

5/14-8

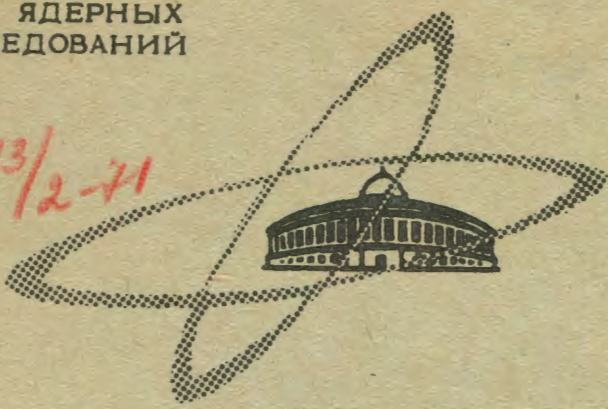
H-335

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

1013/2-71

P14-5611



И. Натканец, Б.Н. Савенко,
К. Темпельхофф, К. Фельдманн, К. Хенниг

ИЗУЧЕНИЕ РАСЩЕПЛЕНИЯ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УРОВНЕЙ Pr^{+++}
В PrF_3 С ПОМОЩЬЮ НЕУПРУГОГО
ПАРАМАГНИТНОГО РАССЕЯНИЯ
НЕЙТРОНОВ

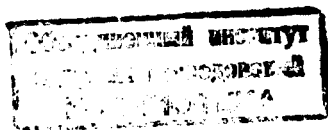
ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

1971

И. Натканец, Б.Н. Савенко,
К. Темпельхофф, К. Фельдманн, К. Хенниг

ИЗУЧЕНИЕ РАСЩЕПЛЕНИЯ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УРОВНЕЙ $P_{r^{+++}}$
В P_{rF_3} С ПОМОЩЬЮ НЕУПРУГОГО
ПАРАМАГНИТНОГО РАССЕЯНИЯ
НЕЙТРОНОВ

Направлено в "Phys. status solidi"



До настоящего времени было опубликовано всего несколько работ, посвященных неупругому парамагнитному рассеянию нейтронов неспаренными электронами редкоземельных ионов /1-4/. Эти работы показывают, что рассеяние нейтронов является удобным методом изучения расщепления энергетических уровней в кристаллическом поле в области энергий инфракрасного света.

Нами были проведены измерения с ионом Rr^{+++} в соединении RrF_3 со структурой элементарной ячейки, соответствующей пространственной группе D_{3d}^4 /5/. При такой структуре металлические ионы занимают места ромбической симметрии C_{2v} . Основное состояние $Rr^{+++} 3H_4$ (электронная конфигурация $(Kr) 4d^{10} 4f^2 4s^2 5p^6$) расщепляется под действием кристаллического поля на 9 уровней $2\Gamma_1$, $2\Gamma_2$, $3\Gamma_3$ и $2\Gamma_4$. Вследствие взаимодействия магнитного момента нейтрона и полного магнитного момента неспаренных f -электронов Rr^{+++} возникают магнитные дипольные переходы между Γ_i и Γ_j . Эти переходы разрешены при $i \neq j$ и запрещены при $i = j$.

Энергетическое расщепление основного состояния в LaF_3 (структура D_{3d}^4 /5/) частично известно из оптических спектров абсорбции и флуоресценции /6/, рис. 1 (Γ_1 (Γ_2) значит Γ_1 или Γ_2). Из оптических исследований тонких пленок PrF_3 для уровней 2 и 3 получены энергии 8,2 и 10,9 Мэв соответственно /7/.

Схема расщепления энергетических уровней Pr^{+++} в PrF_3 , полученная на основании инфракрасных измерений /8/, существенно отличается от приведенной в /6/.

Дифференциальное сечение неупругого парамагнитного рассеяния для отдельного иона можно записать в виде:

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} = \left(\frac{1,91e}{2mc^2} g_J \right)^2 \frac{k_f}{k_i} f^2(\vec{x}) \sum_{n,m} \rho_m |\langle n | J_{\perp} | m \rangle|^2 \delta \left(\frac{E_n - E_m}{h} - \omega \right),$$

где $|n\rangle, |m\rangle$ - собственные функции, описывающие уровни кристаллического поля E_n и E_m , J_{\perp} - составляющая полного момента, перпендикулярная к вектору рассеяния $\vec{x} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$, $f(\vec{x})$ - атомный формфактор, g_J - множитель Ланде, ρ_m - заселенность уровня E_m , остальные символы имеют общепринятое значение /9/.

С помощью этой формулы можно получить только качественные результаты, так как точный вид собственных функций неизвестен.

Эксперименты проводились на спектрометре обратной геометрии с охлажденным бериллиевым фильтром перед детектором на импульсном реакторе в Дубне /10/. При рассеянии нейтроны теряют энергию. На рис. 2 приведены результаты, полученные при 300 и 77°K и при угле рассеяния 90°. (Измерения проводились также при углах 60 и 30°). На довольно большом фоне, который обусловлен рассеянием нейтронов на фонах, наблюдается несколько пиков, обозначенных на рис. 2 1-2, 1-3 и 1-4, с энергиями $E_{1-2} = (6,9 \pm 1,0)$ Мэв, $E_{1-3} = (8,9 \pm 0,8)$ Мэв и $E_{1-4} = (17,8 \pm 0,5)$ Мэв, причем существование перехода 1-2 следует из разрешающей способности спектрометра по энергии

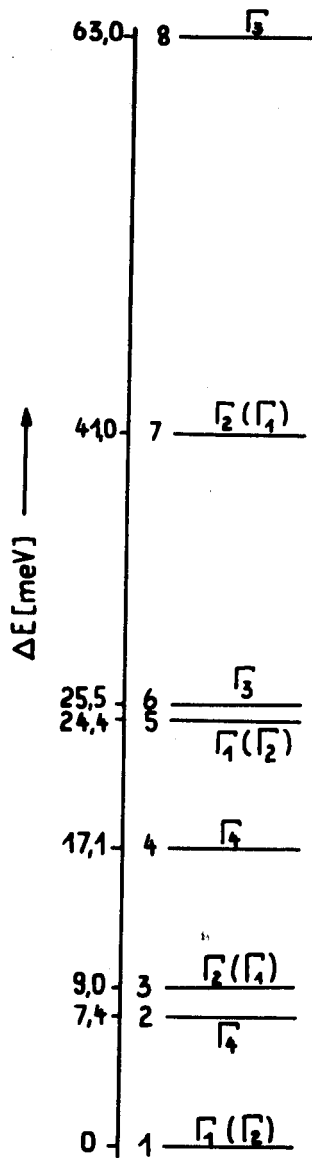


Рис. 1. Схема энергетических уровней Pr^{+++} ($^8\text{H}_4$) в симметрии C_{2v} .

20% и предположения, что ею определяется ширина пиков, как это имеет место для перехода 1-4. Эти значения хорошо согласуются с данными, приведенными в работе ^{/8/} (рис. 1).

Для разделения пиков, связанных с переходами между уровнями кристаллического поля, и пиков, связанных с фононными процессами, можно использовать угловую и температурную зависимости их интенсивностей. Интенсивность однофононного рассеяния изменяется пропорционально x^2 , а интенсивность электронных переходов - пропорционально $f^2(\vec{x})$ - она уменьшается с увеличением \vec{x} . Фононы подчиняются статистике Бозе, а заселенность кристаллических уровней определяется статистикой Больцмана. Это значит, что интенсивность пиков, связанных с переходами между кристаллическими уровнями, увеличивается при понижении температуры, а интенсивность однофононных пиков уменьшается.

Наблюдаемый спад интенсивности фононного спектра для PrF_3 при энергиях ≈ 40 Мэв (рис. 2) согласуется с температурой Дебая 360°K ^{/11/}.

Оптические измерения чувствительны, главным образом, к электрическим дипольным переходам, а рассеяние нейтронов чувствует только магнитные дипольные переходы.

Оба метода дополняют друг друга в тех случаях, когда определение представлений симметрии энергетических уровней затруднено. На основании полученных данных мы внесли некоторое изменение в энергетическую схему, предложенную в работе ^{/8/}. Уровень 3 должен быть обозначен $\Gamma_2(\Gamma_1)$, а не $\Gamma_1(\Gamma_2)$, как это сделано в работе ^{/8/}. Это значит, что если уровень 1 имеет представление Γ_1 , то уровень 3 должен иметь представление Γ_2 и наоборот.

Мы не наблюдали переходов между основным и более высокими уровнями из-за сильной зависимости атомного фактора и множителя $\frac{k_f}{k_i}$ в приведенной формуле от передаваемой энергии.

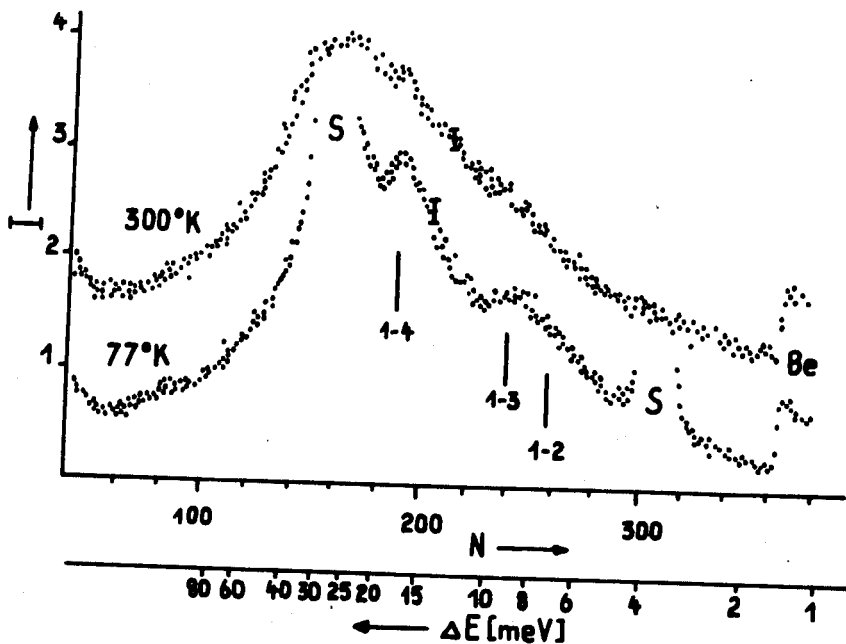


Рис. 2. Спектр неупругого рассеянных нейтронов на PrF_3 при 300 и 77°K. (I - интенсивность, N - номер канала, ΔE - потеря энергии нейтронов, Be - граница бериллиевого фильтра, S - сателлиты от быстрых нейтронов - участки спектра нейтронов, непригодные для физических измерений).

Наши выводы не согласуются с интерпретацией данных инфракрасных измерений в /8/. Считаем интерпретацию данных, приведенную в работе /8/, ошибочной.

Литература

1. D. Cribier and B. Jacrot, C.R. Acad. Sci. Paris 250, 2371 (1960); B.N. Brockhouse, L.N. Becka, K.R. Rao, R.N. Sinclair and A.D.B. Woods, J.Phys.Soc. (Japan) 17 Suppl. B-111, 63 (1962).
2. A. Furrer, W. Hälg and T. Schneider. Neutron Inelastic Scattering, IAEA, Vienna (1968) II, p.133.
3. B.D. Rainford, K.C. Turberfield, G. Busch and O. Vogt, J. Phys. C.1, 679 (1968).
4. K.C. Turberfield, L. Passell, R.J. Birfeneau, and E. Bucher. Phys.ERev,Lett., 25, 752 (1970).
5. D. Brown, Halides of the lanthanides and actinides, John Wiley and Sons, p.81, 1968.
6. E.Y. Wong, O.M. Stafsudd, and D.R. Johnston, J.Chem.Phys., 39, 786 (1963).
7. E.V. Sayre and S. Dreed, J.Chem.Phys., 23, 2066 (1955).
8. A. Hadni and P. Strimer, C.R.Acad.Sci,Paris, 265B, 811 (1967).
9. G.T. Trammell. Phys.Rev., 92, 1387 (1953).
- 10.K. Parlinski, M. Sudnik-Hryniewicz, A. Bajorek, J.A. Janik, and W. Olejarczyk, Research Application of Nuclear Pulsed Systems, IAEA, Vienna, 1967, p.179.
- 11.W.M. Yen, W.C. Scott, and A.C. Schawlow. Phys.Rev., 136, A271 (1964).

Рукопись поступила в издательский отдел

8 февраля 1971 года.