ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДУБНА

> 10/5-77 P14 - 10434

1742/2-77 Б.Липпольд. В.Мати

РАСЩЕПЛЕНИЕ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ИОНА **Pr³⁺** ПОД ДЕЙСТВИЕМ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ПОЛЯ В КУБИЧЕСКОМ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКОМ СОЕДИНЕНИИ **PrMg**



P14 - 10434

Б.Липпольд, В.Матц

ГАСЩЕПЛЕНИЕ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ИОНА Рг³⁺ ПОД ДЕЙСТВИЕМ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ПОЛЯ В КУБИЧЕСКОМ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКОМ СОЕДИНЕНИИ РгМg

Направлено на школу по нейтронной физике /Россендорф, 20-30 марта 1977 г./.

Объединенный пиститут,
RECTURE ECTROLOMORE
EAST MACTERA

Липпольд Б., Матц В.

Расшепление основного состояния иона Pr³⁺ под действием кристаллического поля в кубическом интерметаллическом соединении. PrMg

Коротко описываются основы теории кристаллического поля и возможности его изучения методом неупругого рассеяния нейтронов. Из нейтронного эксперимента по времени пролета определялись параметры кубического кристаллического поля в соединении PrMg в парамагнитном состоянии. Параметры обсуждаются в рамках модели эффективных точечных зарядов.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1977

Lippold B., Matz W.

P14 - 10434

Splitting of the Ground State of the Ion Pr^{3+} Due to Cubic Crystalline Field in the Intermetallic Compound PrMg

At first we give a short description of the elementary crystal field theory and the possibility to study crystal fields by means of inelastic neutron scattering. From a neutron time-of-flight experiment we determine the cubic crystal field parameters of PrMg in the paramagnetic state. The crystal field parameters are discussed in the framework of the effective point charge model.

The investigation has been performed at the Neutron Physics Laboratory, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna 1977

ВВЕДЕНИЕ

Изучение кристаллического электрического поля в металлических соединениях на основе редкоземельных элементов /РЗЭ/ представляет интерес с точки зрения проблем магнетизма.

Магнитные 4f - электроны редкоземельных ионов рассматриваются как хорошо локализованные внутри атома и не участвующие в химической связи, в отличие, например, от "магнитных" электронов 3d-переходных элементов.

Эффекты кристаллического поля особенно хорошо прослеживаются в соединениях с непереходными металлами, в которых энергия обменного взаимодействия существенно меньше энергии электрического поля. В последние годы интенсивно исследовались интерметаллические соединения РЗЭ с алюминием /1/. Магний также относится к обычным немагнитным металлам. Он расположен в соседней с алюминием группе таблицы Менделеева, вследствие чего можно ожидать изменения силы кристаллического поля в соединениях РЗЭ с его участием.

В кристаллической решетке типа $C_sCl(O_h)$, в которой кристаллизуется соединение $\Pr Mg^{/2/}$, ион $\Pr 3^+$ находится в электрическом поле кубической симметрии, расщепляющем основной мультиплет 3H_4 4f - электронов на 4 подуровня, называемых кристаллическими уровнями.

В настоящей работе с помощью неупругого парамагнитного рассеяния тепловых нейтронов исследовались переходы между этими кристаллическими уровнями. Такой метод позволяет прямым путем определять параметры кристаллического поля. По данным работы $^{/2/}$, PrMg имеет точку Неэля T_N при 47 К. При $T < T_N$ соединение упорядочивается антиферромагнитно, что ведет к нарушению кубической точечной симметрии ионов празеодима и тем самым- к увеличению числа уровней и их относительного положения. В данной работе исследования проводились при температурах выше T_N .

ТЕОРИЯ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ПОЛЯ

Электронное строение магнитного иона находится из решения уравнения Шредингера с гамильтонианом $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, /1/

где \hat{H}_0 - гамильтоннан свободного иона, \hat{V} - оператор возмущения, обусловленный статическим электрическим цолем соседних ионов, расположенных в точках $R_j(R_j, \theta_j, \phi_j), j=1,...,N.$ Оператор возмущения \hat{V} имеет вид

$$\hat{\mathbf{V}} = \sum_{i=1}^{n} \mathbf{e} \int \frac{\rho(\mathbf{R})}{|\vec{\mathbf{r}}_{i} - \vec{\mathbf{R}}|} d\vec{\mathbf{R}},$$

где п - число "магнитных" электронов рассматриваемого иона с $R_j=0$, \vec{r}_i - раднус-вектор i -ого электрона этого иона, \vec{R} - раднус-вектор точки R, $\rho(\vec{R})$ пространственная плотность зарядов вокруг рассматриваемого иона.

Если воздействие соседей /лигандов/ аппроксимируется полем точечных зарядов q_j , то \hat{V} дается выражением

$$\hat{V} = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{N} \frac{eq_j}{|\vec{r}_i - \vec{R}_i|},$$
 /2/

где R_j - расстояние от ядра рассматриваемого иона до соседнего.

Так как в этой модели электронные состояния центрального и соседних ионов не перекрываются, то электростатический потенциал V и есть решение уравнения Лапласа

$$\Delta \mathbf{V} = \mathbf{0} , \qquad \mathbf{/3/}$$

которое можно записать в виде

$$\hat{\mathbf{V}} = \sum_{i=1}^{n} \sum_{\ell} \sum_{m=-\ell}^{+\ell} \mathbf{r}^{\ell} \mathbf{A}_{\ell}^{m} \mathbf{Y}_{\ell}^{m} (\theta_{i}, \phi_{i}), \qquad (44)$$

где

$$A_{\ell}^{m} = \sum_{j=1}^{N} \frac{4\pi}{(2\ell+1)} \cdot \frac{eq_{j}}{R_{j}^{(\ell+1)}} (-1)^{m} Y_{\ell}^{-m}(\theta_{j},\phi_{j}).$$
 /5/

Видно, что A_{ℓ}^m /так называемые параметры кристаллического поля/ зависят от положения и величины заряда соседних ионов, т.е. от симметрии окружения рассматриваемого иона. За счет ограничений, налагаемых симметрией кристалла, некоторые A_{ℓ}^m становятся равными нулю, т.е. число $A_{\ell}^m \neq 0$ уменьшается.

Собственные значения электронных состояний и их волновые функции получаются путем диагонализации матрицы оператора $\sqrt[6]{4}$. Принимая во внимание расщепление только внутри отдельного мультиплета, при вычислении матричных элементов гамильтониана применяют метод эквивалентных операторов $^{7/}$. Разложение оператора $\sqrt[6]{4}$ записывается на основе работы $^{5/}$ в виде:

$$\hat{\mathbf{V}} = \sum_{\ell} \sum_{m=-\ell}^{+\ell} \mathbf{B}_{\ell}^{m} \mathbf{O}_{\ell}^{m} , \qquad /6/$$

где операторы O_{ℓ}^{m} действуют только на ту часть волновой функции, которая содержит проекции оператора полного момента количества движения М. Между параметрами кристаллического поля A_{ℓ}^{m} и B_{ℓ}^{m} существует следующее отношение:

$$\mathbf{B}_{\boldsymbol{\rho}}^{m} = \mathbf{A}_{\boldsymbol{\ell}}^{m} < \mathbf{r}^{\boldsymbol{\ell}} > \mathbf{K}_{\boldsymbol{\ell}}^{m} \boldsymbol{\Theta}_{\boldsymbol{\ell}} , \qquad /7/$$

где $< r^{\ell} > = \int r^2 f^2(r) r^{\ell} dr$ с f(r) радиальной функцией /6/4f - электронов, K_{ℓ}^m - постоянные, Θ_{ℓ} - обобщенные матричные элементы.

Для кубической точечной симметрии иона уравнение /6/ имеет следующий вид $^{/5/}$:

$$V = B_4^0 (O_4^0 + 5 \cdot O_4^4) + B_6^0 (O_6^0 - 21 \cdot O_6^4).$$
 /8/

В этом случае существуют только два отличных от нуля параметра, а именно B_4^0 и B_6^0 . В работе $^{/8/}$ соотношение /8/ было переписано в виде

$$\hat{V} = W \{ x \frac{O_4}{F_4} + (1 - |x|) \frac{O_6}{F_6} \},$$
 /9/

где

$$O_{4} = O_{4}^{0} + 5 \cdot O_{4}^{4} , \qquad W \cdot x = B_{4}^{0} F_{4} ,$$
$$O_{6} = O_{6}^{0} - 21 \cdot O_{6}^{4} , \qquad W \cdot (1 - |x|) = B_{6}^{0} F_{6} .$$

Параметр $x(-1 \le x \le +1)$ описывается отношением B_4^0/B_6^0 / $x = \frac{A}{1+|A|}$, где $A = (B_4^0F_4/B_6^0F_6)$ / и опре-

деляет вклад члена 4-го порядка по отношению к члену 6-го порядка, W - параметр полного расщепления мультиплета.

На *рис. 1* показано расчетное расщепление основного состояния иона празеодима $\Pr^{3+}/J = 4/$ как функции параметров х и W, полученное диагонализацией гамильтониана /9/^{/8/}.

В случае кубической точечной симметрии основной мультиплет иона \Pr^{3+} расщепляется на четыре подуровня, а именно: на один синглет Γ_1 , один дублет Γ_3 и два триплета Γ_4 , Γ_5 . В табл. 1 приведены соответствующие волновые функции этих подуровней.



Рис. 1. Расщепление ³H₄ -мультиплета Pr³⁺ в кубической симметрии в зависимости от параметра х /диаграмма ЛЛВ/.

Таблица 1

Ортонормированные волновые функции кристаллических уровней основного мультиплета Pr³⁺ в кубической симметрии

Уровень	Волновые функции
<u>Γ</u> 1	0,4564 +4>+0,7638 0>+0,4564 -4>
Γ_3	0,5401 +4>-0,6455 0>+0,5401 -4>
0	0,7071 +2>+0,7071 -2 >
Γ_4	O,3536 +3>+O,9354 -1>
	O,3536 -3>+O,9354 +1>
	0,7071 +4>+0,0000 0>-0,7071 -4>
Гъ	O,9354 +3>-O,3536 -1>
5	O,9354 -3>-O,3536 +1>
	0,7071 +2>-0,7071 -2>

6

7

ОПРЕДЕЛЕНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ УРОВНЕЙ С ПОМОЩЬЮ РАССЕЯНИЯ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

Как известно, из экспериментов по неупругому рассеянию тепловых нейтронов можно определить энергии переходов между уровнями, если они не превышают кинетической энергии нейтронов и вероятность переходов не равняется нулю. Вся информация о взаимодействии нейтрон - вещество в любом эксперименте включена в двойное дифференциальное сечение рассеяния. Для системы парамагнитных ионов в приближении малой передачи импульса к двойное дифференциальное сечение описывается следующим образом /9/

$$\frac{\mathrm{d}^{2}\sigma}{\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}\epsilon} = \mathrm{N}\cdot\mathrm{C}\cdot\frac{\mathrm{k}'}{\mathrm{k}}\cdot\mathrm{f}^{2}(\kappa)\cdot\sum_{\mathrm{n,m}}\rho_{\mathrm{m}}|<\mathrm{n}|\mathrm{J}_{\perp}|\mathrm{m}>|^{2}\delta(\mathrm{E}_{\mathrm{n}}-\mathrm{E}_{\mathrm{m}}-\epsilon),$$
/10/

где N - число невзаимодействующих ионов системы, $C = (1,91e^2g_J/2m_ec^2)^2$ с g_J -фактором Ланде; k' и k волновые векторы рассеянного и падающего пучка нейтронов, $f(\kappa)$ - магнитный формфактор, $\vec{\kappa} = \vec{k} - \vec{k}'$ - вектор рассеяния, ρ_m - заселенность энергетических уровней E_m , |m>,|n> - собственные функции, описывающие кристаллические уровни E_m и E_n , J_{\perp} - компонента оператора полного момента количества движения, перпендикулярная $\vec{\kappa}$.

Для поликристаллического образца /при любой точечной симметрии парамагнитного иона/ и монокристалла кубической решетки вероятность перехода $|\langle n|J_{\perp}|m\rangle|^2$ можно представить в виде

$$|\langle n|J_{+}|m\rangle|^{2} = \frac{1}{3} \{|\langle n|J_{+}|m\rangle|^{2} + |\langle n|J_{-}|m\rangle|^{2} + 2|\langle n|J_{2}|m\rangle|^{2} \}./11/2$$

Вероятность переходов для кубической точечной симметрии, полученная при использовании волновых функций из табл. 1, приведена в табл. 2. В неупругом эксперименте в парамагнитной области $(T>T_C, T_N)$ вещества должны обнаруживаться максимально четыре перехода внутри основного мультиплета иона \Pr^{3+} . Таблица 2

Вероятность переходов между кристаллическими уровнями основного мультиплета Pr³⁺ в кубической симметрии

	Γ ₁	Г ₃	Γ_4	Γ_5
ľ1	0,0	0,0	13,333	0,0
Γ_3		0,0	18,667	8,0
Γ_4			1,0	7,0
Γ_5				25,O



Рис. 2. Магнитный формфактор Pr³⁺ в зависимости от передачи импульса к в единицах А .

На рис. 2 изображен магнитный формфактор для \Pr^{3+} в зависимости от $\kappa^{/10/}$. Заселенность i-уровня определяется по закону Больцмана:

9

$$\rho_{i} = \frac{w_{i} \exp(-E_{i}/kT)}{\sum_{j} w_{j} \exp(-E_{j}/kT)},$$
 /12/

где E_i - энергия относительно основного уровня / E₁=O/, w_i - степень вырождения і -уровня, k - постоянная Больцмана и 'I - температура образца.

Поскольку при неупругом рассеянии нейтронов практически всегда имеет место возбуждение фононов, возникает проблема отделения фононных пиков от кристаллических переходов.

Для решетки Бравэ кубической симметрии двойное дифференциальное сечение однофононного некогерентного рассеяния с рождением фонона имеет вид /11/

$$\frac{d^{2}\sigma}{d\Omega d\epsilon} = \alpha \cdot \frac{k}{k} \cdot b_{\Pi K}^{2} \frac{\kappa^{2}}{\epsilon} e^{-2W} \frac{g(\epsilon/\hbar)}{1 - \exp(-\epsilon/kT)},$$
(13/

где $\alpha = \frac{\hbar}{6MN}$ / М - масса ядра, ћ - постоянная Планка,

N - число атомов в кристалле/; $\epsilon = \hbar \cdot \omega$ - передача энергии нейтронов на фононы; b_{HK} - некогерентная амплитуда рассеяния, e^{-2W} - тепловой фактор, $g(\frac{\epsilon}{\hbar})$ - фононный спектр.

Сравнение отношений /13/ и /10/ друг с другом показывает, что двойное дифференциальное сечение в случае переходов между кристаллическими уровнями изменяется пропорционально $\rho_i(T)$ и f²(κ),а фононное сечение

 $f(T) = \frac{\exp(\epsilon/kT)}{\exp(\epsilon/kT) - 1}$ и κ^2 , поэтому оба процесса можно

разделить, исследуя температурную и угловую зависимости неупругого рассеяния.

В эксперименте обнаруживаются переходы между кристаллическими уровнями, т.е. их энергин (ϵ_i) и относительные интенсивности (I_i). В случае, если предсказанные моделью величины совпадают с экспериментальными данными / ϵ_i , I_i /, то полученные при этом

эмпирические параметры \widetilde{A}_{ℓ}^{m} или \widetilde{B}_{ℓ}^{m} можно сравнить с расчетными из модели $A_{\ell}^{m}(B_{\ell}^{m})$.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Исследования по дифракции нейтронов

Образец был изготовлен в Институте металлургии им. А.А.Байкова АН СССР /Москва/ из чистого празеодима /99%/ и чистого магния /99,9%/ методом дуговой плавки на медном водоохлаждаемом поду при небольшом избыточном давлении /900 мм рт.ст./ очищенного гелия. Для контроля фазового состава проводилась дифракция нейтронов методом времени пролета на канале l реактора ИБР-ЗО в ЛНФ ОИЯИ. На рис. З показан полученный спектр, деленный на спектр падающего нейтронного пучка /реакторный спектр/. По оси абсцисс отложено число каналов шириной 32 мкс временного анализатора. Номер канала связан с межплоскостным расстоянием в кристаллической решетке d_{hk} следующим образом:

$$N = 252.8 \cdot \frac{L}{KB} \cdot 2\sin\theta \cdot d_{hk\ell} , \qquad /14/$$

где L - пролетная база в м, КВ - ширина канала в мкс, θ - половина угла рассеяния.

По оси ординат на *рис. З* отложена интенсивность $I \sim \lambda^4 j |F_{hk\ell}|^2$ в произвольных единицах. Здесь $|F_{hk\ell}|^2$ структурный фактор плоскости с миллеровскими индексами (hk ℓ), ј - фактор повторяемости и λ - длина волны нейтронов, для которой имеет место уравнение Брэгга:

$$\lambda = 2d_{hk\ell} \sin\theta.$$
 (15/

РгМд имеет постоянную решетки а =3,877 Å^{$\circ/2/$}. Основные пики на *рис.* 3 индицируются по этой структуре. Пропущены индексы тех рефлексов (hkl), у которых структурный фактор $|F_{hkl}|^2$ так мал, что они не должны



быть видны в нейтронограмме. На этом же рисунке, кроме того, видно несколько слабых пиков, которые невозможно объяснить фазой PrMg. В системе Pr-Mg известны еще три интерметаллических соединения /3/

Соединение	Тип структуры	Постоянные решетки
PrMg ₂	$MgCu_2 - O_h^7$	a=8,689 Å
PrMg ₃	$Fe_3 A\ell - O_h^5$	$a = 7,43 \stackrel{\circ}{A}$
PrMg ₁₂	$ThMn_{12} - D_{4h}^{17}$	$a=10,34 \stackrel{\circ}{A}; c=5,98 \stackrel{\circ}{A}$

Все три соединения вносят свой вклад в эти слабые пики.

Для интенсивности пиков в /4/ дается соотношение:

 $I_{hk\ell} \sim \lambda^4 \frac{j |F_{hk\ell}|^2}{V_{EZ}^2} i_0(\lambda),$ /16/

где $i_0(\lambda)$ - падающий на образец спектр нейтронов и V_{EZ} объем элементарной ячейки. В фактор пропорциональности входят величины, которые не меняются в одном эксперименте. Определение количественного вклада каждого соединения, проведенного с помощью /16/, дало следующую оценку состава образца:

PrMg: 87 %	PrMg ₃ :3%
PrMg: 7%	PrMg, ::3%

Абсолютная ошибка этих величин составляет

2. Исследования по неупругому рассеянию нейтронов

Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов на образце PrMg размером 1x1x3 см³ были проведены

12

13

2%.

в Институте Лауэ-Ланжевена в Гренобле на спектрометре $IN7^{/14/}$ методом времени пролета. Параметры эксперимента: первая и вторая пролетные базы L_1 и L_2 -O,9O и 2,35 *м*, соответственно, угол рассеяния $\phi = 26^{\circ}$, ширина канала анализатора - 7,5 *мкс*, энергия падающих на образец нейтронов $E_{01} = 4,83$ мэВ, $E_{02} = 19,33$ мэВ, $E_{03} = 43,50$ мэВ. Были измерены спектры при температурах выше и ниже температуры Неэля $T_N = 47$ К. На *рис.* 4 показан спектр по времени пролета при T = 70 К. При этой температуре образец находится в парамагнитном состоянии. Видны пики на левой /1/ и правой /II/ стороне упруго некогерентно рассеянных нейтронов энергии E_{02} .

В области /II/, в которой для интенсивности переходов заселенность соответствующего нижнего уровня играет главную роль, имеются четыре перехода с энергиями $\epsilon_1 = 2,1\pm0,1$ мэВ, $\epsilon_2 = 5,0\pm0,2$ мэВ, $\epsilon_3 = 7,1\pm$



Рис. 4. Спектр неупругого рассеяния нейтронов для $\Pr Mg$ при $T = 70 \ K. \ N$ - номер канала шириной 7,5 мкс, I - интенсивность, угол рассеяния 26°, E_{02} и E_{03} энергии падающих нейтронов /19,33 и 43,5 мэВ соответственно/, продолжительность измерения - 5 ч.

 $\pm 0,2$ мэВ, $\epsilon_4 = 9,1\pm 0,6$ мэВ. Для нахождения этих переходов были учтены пики, обусловленные E_{03} .

Такой набор переходов можно хорошо описать в диаграмме ЛЛВ /*рис. 2*/ параметром x = -0,53±0,02. Из этого следует параметр W = /-0,20±0,01/ мэВ и схема уровней для состояния ${}^{3}\text{H}_{4}$: Γ_{3} /О мэВ/, Γ_{5} / 5,0 мэВ/, Γ_{4} /7,1 мэВ/, Γ_{1} /16,2 мэВ/.

Параметры кристаллического поля:

 $B_{6}^{0} = /17,7\pm1,6/\cdot10^{-4} \text{ M}\mathcal{B}B_{6}^{0} = /-74,6\pm6,9/\cdot10^{-6} \text{ M}\mathcal{B}B.$

ДИСКУССИЯ

Исследования кристаллического электрического поля на ряде металлических редкоземельных соединений показали, что результаты часто можно описать в рамках модели эффективных точечных зарядов /МЭТЗ/ /12/. Величина зарядов не обязательно совпадает с предполагаемой, которая определяется местом элемента в таблице Менделеева. С помощью МЭТЗ можно ожидать довольно правильного предсказания параметра х. Для параметра W эта модель дает только правильный знак. Абсолютное значение W, из-за пренебрежения электронами проводимости, в рамках этой модели в большинстве случаев не получается /12,13/. Мы также проводили анализ результатов неупругого рассеяния нейтронов по МЭТЗ. В PrMg ион Pr³⁺ имеет окружение из 8 атомовсоседей Mg в первом эквидистантном слое. Для такого окружения параметры кристаллического поля даются из /7/ работы /8/ :

$$B_{4}^{0} = \frac{7}{18} \frac{q |e|}{R^{5}} < r^{4} > \beta_{J},$$

$$B_{6}^{0} = -\frac{1}{9} \frac{q |e|}{R^{7}} < r^{6} > \gamma_{J},$$
/17/

где $\beta_{\rm J}$, $\gamma_{\rm J}$ - постоянные, а <r ⁴> ,<r ⁶> взяты из работы /6/.

15

Считая только атомы первого слоя, нельзя достичь для $\Pr Mg$ экспериментально определенной величины x = = -0,53, так как, согласно /9/, x определяется только отношением B_4^0/B_6^0 , т.е. заряд q_{Mg} в этом случае на него не влияет. Поэтому в анализ должен быть включен второй слой соседних атомов. Кажется, что в случае соединений структуры типа CsCl для расчета параметров кристаллического поля всегда надо учитывать первый и второй слои соседних атомов, т.е. Mg и Pr соответственно /13/.

При расчетах предполагалось, что Рг несет заряд q =+3, а заряд Mg варьируется. МЭТЗ дает значение x = -0,53 при $q_{Mg} = +1,46 |e|$. По местоположению в таблице Менделеева Mg должен иметь заряд q_{Mg} =+2 |e|, так что полученное значение для Mg в PrMg кажется разумным. С точки зрения МЭТЗ нужно обсудить вопрос влияния примеси других соединений системы Pr-Mg. Можно ограничиться кубическими соединениями, поскольку в чувствует тетрагональную ион празеодима PrMg₁₂ точечную симметрию (D_{4h}). В этом случае ³ H₄ - мультиплет расщепляется на 7 подуровней и вероятность переходов между ними мала. Предполагая, что заряд магния во всех соединениях Pr-Mg одинаков, и включая всегда первую и вторую сферы соседних атомов, по МЭТЗ получается для

 $\begin{aligned} \Pr Mg_2 &: x = 0.83 \quad W < 0 \\ \Pr Mg_3 &: x = -0.53 \quad W < 0. \end{aligned}$

Видно, что результат для $PrMg_3$ совпадает с PrMg. Поскольку он имеет ту же самую последовательность уровней и вероятность переходов между ними совпадает, то из-за малого содержания $PrMg_3$ в образце в эксперименте по неупругому рассеянию нейтронов не должно ожидаться заметных пиков. В случае $PrMg_2$ три уровня лежат очень близко друг к другу и расстояние между ними почти равно / рис. 1/. Если предположить, что МЭТЗ дает относительное расщепление в обоих соединениях правильно, то в $PrMg_2$ переходы между низкими уровнями должны быть меньше 1 мэВ. Такие переходы не наблюдались. Из /10/ видно, что в сечение рассеяния нейтро-

нов входит число N ионов. По сравнению с другими соединениями типа $PrMg_v / y = 2, 3, 12 / соединение PrMg$ имеет самое большое число ионов Pr на единицу объема, т.е. мешающий вклад рассеяния от этих соединений относительно PrMg в действительности еще меньше. На основе этих аргументов можно утверждать, что измеренный спектр / puc. 4/ полностью относится к PrMg. Ниже $T_N = 47$ К PrMg находится в антиферромагнитном упорядоченном состоянии. Вырождение этих 4 уровней снимается вследствие влияния внутреннего магнитного поля, так что ${}^{3}H_{4}$ -состояние расщепляется на 9 уровней. Для интерпретации экспериментальных данных в этой области надо знать направление внутреннего магнитного поля. Так как магнитная структура нам пока не известна, экспериментальные результаты при T < T_N интерпретируются неоднозначно.

Авторы весьма признательны О.Д. Чистякову, который изготовил образец соединения PrMg и тем самым сделал возможным проведение этой работы.

Авторы выражают благодарность члену-корреспонденту АН СССР Б.М.Савицкому и доктору технических наук В.Ф.Тереховой за внимание к работе. Нам хочется выразить также благодарность Институту Лауэ-Ланжевена за предоставление возможности проведения этих измерений, доктору физико-математических наук А.П.Мурани за ценную помощь при проведении экспериментов и доктору физико-математических наук Ю.М.Останевичу за полезные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Wallace W.E. Rare Earth Intermetallics, ch.4. Academic Press New York/London 1973.
- 2. Buschow K.H.J., J.Less-Common Metals, (1973), 33, 239.
- 3. Савицкий Е.М., Терехова В.Ф. Металловедение редкоземельных металлов. Наука, Москва, 1975, стр. 124.
- 4. Buras B., Gerwand L. Acta Cryst., 1975, A31, 372.
- 5. Hutchings M.T. Solid State Physics, 1964, 16, 227.

- Freeman A.J., Watson R.E. Phys. Rev., 1962, 127, 2058.
 Stevens K.W.H. Proc. Phys. Soc., 1952, A65, 209.
- 8. Lea K.R., Leask M.J.M., Wolf W.P. J.Phys.Chem.Solids., 1962, 23, 1381
- 9. DeGennes P. In: Magnetism vol. III, p.115, Academic Press New York/London 1963.
- 10. Lander G.H., Brun T.O. J.Chem. Phys., 1970, 53, 1387.
- 11. Гуревич И.И., Тарасов Л.В. Физика нейтронов низких
- энергий. Наука, Москва, 1965, стр. 176.
 12. Birgeneau R.J., Bucher E., Maita J.P., Passell L., Turberfield K.C., Phys. Rev., 1973, B8, 5345.
- 13. Bucher F., Maita J.P. Solid State Commun., 1973, 13, 215. 14. Neutron Beam Facilities at the I.L.L. High Flux Reactor
- Available for Users, Grenoble, January 1974.

Рукопись поступила в издательский отдел 11 февраля 1977 года.