

Магнитный резонанс в сильно коррелированных металлах

С.В.Демишев, А.В.Семено, В.В.Глушков, Н.Е.Случанко
Отдел низких температур и криогенной техники ИОФ РАН

Согласно стандартным представлениям, которые долгое время доминировали в литературе, в сильно коррелированных металлах нельзя наблюдать электронный парамагнитный резонанс (ЭПР), обусловленный магнитными колебаниями сильно коррелированной магнитной матрицы [1]. Это обстоятельство связано с тем, что спиновые флуктуации уширяют линию магнитного резонанса до практически ненаблюдаемых значений. Например, в Кондо-системах ширина линии будет порядка $W \sim k_B T_K / \mu_B$, где T_K – температура Кондо, и для типичного значения $T_K \sim 10$ К следует оценка $W \sim 15$ Тл. Ситуация изменилась после работы [2], опубликованной в 2003 году сотрудниками Института химической физики твердых тел им. М.Планка в Дрездене, в которой сообщалось о наблюдении магнитного резонанса в концентрированной Кондо-системе YbRh_2Si_2 в X-диапазоне (т.е. на частоте ~ 9 ГГц), что на тот момент представлялось совершенно необъяснимым. В следующем 2004 году А.В.Семено, С.В.Демишев и Н.Е.Случанко с соавторами открыли магнитный резонанс в гексабориде церия благодаря использованию высокочастотной (60 ГГц) резонаторной методики (соответствующая публикация [3] вышла в начале января 2005 г.). Обнаружение необычных магнитных резонансов стимулировало развитие теории. Согласно моделям, предложенным Э.Абрахамсом, П.Вольфле и П.Шлоттманном [4,5], магнитный резонанс в рассматриваемых системах представляет собой коллективную моду магнитных колебаний локализованных магнитных моментов f-электронов, с которыми сильно взаимодействуют зонные носители заряда. При этом «парадокс спиновых флуктуаций» в теории можно было преодолеть лишь тогда, когда между осциллирующими спинами существуют ферромагнитные корреляции [4,5]. Такой подход полностью применим к случаю YbRh_2Si_2 , где такие корреляции действительно имеют место [6], однако для CeV_6 , являющимся примером системы с антиферромагнитным взаимодействием, возможность применения результатов [4,5] вызывала большие сомнения.

С экспериментальной точки зрения работы «раннего» периода исследований [2,3,6,7] имели два основных недостатка. Во-первых, в ЭПР-экспериментах на металлических системах достаточно сложно определить абсолютную величину осциллирующей части намагниченности M_{osc} , что не позволяло получить окончательный ответ на вопрос о том, представляет ли собой наблюдаемый резонанс коллективную моду, или же он обусловлен магнитными примесями, имеющимися в образце. Во-вторых, наблюдаемые линии были достаточно широкими, и, следовательно, нельзя было судить об истинной величине g-фактора по положению максимума резонанса [8]. Эти проблемы были решены в работах нашего авторского коллектива, предложившего новый подход к исследованию и анализу данных магнитного резонанса в сильно коррелированных металлах [A1,A2].

Предложенная нами методика включает в себя (1) специальную геометрию резонаторных измерений, исключающую эффекты неоднородности магнитного поля в образце; (2) процедуру абсолютной калибровки в единицах магнитной проницаемости части потерь резонатора, связанной с измеряемым образцом; (3) алгоритм анализа формы линии ЭПР, позволяющий найти полный набор спектроскопических параметров: осциллирующую намагниченность M_{osc} , время релаксации (ширину линии W) и гиромагнитное отношение (g-фактор), а также оценить степень подвижности магнитных моментов, участвующих в резонансе. Существенно, что для реализации методики абсолютной калибровки резонаторные измерения спектров магнитного резонанса необходимо дополнить данными статической намагниченности (требующимися для определения локального магнитного поля действующего на спины внутри образца) и

данными по температурным и полевым зависимостям удельного сопротивления (необходимыми для процедуры абсолютной калибровки и безмодельного нахождения базовой линии).

Вначале развитый подход был успешно применен к случаю магнитного резонанса в гексабориде европия [A1]. В этом материале концентрация зонных носителей n_e оказывается много меньше концентрации локализованных магнитных моментов $n_{\text{ЛММ}}$: $n_e \sim 0.01 n_{\text{ЛММ}}$ поэтому можно ожидать, что форма линии будет хорошо описываться моделью локализованных магнитных моментов. Результаты, полученные в [A1], полностью подтверждают это предположение, причем сравнение теории с экспериментом позволило выявить «тонкие моменты», возникающие при анализе формы линии, и тем самым усовершенствовать алгоритм анализа данных ЭПР. Важным физическим результатом, полученным в [A1], является «закрытие» сильных спин-поляронных эффектов и эффектов фазового расслоения, которые, как ошибочно считалось ранее, приводят к расщеплению спектра ЭПР на две резонансных линии, каждая из которых характеризуется сильной температурной зависимостью соответствующего g -фактора. На самом деле эти наблюдения оказываются экспериментальными артефактами и обусловлены как краевыми эффектами, так и макроскопической неоднородностью магнитной индукции внутри образца, искажающими форму линии в стандартных ЭПР экспериментах. Корректные измерения по предложенной нами методике показывают, что магнитный резонанс у EuB_6 обусловлен одной единственной сравнительно узкой линией поглощения, связанной с однородной прецессией локализованных магнитных моментов европия, причем как и следовало ожидать в случае $n_e \ll n_{\text{ЛММ}}$, осциллирующая намагниченность совпадает с полной намагниченностью, а g -фактор практически не зависит от температуры. В такой ситуации наиболее сильные корреляционные эффекты в магнитном резонансе EuB_6 оказываются связанными с особенностями спиновой релаксации [A2].

Успешное применение методики к EuB_6 позволило нам перейти к более сложному случаю гексаборида церия [A2], для которого характерно соотношение $n_e \sim n_{\text{ЛММ}}$, указывающее на возможный вклад зонных электронов в статические и динамические магнитные свойства. Тем не менее, до наших работ в литературе доминировала точка зрения, что для объяснения особенностей магнетизма CeB_6 достаточно рассмотреть лишь локализованные магнитные моменты церия и эффекты орбитального упорядочения f -оболочек [9,10]. Мы показали, что у CeB_6 магнитный резонанс возникает при переходе в низкотемпературную магнитоупорядоченную фазу (фазу II или так называемую антиферроквадрупольную фазу) и отсутствует в парамагнитной фазе. Этот факт указывает на возможное изменение характера экранирования локализованных магнитных моментов при магнитном переходе в условиях их сильного взаимодействия с зонными электронами. Применение нового разработанного нами методического подхода к исследованию магнитного резонанса у CeB_6 позволило установить, что в фазе II полная намагниченность M состоит из двух компонент $M = M_{\text{osc}} + M_e$, отвечающих магнитным колебаниям локализованных магнитных моментов церия (M_{osc}) и неосциллирующему вкладу зонных носителей (M_e) [A2]. Найдено, что температурная зависимость M_{osc} описывается законом Кюри-Вейсса ферромагнитного типа, что подтверждает теоретическое положение о ключевой роли ферромагнитных корреляций в сильно коррелированных электронных системах [4,5]. При этом вклад M_e убывает при понижении температуры и обращается в ноль в области $T < 2$ К, что можно связать с образованием волны спиновой плотности [A2].

Вывод о существенном вкладе зонных электронов в магнитные свойства CeB_6 , следующий из наших исследований магнитного резонанса, получил подтверждение и в других физических экспериментах. Основываясь на результатах изучения магнитного резонанса [A2] и статических магнитных свойств [11] и учитывая, что динамическая магнитная восприимчивость $\chi(\omega, \mathbf{k})$ определяет как спектры ЭПР, так и особенности нейтронного рассеяния, Н.Е.Случанко предложил эксперимент по обнаружению эффектов

зонного магнетизма в CeV_6 . Выполненное исследование спектров неупругого рассеяния нейтронов [A3] позволило впервые обнаружить существование низкотемпературной резонансной магнитоэкситонной моды и скрытого параметра порядка, обусловленных зонными электронами, сильно взаимодействующими с локализованными магнитными моментами церия.

Результаты работ [A2-A3] оказали заметное влияние на научное сообщество, занимающееся исследованиями сильно коррелированных электронных систем. Так один из идеологов прежней интерпретации магнитных свойств CeV_6 П.Талмейер признал ошибочность подхода, игнорирующего вклад зонных электронов, и в 2012 г. разработал модель [12] для описания нейтронных экспериментов [A3]. В том же 2012 году П.Шлоттманн, отмечая, что магнитный резонанс в CeV_6 с теоретической точки зрения представляет собой «исключение из исключений», предложил теорию, связывающую появление ферромагнитных корреляций в антиферромагнитном гексабориде церия с эффектами взаимодействия f-орбиталей [13]. На сегодняшний день построение новой модели магнитных свойств CeV_6 нельзя считать законченным, и, вероятно, будущая теория потребует учета спин-поляронных эффектов [A2]. Однако, в любом случае, такую теорию можно создать, только опираясь на экспериментальные результаты, полученные в работах [A2,A3].

Удачный дебют предложенного нами нового подхода в области зонного магнетизма [A2] стимулировал авторов на изучение магнитного резонанса в моносилициде марганца-соединении, которое принято считать классическим примером зонного магнетика со спиральным упорядочением [14]. Следует отметить, что до наших работ [A4,A5] магнитный резонанс у MnSi измерялся в единственной работе [15], опубликованной более 30 лет назад. Применение методики абсолютной калибровки и анализа формы линии, разработанной в [A1,A2] позволило установить, что магнитный резонанс у MnSi обусловлен локализованными магнитными моментами гейзенберговского типа, обладающими слабо зависящим от температуры g-фактором $g \sim 1.9-2.2$. В то же время найдено, что ширина линии ЭПР обусловлена спиновыми флуктуациями и в широком температурном интервале $4.2 < T < 60$ К может быть количественно описана в рамках теории Мории [14].

Анализ принципиальных расхождений эксперимента по магнитному резонансу с теорией слабого зонного магнетика позволил нам предложить новую модель магнитных свойств MnSi , основанную на образовании квазисвязанных состояний спин-поляронного типа в окрестности ионов марганца [A4]. Развитый подход позволил адекватно описать совокупность статических и динамических свойств MnSi [A4,A5]. Более того, гейзенберговский характер магнетизма у MnSi , следующий из данных магнитного резонанса, впервые позволил корректно интерпретировать данные магнитного рассеяния и определить положение фазовой границы между парамагнитной и ферромагнитной фазами в магнитном поле до 8 Тл [A5]. Следует отметить, что независимо от результатов нашей работы [A4], спиновые поляроны в MnSi были недавно обнаружены методом μSR -спектроскопии [16].

В заключение отметим, что в литературе встречается мнение, что исследования электронного резонанса в рассматриваемом классе систем «не приводят к принципиально новым представлениям» [17]. В своем цикле работ мы постарались показать, что именно исследования магнитного резонанса, основанные на разработанном в ИОФ РАН методическом подходе, определяют новый взгляд на магнитные свойства и природу магнетизма в металлах с сильными электронными корреляциями.

Цитированная литература

1. S.E. Barnes, *Advances in Physics*, **30**, 801 (1981)
2. J. Sichelschmidt, V.A. Ivanshin, J. Ferstl, C. Geibel, and F. Steglich, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 156401 (2003)
3. S.V. Demishev, A.V. Semeno, Yu.B. Paderno, N.Yu. Shitsevalova, and N.E. Sluchanko, *phys. stat. sol. (b)* **242**, No. 3, R27 (2005)
4. E. Abrahams and P. Wölfle, *Phys. Rev. B*, **78**, 104423 (2008).
5. P. Schlottmann, *Phys. Rev. B*, **79**, 045104 (2009).
6. C. Krellner, T. Förster, H. Jeevan, C. Geibel, and J. Sichelschmidt, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 066401 (2008).
7. S.V. Demishev, A.V. Semeno, A.V. Bogach, Yu.B. Paderno, N.Yu. Shitsevalova, and N.E. Sluchanko, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **300**, e534 (2006)
8. A. Gurevich and G. Melkov, *Magnetization Oscillations and Waves* (CRC, New York, 1996)
9. M. Sera and S. Kobayashi, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**, 1664 (1999)
10. P. Thalmeier, R. Shiina, H. Shiba, A. Takahashi, and O. Sakai, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **72**, 3219 (2003)
11. N.E. Sluchanko, A.V. Bogach, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, V.Yu. Ivanov, M.I. Ignatov, A.V. Kuznetsov, N.A. Samarin, A.V. Semeno, and N.Yu. Shitsevalova, *JETP* **104**, 120 (2007).
12. A. Akbari and P. Thalmeier, *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 146403 (2012)
13. P. Schlottmann, *Phys. Rev. B* **86**, 075135 (2012)
14. T. Moriya, *Spin fluctuations in itinerant electron magnetism*, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo, Springer-Verlag, 1985
15. M. Date, K. Okuda, K. Kadowaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 1555 (1977)
16. V.G. Storchak, J.H. Brewer, R.L. Lichti, T.A. Lograsso, and D.L. Schlagel, *Phys. Rev. B* **83**, 140404(R) (2011)
17. С.М. Стишов, А.Е. Петрова, *УФН*, **181**, 1157 (2011).

Список конкурсных публикаций

- A1. **A.V. Semeno, V.V. Glushkov, A.V. Bogach, N.E. Sluchanko, A.V. Dukhnenko, V.B. Filippov, N.Yu. Shitsevalova, S. V. Demishev.**
Electron spin resonance in EuB_6 .
Physical Review B, v.79, n.1, pp.014423 (2009)
- A2. **S.V. Demishev, A.V. Semeno, A.V. Bogach, N.A. Samarin, T.V. Ishchenko, V.B. Filipov, N.Yu. Shitsevalova, N.E. Sluchanko.**
Magnetic spin resonance in CeB_6 .
Physical Review B, **80**, 245106 (2009)
- A3. G. Friemel, Yuan Li, A.V. Dukhnenko, N.Y. Shitsevalova, **N.E. Sluchanko**, A. Ivanov, V.B. Filipov, B. Keimer, D.S. Inosov.
Resonant magnetic exciton mode in the heavy-fermion antiferromagnet CeB_6 .
Nature Commun. 3:830 doi: 10.1038/ncomms1821 (2012).
- A4. **С.В. Демишев, А.В. Семенов, А.В. Богач, В.В. Глушков, Н.Е. Случанко, Н.А. Самарин, А.Л. Чернобровкин.**
Является ли MnSi зонным магнетиком? Результаты ЭПР-эксперимента.
Письма в ЖЭТФ, т.93, в.4, стр.231-237 (2011).
- A5. **S.V. Demishev, V.V. Glushkov, I.I. Lobanova, M.A. Anisimov, V.Yu. Ivanov, T.V. Ishchenko, M.S. Karasev, N.A. Samarin, N.E. Sluchanko, V.M. Zimin, and A.V. Semeno.**
Magnetic phase diagram of MnSi in the high-field region
Physical Review B **85**, 045131-1-8 (2012)