

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



СЗ42г2

X-38

18/01-

P14 - 7026

К.Хенниг, Э.И.Шарапов

2235 / 2-73

О ВОЗМОЖНОСТИ  
ИССЛЕДОВАНИЯ ЯДЕРНОГО МАГНЕТИЗМА  
В ВАНФЛЕКОВСКИХ ПАРАМАГНЕТИКАХ  
С ПОМОЩЬЮ РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

**1973**

**ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ**

P14 - 7026

К.Хенниг, Э.И.Шарапов

О ВОЗМОЖНОСТИ  
ИССЛЕДОВАНИЯ ЯДЕРНОГО МАГНЕТИЗМА  
В ВАНФЛЕКОВСКИХ ПАРАМАГНЕТИКАХ  
С ПОМОЩЬЮ РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

Хенниг К., Шарапов Э.И.

P14 - 7026

О возможности исследования ядерного магнетизма в ванфлековских парамагнетиках с помощью рассеяния нейтронов

Обсуждается возможность исследования ядерного магнетизма в ванфлековских парамагнетиках на импульсном реакторе при сверхнизких температурах.

Показана перспективность метода дифракции нейтронов, обусловленная сравнительно большой интенсивностью пиков, связанных с ядерным упорядочением, и возможностью разделения эффектов ядерного и электронного магнетизма по угловой зависимости рассеяния.

Предложен поисковый эксперимент: прямое обнаружение ядерного антиферромагнетизма в интерметаллическом соединении  $PrCu_2$  методом дифракции нейтронов при температуре ниже 50 миллиградусов Кельвина.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований  
Дубна, 1973

Hennig K., Sharapov E.I.

P14 - 7026

On Possible Study of Nuclear Magnetism  
in Van Vleck Paramagnetics Using Neutron  
Scattering

Possible study of nuclear magnetism in Van Vleck paramagnetics using the pulse reactor at superlow temperature is discussed.

Neutron diffraction method is shown to be perspective due to the comparatively high intensity of peaks connected with the ordering of the nuclei and due to possible separation of nuclear and electron magnetism effects through the scattering angular dependence.

The search experiment is suggested: direct observation of nuclear antiferromagnetism in intermetallic compound  $PrCu_2$  by the neutron diffraction method at the temperature below 50 mK.

Communications of the Joint Institute for Nuclear Research.  
Dubna, 1973

## 1. Введение

В последнее время измерения теплоемкости и магнитной восприимчивости ряда соединений празеодима с висмутом, таллием и медью дали косвенное указание на упорядочение магнитных моментов ядер /ядерный магнетизм/ с температурами Кюри или Нееля в интервале  $1 \div 50$  мК /1÷3/. Наибольшая температура упорядочения обнаружена в  $PrCu_2$ , в котором согласно /2/ ожидается антиферромагнитное упорядочение ядер при 54 мК. Ядерный антиферромагнетизм был впервые наблюден в  $CaF_2$  также косвенным методом в экспериментах по адиабатическому размагничиванию ядерных спинов фтора до отрицательных температур порядка  $10^{-6}$  К /4/. Прямое доказательство антиферромагнитного упорядочения ядер в  $CaF_2$  с помощью рассеяния нейтронов, предложенное в /5/, оказалось невозможным, так как дополнительный вклад в сечение рассеяния при упорядочении спинов фтора очень мал /6/.

Ниже обсуждаются механизм ядерного магнетизма в соединениях празеодима и возможность его прямого обнаружения с помощью дифракции нейтронов при сверхнизких температурах на импульсном реакторе. Оказывается, что такие исследования даже при температурах выше 1 мК могут быть перспективными, так как интенсивность пиков, связанных с упорядочением ядерных моментов  $Pr$ , примерно такого же порядка, как интенсивность обычных структурных рефлексов, а их угловая зависимость позволит разделить возможные вклады магнетизма как ядерного, так и электронного происхождения. Кроме этого, импульсность реактора при таких экспериментах с использованием рефрижератора растворения  $^3He$  в  $^4He$  дает преимущества по сравнению со стационарным реактором.

## 2. Усиленный ядерный магнетизм

По сравнению с ядерным магнетизмом в  $\text{CaF}_2$ , где чистое дипольное взаимодействие между магнитными моментами ядер ведет к упорядочению при очень низких температурах  $/10^{-6} \text{ K}/$ , в соединениях празеодима прямое взаимодействие между ядрами  $\text{Pr}$ , осуществляемое с помощью электронов, приводит к более высокой температуре упорядочения. Еще в работе  $/7/$  было обращено внимание на то, что вследствие существования сверхтонкого взаимодействия в парамагнитных по Ван Флеку ионах возможно усиление ядерных магнитных моментов.  $/3/$  За этим последовали предложение  $/8/$  и эксперименты по использованию подобных соединений при получении сверхнизких температур/.

Резюмируем кратко теоретические представления о механизме усиления ядерного магнетизма  $/1-3/$ . Рассмотрим ванфлековский парамагнетик, т.е. вещество, у которого основное состояние иона в кристаллическом поле синглетно. Возьмем в качестве примера некрамеровский ион  $\text{Pr}^{3+}$  в кубическом кристаллическом поле, в котором основной мультиплет празеодима  $^3H_4$  расщепляется на 4 уровня:  $\Gamma_1, \Gamma_4, \Gamma_3$  и  $\Gamma_5$ . Нижний уровень является синглетом, значит, немагнитным уровнем, и обуславливает парамагнетизм Ван Флека. Если не учитывать магнитный момент ядра, то при достаточно низких температурах - обычно при гелиевых - в отсутствие магнитного поля вещество станет немагнитным.

Учитывая сверхтонкое взаимодействие и внешнее магнитное поле при помощи гамильтониана

$$\hat{H} = A \hat{J} \hat{I} - g_J \mu_B \hat{H} \hat{J} - g_N \mu_N \hat{H} \hat{I} \quad /1/$$

и используя теорию возмущения, получим расщепление основного уровня  $\Gamma_1$  во втором приближении:

$$E_{1n} = -2g_J^2 \mu_B^2 \Lambda_z H^2 - g_N \mu_N I_z H + g_J \mu_B (2A \Lambda_z I_z) H = \quad /2/$$

$$= -2g_J^2 \mu_B^2 \Lambda_z H^2 - g_N \mu_N I_z H (1 + K), \quad /3/$$

где

$$K = -2A \Lambda_z g_J \mu_B / g_N \mu_N \quad /4/$$

и

$$\Lambda_z = \sum_{i \neq 1} \frac{\langle \Gamma_1 | J_z | \Gamma_i \rangle \langle \Gamma_i | J_z | \Gamma_1 \rangle}{E_i - E_1} \quad /5/$$

В уравнении  $/1/$   $A$  обозначает постоянную сверхтонкого взаимодействия между полным моментом электронов  $J$  и спином ядра  $I$ , второй и третий члены описывают взаимодействие электронного момента и ядерного спина с магнитным полем соответственно. Первый член в  $/2/$  - сдвиг уровня  $\Gamma_1$ , второй член - зеемановское расщепление и третий член - псевдозеемановское расщепление уровня  $\Gamma_1$ ,  $K$  - сдвиг Найта. Вследствие относительно больших значений  $A$  для редкоземельных элементов  $/A = -52,5 \text{ мК}$  для  $\text{Pr}^{3+}/$  и относительно малых величин расщепления  $E_i - E_1 (10-100 \text{ K})$  член псевдозеемановского расщепления является самым большим в уравнении  $/2/$ . Он может быть на два порядка больше остальных членов. Таким образом, при наличии сверхтонкого взаимодействия и магнитного поля уровень  $\Gamma_1$  приобретает магнитный момент  $2A \Lambda_z I_z g_J \mu_B$ , промежуточный по величине между  $\mu_N$  и  $\mu_B$ .

Анализ системы вне магнитного поля, но с учетом обменного взаимодействия между спинами  $4f$ -электронов также приводит к появлению усиленных моментов  $J_i = 2A \Lambda_z I_z$ . В результате обменного взаимодействия между ними, гамильтониан которого можно записать в виде

$$\hat{H}_{ex} = - \sum_{i \neq j} K_{ij} \hat{J}_i \hat{J}_j, \quad /6/$$

с понижением температуры в системе может возникнуть магнитный порядок. В рамках приближения молекулярного поля для температуры упорядочения получается следующее соотношение /3/:

$$kT_c = \frac{2}{3} K_0 (2A\Lambda_z)^2 I(I+1), \quad /7/$$

где

$$K_0 = \sum_i K_{ij} \quad /8/$$

Для ванфлековских парамагнетиков  $K_0 \approx 1^\circ\text{K}$ , что приводит к температуре упорядочения  $T_c \approx 1\text{ мК}$ . Отметим также, что в случае некубической точечной симметрии  $Pr$  вместе с псевдодзеемановским расщеплением возникает еще и псевдоквадрольное расщепление, которое тоже усиливает ядерный магнетизм.

Выражение /7/ для температуры ядерного упорядочения получено в предположении, что обменное взаимодействие меньше критического значения, разрушающего немагнитное синглетное состояние иона и приводящего к возникновению электронного упорядоченного состояния. Согласно /9/ это наступает при условии

$$4K_0 \Lambda_z = 1. \quad /9/$$

Как отмечено в /3/, в интересующем нас соединении  $PrCu_2$  обменное взаимодействие, по-видимому, весьма близко к критическому. Следовательно, простая теория молекулярного поля должна быть модифицирована.

Эта задача была решена в /10, 11/ для ванфлековского парамагнетика с эффективным спиновым гамильтонианом вида

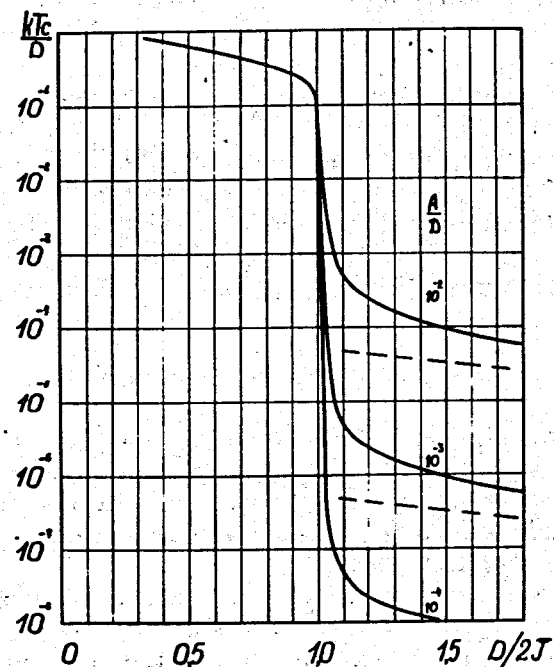
$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_c + \sum_{i \neq j} J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j + A \sum_i \hat{S}_i \hat{I}_i + \hat{H} \sum_i (\mu_j \hat{S}_i + \mu_N \hat{I}_i)$$

в частном случае для эффективного спина электронной системы  $S$ , равного единице, и ядерного спина  $I = 1/2$ . Здесь первый член описывает расщепление уровней кри-

сталлическим полем; второй - обменное взаимодействие, остальные члены аналогичны членам в /1/.

Результаты расчетов критической температуры показаны на рисунке, заимствованном из /11/. Для случая  $(\Delta/2J) > 1,05$  они аппроксимируются формулой

$$kT_c = \frac{A^2}{\Delta^2} \frac{\bar{J}}{1 - 2\bar{J}/\Delta}, \quad \bar{J} = \sum_i J_{ij} \quad /10/$$



Значения относительной критической температуры в зависимости от относительных величин обменного и сверхтонкого взаимодействий, рассчитанные в /11/. Пунктиром показаны результаты расчетов по формуле /10/. Обозначение  $D$  на рисунке тождественно символу  $\Delta$  в тексте.

где  $\Delta = E_2 - E_1$ . Пунктиром на рисунке показаны для сравнения результаты расчетов по формуле /7/, при условии  $\bar{J} \approx K_0$ .

Область  $(\Delta/2J) < 1$  соответствует индуцированному электронному магнетизму. При  $T \approx 10 mK$  поляризация ядер здесь менее 0,1%. Область  $(\Delta/2J) > 1$  названа областью ядерного магнетизма. Основным результатом этих расчетов является вывод о существовании промежуточного случая электронно-ядерного магнетизма. Он имеет место, когда обменное взаимодействие приближается к величине расщепления уровней кристаллического поля  $\Delta/2$ , оставаясь немногим меньше его. В этом случае при  $T < T_c$  в образце, помимо практически полной ядерной поляризации, будут существовать выстроенные электронные спины с величиной магнитного момента  $0,1 \div 0,2 \mu_B$ .

Необходимо отметить, что не только "ядерная", но и "электронная" область  $(\Delta/2J) < 1$  представляет самостоятельный интерес для исследований. Экспериментальной проверке подлежат теоретически предсказанная сильная зависимость критической температуры и величины магнитного момента в насыщении от параметров обменного взаимодействия и кристаллического поля /12/.

### 3. Ядерный магнетизм и рассеяние нейтронов

Коллективное упорядочение ядер в ванфлековских парамагнетиках при  $T < T_c$  можно обнаружить с помощью дифракции нейтронов методом, аналогичным применяемому при исследовании эффектов поляризации ядер в магнитоупорядоченных средах.

Рассмотрим простой случай антиферромагнитной структуры /для  $PrCu_2$  ожидается антиферромагнитное упорядочение/ с магнитной элементарной ячейкой больше атомной. Наличие ядерного магнетизма должно привести к появлению дополнительного вклада в магнитные максимумы когерентного рассеяния на нейтронограмме. Для этих магнитных рефлексов структурный фактор  $F_{hke}$  можно записать /13/ в виде

$$F_{hke} = \sum_i (p_i \vec{q}_i + \frac{1}{2} b_{inc} |P_N|) e^{2\pi i(hx_i + ky_i + lz_i)} \quad /11/$$

Здесь  $\vec{q}$  - вектор магнитного взаимодействия, равный  $\vec{k} \times (\vec{h} \times \vec{k})$ , где  $\vec{k}$  и  $\vec{h}$  - единичные векторы в направлениях вектора рассеяния нейтрона и намагничивания иона;  $p_i$  - амплитуда магнитного рассеяния, величина которой в единицах  $10^{-12}$  см равна  $p = 0,27 \mu_j \cdot f(\vec{k})$ , где  $\mu_j$  - эффективный магнитный момент редкоземельного иона в магнетонах Бора,  $f(\vec{k})$  - магнитный формфактор;  $b_{inc}$  - некогерентная амплитуда рассеяния для ядра со спином 1 и вектором поляризации  $\vec{P}_N$ . Значение  $b_{inc}$  определяется амплитудами  $b^+$  и  $b^-$  рассеяния нейтрона на ядре с полным спином системы  $I+1/2$  и  $I-1/2$ :

$$b_{inc} = \frac{2}{2I+1} (b^+ - b^-) \quad /12/$$

При отсутствии электронного магнетизма ( $p_i = 0$ ) остается только второй член в скобках выражения /11/, в дальнейшем обозначаемый через  $\delta$ . Оценку  $\delta$  получим из некогерентного сечения

$$\sigma_{inc} = \pi I(I+1) b_{inc}^2 \quad /13/$$

Для празеодима /14/  $\sigma_{inc} = 1,6$  барна, откуда величина  $\delta$  равняется  $0,3 \text{ барн}^{1/2}$ . В этом случае вклад в сечение от магнитоупорядоченных ядер сравним с вкладом от обычного когерентного рассеяния /  $b_c = 0,44 \text{ барн}$  /. Это значит, что ядерный магнетизм должен хорошо проявиться при дифракции нейтронов на ядерно-магнитоупорядоченных соединениях  $Pr$ , например,  $PrCu_2$ .

Индукцированный момент  $4f$  - электронов в ядерной области /  $g_j \mu_B 2A \Lambda_z I_z \approx 10^{-2} \mu_B$  для  $PrCu_2$  / гораздо меньше обычно наблюдаемых моментов магнитных веществ ( $\mu_j (Pr^{3+}) = 3,5 \mu_B$ ), поэтому ожидаемый вклад от индуцированного момента электронов в сечение рассеяния мал. В электронно-ядерной области магнитный момент электронов, возрастая на порядок, по-прежнему дает

сравнительно малый вклад в  $P_i$ . Благодаря тому, что  $\delta$  не зависит от угла рассеяния, а  $P_i$  показывает сильную зависимость от угла рассеяния, электронный и ядерный вклады можно разделить и тем самым решить вопрос о существовании ядерного или электронного магнетизма или о их сосуществовании.

Возникает вопрос о роли неупругих магнитных процессов в связи с очень низкой температурой упорядочения. В обычном уравнении двойного дифференциального сечения для одномагнитных процессов /15/, формула 19.27/ следует заменить  $p^2$  /в наших обозначениях/ на  $b^2$  для ядерных магнонов. Для  $^{141}Pr$ , при этом происходит только незначительное изменение сечения. Температурный фактор,  $kT/J$ , также определяющий одномагнитное сечение рассеяния, для  $PrCu_2$  имеет примерно одинаковую величину как для электронного, так и ядерного магнетизма. Поскольку в дифракционных экспериментах по электронному магнетизму при  $T < T_c$  вклад неупругого магнитного рассеяния мал, то можно ожидать, что в упругих экспериментах с ядерноупорядоченными соединениями празеодима неупругий фон от магнонов имеет незначительную величину.

#### 4. К эксперименту

Предлагаемый поисковый эксперимент - прямое обнаружение ядерного антиферромагнетизма в  $PrCu_2$  при температурах  $< 54$  мК - можно провести на 30-метровой базе импульсного реактора ИБР-30, используя  $^3He/^4He$ -криостат, созданный в ЛНФ /16/. Такие исследования удобно провести на относительно больших поликристаллических образцах  $PrCu_2$ .

Интегральную интенсивность  $\Sigma N$  отражения  $hke$  записываем, как обычно, в виде

$$\Sigma N = I(\lambda) \cdot \lambda^4 \cdot \frac{V \cdot F_{hke}^2}{L(\theta) \cdot A(\theta) \cdot v_0^2} \quad /14/$$

Здесь  $I(\lambda)$  - падающий поток,  $V$  - объем образца,  $L(\theta)$  - геометрический фактор,  $A(\theta)$  - поправка на поглощение,  $v_0$  - объем элементарной ячейки,  $F_{hke}$  - выписанный в /11/ структурный фактор. При этом метод времени пролета имеет большое преимущество по сравнению с известным методом на стационарном реакторе, так как полная нейтронограмма наблюдается при одном угле рассеяния с очень хорошим разрешением при больших длинах волн  $\lambda / \Delta\lambda / \lambda$  до  $10^{-3}$  при  $\lambda = 4 \text{ \AA}$ . Кроме того, эффективный поток  $I(\lambda) \cdot \lambda^4$  в методе времени пролета практически не падает для больших  $\lambda$ , для которых разрешение улучшается. Хорошее разрешение существенно для таких структур /низкой симметрии/, как  $PrCu_2$ .

За ценные обсуждения авторы благодарны Г.Акопяну, В.П.Алфименкову, И.М.Франку, **Ф.Л.Шапиро** и К.Эльку.

#### Литература

1. K.Andres, E.Bucher. Journ.Appl.Phys., 42, 1522 (1971).
2. K.Andres et al. Phys.Rev.Lett., 28, 1652 (1972).
3. K.Andres, E.Bucher. Journ. of Low Temp. Phys., 9, 267 (1972).
4. M.Chapellier, M.Goldman et al. Journ.Appl.Phys., 41, No. 3, 849 (1970).
5. M.Goldman, A.Abragam et al. C.R. Acad.Sc.Paris., 268B, 1530 (1969).
6. A.Abragam, G.L.Bacchella et al. Phys.Rev.Lett., 28, 805 (1972).
7. М.М.Зарипов. Изв. АН СССР, сер.физ., 20, 1220 /1956/.
8. С.А.Альтшулер. Письма ЖЭТФ, 3, 177 /1966/.
9. B.Bleaney. Proc.Roy.Soc., 276A, 19 (1963).
10. T.Murao. Journ. of Phys.Soc. Jap., 31, 683 (1971).
11. T.Murao. Journ. of Phys.Soc.Jap., 33, 33 (1972).
12. K.Andres, E.Bucher, S.Darack, J.P.Maita. Phys.Rev., B6, 2716 (1972).
13. R.I.Schermer, M.Blume. Phys. Rev., 166, 554 (1967).
14. G.Bacon. Neutron Diffraction. Oxford Press (1961).
15. Ю.А.Изюмов, Р.П.Озеров. Магнитная нейтронография, §19, изд. "Наука", Москва, 1966.
16. В.П.Алфименков и др. Препринт ОИЯИ, РЗ-6611, Дубна, 1972.

Рукопись поступила в издательский отдел  
26 марта 1973 года.