(\kappa, \hbar\omega)$  феноменологической функцией  $S_{ph}(\hbar\omega, T)$  дает  $\Gamma(T=0) \sim T^*$ . Отметим, что учёт затухания возбуждений СЖ и рассмотрение менее сингулярных плотностей состояний  $\mathcal{D}(\varepsilon)$  снимает ограничение переданной энергии  $\hbar\omega$  интервалом  $[-2T^*, 2T^*]$  и сглаживает изломы энергетической зависимости сечения при нулевой переданной энергии (см. рис.1).

5. Полученная в модели СЖ конечная ширина квазиупругого пика при нулевой температуре не может являться решающим аргументом в пользу существования состояния с РВС, так как целый ряд моделей приводит к такому же результату [12, 13]. Более ярким следствием статистики Ферми, которое может послужить решающим тестом, является зависимость квазиупругого сечения от переданного импульса.

Для демонстрации этого следствия статистики Ферми рассмотрим двухподрешеточную систему, в которой доминирует межподрешеточное взаимодействие, то есть

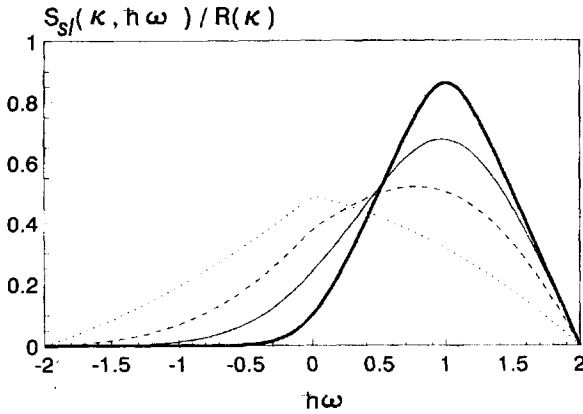


Рис.1. Зависимость функции рассеяния на СЖ с зоной ширины  $T^* = 1$  от переданной энергии при  $T = 0.1$  (сплошная жирная линия),  $T = 0.25$  (сплошная тонкая линия),  $T = 0.5$  (штриховая линия) и  $T = 2$  (пунктир)

$A_{1\xi,1\xi'} = \delta_{11}T^*/2$  при  $\xi \neq \xi'$  и пренебрежимо мало при  $\xi = \xi'$ . (Как показывают численные расчеты, это приближение не влияет на характер рассматриваемых ниже эффектов и служит только для удобства аналитических вычислений.) В этом случае четырехкратное вырождение состояний в каждой элементарной ячейке частично снимается и система собственных состояний представляет собой два двукратно вырожденных уровня с энергиями  $\pm T^*/2$  и химическим потенциалом  $\mu = 0$ . Для определенности предположим, что вектор базиса  $\xi$  направлен вдоль оси  $z$  и расстояние между ионами равно  $d$ .

Для вычисления зависимости от переданного импульса удобно ввести функцию

$$S_{sl}^{qe}(\kappa) = \int_{-T^*}^{T^*} d(\hbar\omega) S_{sl}(\kappa, \hbar\omega), \quad (11)$$

соответствующую интегральному по переданной энергии сечению квазиупругого рассеяния. В окончательном выражении для функции рассеяния

$$S_{sl}^{qe}(\kappa) = (B(\kappa)/2) \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{\kappa}_\alpha \hat{\kappa}_\beta) T^{\alpha\beta} D(\kappa, T), \quad (12)$$

где

$$T^{\alpha\beta} = \sum_{\sigma\sigma'} \langle \sigma | \hat{J}_\alpha | \sigma' \rangle \langle \sigma' | \hat{J}_\beta | \sigma \rangle, \quad (13)$$

статистика Ферми приводит к появлению дополнительного множителя

$$D(\kappa, T) = \{1 - \tanh^2(T^*/T) \cos(\kappa d)\} / 2, \quad (14)$$

который в случае статистики Больцмана тождественно равен единице. Наличие фактора  $D(\kappa, T)$  приводит при достаточно низких  $T < T^*$  температурах к осцилляциям сечения рассеяния с периодом  $\kappa_p = 2\pi/(d \cos[\widehat{\kappa d}])$ . Важным для экспериментальной проверки следствием является зависимость периода осцилляций от направления переданного импульса.

С целью набора хорошей статистики экспериментальных данных наиболее удобно измерение на поликристаллических образцах, результаты которого определяются функцией рассеяния  $S_{sl}^{tot}(\kappa)$ , получаемой в результате интегрирования по углам выражения (12). Для демонстрации влияния статистики Ферми выделим в отдельный множитель стандартную функцию рассеяния  $S^{tot}(\kappa)$ , зависимость которой от переданного импульса определяется только квадратом магнитного формфактора  $F(\kappa)$ .

Интегрирование по углам не приводит к полному подавлению осцилляций

$$S_{si}^{tot}(\kappa) = (S^{tot}(\kappa)/2) \{1 - \tanh^2(T^*/T) [(1 + \eta/2) \sin(\kappa d)/\kappa d - 3\eta\Phi(\kappa d)/2]\} \quad (15)$$

( $\eta = (T^{xx} + T^{yy} - 2T^{zz}) / (T^{xx} + T^{yy} + T^{zz})$  – мера аксиальной одноузельной анизотропии рассеяния), характер которых определяется множителем  $\sin(\kappa d)/\kappa d$  и функцией  $\Phi(x) = (\sin(x) - x \cos(x))x^{-3}$ . При достаточно больших значениях передачи импульса  $\kappa d \gg 1$  функция  $\Phi(\kappa d)$  существенно меньше множителя  $\sin[\kappa d]/\kappa d$ . Эффект достаточно слабо подавляется при повышении температуры (см. рис.2а), так как даже при температуре  $\sim T^*$ , которая достаточна для разрушения состояния СЖ, амплитуда осцилляции все еще велика. Следует отметить, что период осцилляций, которые возникают только при фермиевской статистике возбуждений, определяется расстоянием между взаимодействующими ионами и не связан с особенностями поверхности Ферми СЖ. Характерное расстояние между магнитными ионами в соединениях с ТФ  $d \sim 4 \text{ \AA}$ . Следовательно, несмотря на связанное с магнитным формфактором  $F(\kappa)$  спадание интенсивности по закону  $F^2(\kappa)$ , экспериментально возможно различить несколько первых периодов осцилляций (см. вставку на рис.2а).

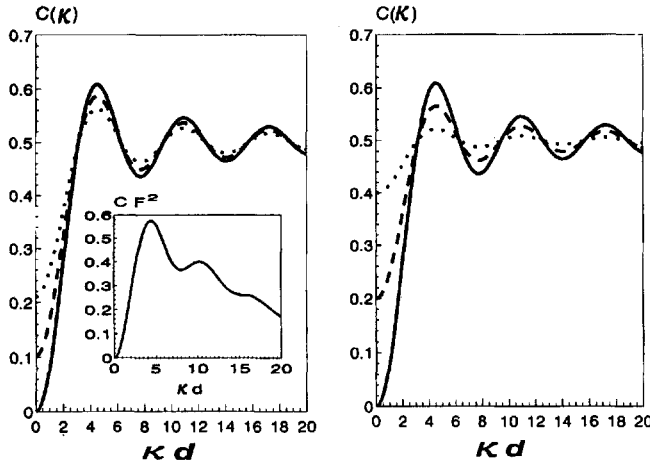


Рис.2. Зависимость отношения  $C(\kappa) = S_{si}^{tot}(\kappa)/S^{tot}(\kappa)$  от модуля переданного импульса  $\kappa$  при  $T^*) = 1$  и  $\eta = 0$ : а) в совершенной решетке при температурах  $T = 0$  (сплошная линия),  $T = 0.7$  (штриховая линия) и  $T = 1.0$  (пунктир); б) при нулевой температуре при  $\Lambda = 1$  (сплошная линия),  $\Lambda = 0.6$  (штриховая линия) и  $\Lambda = 0.2$  (пунктир). Вставка: функция рассеяния с учетом формфактора иона  $\text{Ce}^{3+}$  при межионном расстоянии  $d = 4 \text{ \AA}$

6. Значительно большее влияние на разрушение осцилляций оказывает несовершенство кристаллической решетки. В простейшем случае, если когерентность рассеяния не разрушена вообще за счет отсутствия одного из магнитных атомов базиса, влияние несовершенства решетки выражается в несколько отличающемся окружении разных ионов базиса. Изменение окружения приводит к изменению волновых функций кристаллического поля и, как следствие, к изменению матричных элементов магнитного оператора, которые различны,  $\langle \sigma | \hat{J}^\alpha | \sigma' \rangle_1 \neq \langle \sigma | \hat{J}^\alpha | \sigma' \rangle_2$ , для узлов 1 и 2. Хотя выражения для функции рассеяния получены и в общем случае, мы приведем менее громоздкие формулы для ионов, рассеивающих изотропно (направления  $x$ ,  $y$  и  $z$  эквивалентны и мы далее будем опускать декартовы индексы).

Неэквивалентность узлов можно охарактеризовать величиной

$$U = \left\{ \sum_{\sigma\sigma'} \left| \langle \sigma | \hat{J} | \sigma' \rangle_1 - \langle \sigma | \hat{J} | \sigma' \rangle_2 \right|^2 \right\} \left\{ \sum_{\sigma\sigma'} \left| \langle \sigma | \hat{J} | \sigma' \rangle_1 + \langle \sigma | \hat{J} | \sigma' \rangle_2 \right|^2 \right\}^{-1}. \quad (16)$$

Влияние несовершенства решетки на функцию рассеяния

$$S_{si}^{tot}(\kappa) = (S^{tot}(\kappa)/2) \{1 - \Lambda \tanh^2(T^*/T) \sin(\kappa d)/(\kappa d)\} \quad (17)$$

определяется величиной  $\Lambda = (1 - U)/(1 + U)$ , которая равна единице в совершенной решетке и нулю при полной потере эквивалентности узлов. Рис.2b демонстрирует влияние несовершенства решетки на подавление осцилляций.

7. Таким образом, хотя зависимость сечения магнитного квазиупругого рассеяния нейтронов на спиновой жидкости от переданной энергии практически неотличима от рассеяния на релаксирующем за счет кондо-процессов спине, осциллирующая зависимость сечения от значения переданного импульса уникальна именно для спиновой жидкости. Следует отметить, что в случае достаточно мягких расщеплений кристаллического поля  $\Delta_{CF} \sim T^*$  недиагональные по уровням кристаллического поля члены гамильтониана (1) приводят и к осцилляциям сечения неупругого рассеяния. Осцилляции дифференциального сечения неупругого рассеяния были экспериментально обнаружены [14] в кондо-полуметалле CeNiSn и количественно объяснены в рамках спинжидкостного подхода [5]. Однако, так как многие характеристики, измеряемые в экспериментах по рассеянию нейтронов на периодических системах демонстрируют осциллирующее поведение (например, осцилляция ширины пика рассеяния нейтронов в парамагнетике [15, 16]), то представляется важным изучение свойств, однозначно связанных со спиновой жидкостью. Как показано в данной работе, осцилляции полного сечения квазиупругого рассеяния являются прямым следствием статистики Ферми возбуждений в состоянии с резонирующими валентными связями. Поэтому экспериментальное обнаружение предсказанного эффекта может послужить существенным аргументом в пользу адекватности представления о спинжидкостных корреляциях в системах с тяжелыми фермионами.

Автор глубоко признателен П.А.Алексееву, К.А.Кикоину и В.Н.Лазукову за критические дискуссии. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 98-02-16730).

- 
1. G.Baskaran, Z.Zou, and P.W.Anderson, *Solid State Comm.* **63**, 973. (1987).
  2. P.Coleman and N.Andrei, *J. Phys.: Cond. Matt.* **1**, 4057 (1989).
  3. К.А.Кикоин, М.Н.Киселев, А.С.Мищенко, *ЖЭТФ* **112**, 729 (1997).
  4. К.А.Kikoin, М.Н.Kiselev, and А.С.Mishchenko, *Czech. J. Phys.* **46**, 1899 (1996).
  5. Yu.Kagan, К.А.Kikoin, and А.С.Mishchenko, *Phys. Rev.* **B55**, 12348 (1997).
  6. D.R.Grempel and M.Lavagna, *Solid State Comm.* **83**, 595 (1992).
  7. T.Tanamoto, H.Kohno, and H.Fukuyama, *Journ. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 617 (1993).
  8. B.Coqblin and J.R.Schrieffer, *Phys. Rev.* **185**, 847 (1969).
  9. B.Cornut and B.Coqblin, *Phys. Rev.* **B5**, 4541 (1972).
  10. W.Marshall and S.W.Lovesey, *Theory of Thermal Neutron Scattering*, Oxford: At the Charendon Press, 1971.
  11. P.Fulde and M.Lowenhaupt, *Adv.Phys.* **34**, 589 (1985).
  12. N.E.Bickers, D.L.Cox, and J.H.Wilkins, *Phys. Rev.* **B36**, 2036 (1987).
  13. М.Н.Киселев и А.С.Мищенко, *ЖЭТФ* **113**, 1843 (1997).
  14. T.Sato, H.Kadowaki, H.Yoshizawa et al., *J. Phys.: Cond. Mat.* **7**, 8009 (1995).
  15. P.G.De Gennes, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 223 (1958).
  16. A.J.Neville, B.D.Rainford, D.T.Adroja, and H.Schober, *Physica* **B223&224**, 271 (1996).