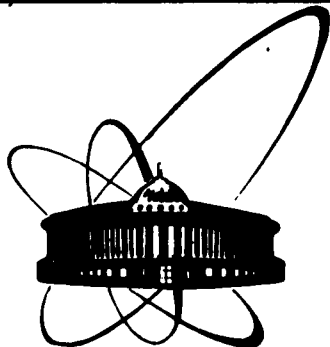


4460/82

20/ix-82



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-82-458

В.Л.Аксенов, Е.А.Горемычкин, Т.Фрауенхайм

ШИРИНЫ ЛИНИЙ МАГНИТНЫХ ЭКСИТОНОВ
В КУБИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ
ФАЗЫ ЛАВЕСА PrAl_2 , PrNi_2

Направлено в журнал
"Физика металлов и металловедение"

1982

ми. В то же время фазовый переход в ферромагнитное состояние в PrAl_2 сопровождается резким уменьшением ширины пиков. Возникают два вопроса: во-первых, в чем причина необычно широких пиков в парафазе и, во-вторых, почему ширина пиков резко меняется при переходе в феррофазу в PrAl_2 .

ШИРИНЫ ЛИНИЙ МАГНИТНЫХ ЭКСИТОНОВ

При рассеянии нейтронов на поликристалле в условиях рассматриваемых экспериментов спектр рассеянных нейтронов получается усредненным по векторам передачи импульса. Поэтому при обсуждении ширин пиков прежде всего необходимо учесть дисперсию магнитных возбуждений, обусловленную эффективными обменными взаимодействиями редкоземельных ионов. Экспериментальное наблюдение дисперсии в монокристалле PrAl_2 ^{/10/} и оценка величины дисперсии для PrNi_2 в приближении хаотических фаз показывают, что максимальный ее вклад в ширину пиков составляет $\sim 0,5$ мэВ.

Обменное взаимодействие приводит к взаимодействию магнитных экситонов и, следовательно, их затуханию, что также дает вклад в ширину линий. Однако в металлических соединениях более важными в этом смысле являются возбуждения электрон-дырочных пар за счет взаимодействия электронов проводимости с $4f$ -электронами^{/5/}, гамильтониан которого в локальном приближении имеет вид

$$\hat{H}_{s-f} = - \sum_i I_{s-f} \vec{J}_i \vec{\sigma}_i \quad /2/$$

В /2/ $\vec{\sigma}_i$ - спиновая плотность электронов проводимости вокруг редкоземельного иона с полным моментом количества движения \vec{J}_i на узле i . Рассмотрим более подробно вклад этого механизма в ширину линий. Пользуясь стандартной процедурой^{/5,11/}, одноионный гамильтониан системы редкоземельных ионов представим в виде

$$H_0 = \sum_n \omega_n K_{nn} \quad /3/$$

где $K_{mn} = |m\rangle\langle n|$ - базисные операторы. Одноионные собственные значения энергии ω_n и соответствующие волновые функции определяются в результате диагонализации одноионного одночастичного гамильтониана, включающего кубическое кристаллическое поле $H_{\text{кп}}$ и молекулярное магнитное поле H_M , при известных параметрах кристаллического и молекулярного полей. Разлагая локальные спиновые

операторы относительно базиса операторов K_{mn} : $\hat{A} = \sum_{mn} \hat{A}_{mn} K_{mn}$, получаем гамильтониан взаимодействия:

$$H_{s-f} = - \sum_i I_{s-f} \sum_{m,n} \langle m | \vec{J}_i | n \rangle K_{mn}^{(i)} \vec{\sigma}_i \quad /4/$$

Для электронов проводимости используем приближение свободных электронов:

$$H_s = \sum_{\vec{k}\alpha} \epsilon_{\vec{k}} a_{\vec{k}\alpha}^+ a_{\vec{k}\alpha} \quad /5/$$

где $a_{\vec{k}\alpha}^+$, $a_{\vec{k}\alpha}$ - операторы рождения и уничтожения электронов, которые определяют спин в /2/, /5/ следующим образом:

$$\vec{\sigma}_i = \sum_{\vec{k}\alpha\beta} \vec{\sigma}_{\alpha\beta}^i a_{\vec{k}+\vec{q}\alpha}^+ a_{\vec{k}\beta}$$

Гамильтониан модели представляет собой сумму выражений /3/-/5/: $H = H_0 + H_s + H_{s-f}$. Дважды дифференциальное сечение рассеяния нейтронов

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \sim \text{Im} G(\vec{q}, \omega + i\epsilon) \quad /6/$$

где $G(\vec{q}, \omega) = \langle\langle J_{\vec{q}}^+ | J_{-\vec{q}}^- \rangle\rangle_{\omega}$ - фурье-образ двухвременной функции Грина локализованных f -электронов. В базисе операторов K_{mn}

$$G(\vec{q}, \omega) = \sum_{mn, m'n'} G_{mn, m'n'}(\vec{q}, \omega) = \sum_{mn, m'n'} \langle\langle J_{mn}^+ K_{mn} | J_{m'n'}^- K_{m'n'} \rangle\rangle_{\vec{q}, \omega} \quad /7/$$

Функцию Грина $G_{mn, m'n'}(\omega)$ вычислим, используя технику дифференцирования по двум временам в методе уравнений движения для двухвременных функций Грина^{/11/}. Используя гамильтониан /3/-/5/ и коммутационные соотношения для базисных операторов в виде

$$[K_{mn}, K_{m'n'}] = K_{mn} \delta_{nm'} - K_{m'n'} \delta_{mn}$$

получаем уравнение для функции /7/:

$$G_{mn, m'n'}(\omega) = \frac{J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n) \delta_{m'n'} \delta_{n'm}}{\omega - \omega_{nm}} + \frac{I_{s-f}^2 J_{nm}^+ J_{m'n'}^-}{(\omega - \omega_{nm})(-\omega - \omega_{n'm'})} \sum_{\alpha, \beta = +, -, z} \{ J_{n'm}^{\alpha} J_{nm'}^{\beta} (F_{n'm'}^{\alpha\beta} + F_{nm'}^{\alpha\beta}) + \sum_t [(J_{nt}^{\alpha} J_{tm'}^{\beta}) F_{mt}^{\alpha\beta} + (J_{tm}^{\alpha} J_{n't}^{\beta}) F_{tn}^{\alpha\beta}] \} \quad /8/$$

где введена функция Грина:

$$F_{mn}^{\alpha\beta}(\omega) = \langle\langle K_{mn} \sigma^{\alpha} | \sigma^{\beta} K_{nm} \rangle\rangle_{\omega} \quad /9/$$

$f_n = \exp(-\omega_n/T) / \sum_n \exp(-\omega_n/T)$ - числа заполнения одноионных состояний.

Ограничимся в уравнении /8/ учетом квадратичных по взаимодействию I_{s-f} членов. Тогда основной вклад будут давать симметричные функции Грина $G_{mn, nm}$, поскольку при $m' \neq n$, $n' \neq m$ в уравнении /8/ неоднородный член отсутствует и $G_{mn, m'n'} \sim I_{s-f}^2$. Уравне-

ние /8/ для симметричной функции Грина можно представить в виде уравнения Дайсона /см. /11/ /:

$$G_{mn,nm}(\omega) = G_{mn,nm}^0(\omega) + G_{mn,nm}^0(\omega) M_{mn}(\omega) G_{mn,nm}(\omega), \quad /10/$$

где массовый оператор

$$M_{mn}(\omega) = \frac{I_{s-f}^2 \sum_{\alpha\beta} \{ 2J_{mn}^\alpha J_{nm}^\beta F_{mn}^{\alpha\beta}(\omega) + \sum_t [J_{nt}^\alpha J_{tn}^\beta F_{mt}^{\alpha\beta} + J_{tm}^\alpha J_{tm}^\beta F_{tn}^{\alpha\beta}(\omega)] \}}{J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n)^2} \quad /11/$$

определяется функцией Грина /9/, вычисленной в нулевом порядке по I_{s-f} , то есть для гамильтониана $H = H_0 + H_s$.

$$F_{mn}^{\alpha\beta} = \sum_{\bar{k}\bar{q}} \frac{f_m P_{\bar{k}} (1 - P_{\bar{k}+\bar{q}}) - f_n P_{\bar{k}+\bar{q}} (1 - P_{\bar{k}})}{\omega - \omega_{nm} - \epsilon_{\bar{k}+\bar{q}} + \epsilon_{\bar{k}}}, \quad /12/$$

где $P_{\bar{k}}$ - функция распределения Ферми. В предположении о свободных электронах проводимости мнимая часть выражения /12/ имеет вид

$$\text{Im} F_{mn} = \pi f_n N^2(0) (\omega - \omega_{mn}) \frac{1 - \exp(-\omega/T)}{1 - \exp((\omega_{mn} - \omega)/T)}, \quad /13/$$

где $N(0)$ - плотность состояний на уровне Ферми.

$\bar{b} /i\bar{u}/$ введены также матричные элементы нулевой функции Грина:

$$G_{mn,nm}^0 = \frac{J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n)}{\omega - \omega_{nm}} \quad /14/$$

Используя выражения /6/, /7/, /10/, получаем сечение рассеяния:

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega d\omega} \sim \sum_{mn} \frac{J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n) \gamma_{mn}}{[\omega - (\omega_{nm} + \Delta_{nm})]^2 - \gamma_{mn}^2}, \quad /15/$$

где $\Delta_{nm} = J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n) \text{Re} M_{mn}$ - энергетический сдвиг, который в первом приближении можно включить в энергию перехода между уровнями кристаллического поля:

$$\omega_{nm} \rightarrow \tilde{\omega}_{nm} = \omega_{nm} + \Delta_{nm}; \quad /16/$$

$$\gamma_{mn} = J_{mn}^+ J_{nm}^- (f_m - f_n) \text{Im} M_{mn}(\omega + i\epsilon)$$

определяет ширину линий магнитных экситонов и, как видно, зависит от взаимодействия $4f$ -электронов с электронами проводимости и заселенности уровней.

Обсудим теперь на основе выражения /16/ экспериментальные результаты для PrAl_2 и PrNi_2 .

A. PrAl_2

Рассмотрим ферромагнитную фазу. Используя /16/ и /11/-/13/, получаем

$$\gamma(J_{14}^+) = \pi [I_{s-f} N(0)]^2 \times (1,99 \cdot \delta_{4,1} + 14,11 \cdot \delta_{4,2} + 11,7 \cdot \delta_{4,3} + 17,22 T),$$

$$\gamma(J_{13}^-) = \pi [I_{s-f} N(0)]^2 \times (0,53 \cdot \delta_{3,1} + 16,1 \cdot \delta_{3,2} + 16,81 \cdot \delta_{5,3} + 15,96 T), \quad /17/$$

$$\gamma(J_{15}^z) = \pi [I_{s-f} N(0)]^2 \times (0,15 \cdot \delta_{5,1} + 16,8 \cdot \delta_{5,3} + 11,7 \cdot \delta_{5,4} + 15,05 T).$$

Величина $I_{s-f} N(0) = 0,06$, по данным работы /12/, где она определялась для изоструктурного соединения $(\text{LaCe})\text{Al}_2$. Подставляя в /17/ энергии уровней КЭП, получаем при $T \leq 25$ К

$$\gamma(J_{14}^+) = \gamma(J_{13}^-) \approx 0,98 + 0,24 T,$$

/18/

$$\gamma(J_{15}^z) \approx 0,87 + 0,24 T,$$

где $T [\text{мэВ}] = T [\text{К}] / 11,605$.

В парамагнитной фазе расстояние между вырожденным дублетом Γ_3 и триплетом Γ_4 резко уменьшается. Причем это расстояние - порядка тепловой энергии электронов в парафазе, поэтому все уровни дублетного и триплетного состояний заселены примерно одинаково. Энергии переходов между состояниями δ одинаковы, одинаковы и их ширины. Так, для переходов $J_{\Gamma_3}^+ - \Gamma_4$ и $J_{\Gamma_3}^- - \Gamma_4$ $\delta_{4,1} = \delta_{3,2} = 2,36$ мэВ и $\gamma(J_{\Gamma_3}^+ - \Gamma_4) = \gamma(J_{\Gamma_3}^- - \Gamma_4)$. Тогда согласно /15/, /16/

$$\gamma(J_{\Gamma_3}^+ - \Gamma_4) = \gamma(J_{\Gamma_3}^- - \Gamma_4) = \gamma(J_{14}^+) + \gamma(J_{13}^-).$$

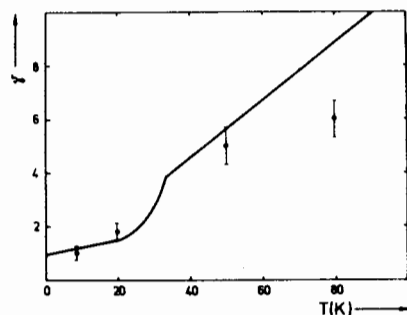
В результате получаем

$$\gamma(J_{\Gamma_3}^+ - \Gamma_4) = \gamma(J_{\Gamma_3}^- - \Gamma_4) = 2\pi [I_{s-f} N(0)]^2 \{ 0,75 T + 18,65 \cdot \delta \times \frac{1 + 1,25 \exp(-\delta/T)}{1 - \exp(-\delta/T)} \}. \quad /19/$$

Аналогично для перехода $\Gamma_3 - \Gamma_5$

$$\gamma(J_{\Gamma_3}^+ - \Gamma_5) = \gamma(J_{\Gamma_3}^- - \Gamma_5) = 2\pi [I_{s-f} N(0)]^2 \{ 20,7 T + 15,14 \cdot \delta \times \frac{1 + 1,25 \exp(-\delta/T)}{1 - \exp(-\delta/T)} \}. \quad /20/$$

Рис.2. Зависимость ширины линий магнитных возбуждений в PrAl_2 от температуры /сплошная линия/, точки - экспериментальные значения ширины γ в миллиэлектронвольтах.



На рис.2 приведена температурная зависимость ширины линий, вычисленная по формулам /18/-/20/, в сравнении с экспериментальными данными ($\gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_4^+}) \approx \gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_5^+})$).

Б. PrNi_2

Используя выражения для ширины линий /20/, /19/, получаем

$$\gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_5^+}) \approx \gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_4^+}) \approx 1,6 \text{ мэВ при } T=10 \text{ К,} \quad /21/$$

$$\gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_5^+}) \approx \gamma(J_{\Gamma_3^+ - \Gamma_4^+}) \approx 8,2 \text{ мэВ при } T=80 \text{ К.}$$

При выводе /21/ мы использовали оценку для $I_{s-f} N(0) = 0,07$, полученную из анализа данных по измерению термо-ЭДС.

Рассмотрим еще один механизм уширения линий, обусловленный магнитовибрационным взаимодействием. Используем гамильтониан вида /11/:

$$H_{f-ph} = W_1 \sum_{\vec{q}j} A_{\vec{q}j} V_1 (J_i, \vec{q}j) e^{i\vec{q}\vec{R}_i}, \quad /22/$$

где $A_{\vec{q}j} = \frac{1}{2}(b_{\vec{q}j}^+ + b_{-\vec{q}j}^+)$, $b_{\vec{q}j}^+$, $b_{\vec{q}j}$ - операторы рождения и уничтожения фононов; V_1 - квадрупольный оператор типа $J_i^x J_i^z + J_i^z J_i^x$ /для направления 001/ и W_1 - параметр магнитовибрационного взаимодействия, который для PrAl_2 равен $W_1 = 0,1 \text{ мэВ}^{11/}$. В базе операторов K_{mn} гамильтониан /22/ имеет вид

$$H_{f-ph} = W_1 \sum_{\vec{q}j} A_{\vec{q}j} \sum_{mn} \langle m | V_1 (J_i, \vec{q}j) | n \rangle K_{mn}^{(i)} e^{i\vec{q}\vec{R}_i}. \quad /23/$$

Фононы будем учитывать в гармоническом приближении. Вычисляя функцию Грина /6/ для спин-фононной системы аналогично предыдущему случаю /детали см. в работе /11/, получаем в дебаевском приближении для фононного спектра PrAl_2 величины ширины линий:

$$\begin{aligned} \gamma(J_{13^-}) \approx \gamma(J_{14^+}) / T=20 \text{ К} / &= 2,4 \text{ мкэВ,} \\ \gamma_{\Gamma_3 - \Gamma_4} / T=50 \text{ К} / &= 3,6 \text{ мкэВ.} \end{aligned} \quad /24/$$

ОБСУЖДЕНИЕ

Сравним теоретические оценки с данными эксперимента. Как видно из рис.2, в PrAl_2 anomalous уширение линий магнитных экситонов в парафазе качественно хорошо объясняется механизмом взаимодействия f-электронов с электронами проводимости или, другими словами, механизмом распада магнитных экситонов на возбуждения электрон-дырка в море свободных электронов. Скачок в ширине линий при переходе из феррофазы в парафазу возникает в результате полного изменения схемы уровней 4f-электронов и изменения заселенности этих уровней. Ширины линий магнитных экситонов определяются величиной расщепления δ , которая резко меняется при фазовом переходе.

В случае PrNi_2 рассчитанная ширина линий γ линейно уменьшается при понижении температуры. В области температур выше 30 К у качественно согласуется с экспериментальными данными. Однако при низких температурах такого согласия нет: $\gamma_{\text{теор.}} / 10 \text{ К} / \approx 1,6 \text{ мэВ}$, $\gamma_{\text{эксп.}} / 10 \text{ К} / \approx 6,0 \text{ мэВ}$. Это говорит о том, что в низкотемпературной области механизм s-f обмена не является ответственным за уширение линий. В настоящее время не ясно, чем вызвано столь сильное затухание магнитных экситонов в низкотемпературной области. Возможно, это связано с влиянием d-электронов никеля. Однако характер их поведения в PrNi_2 еще недостаточно изучен, чтобы делать какие-либо заключения. Другой возможной причиной этого эффекта является проявление релаксационных эффектов, наблюдаемых /3/ при низкотемпературном смешанном электронно-ядерном магнитном переходе. Для выяснения этого вопроса требуются более детальные исследования в области низких температур.

ЛИТЕРАТУРА

1. Андреефф А. и др. ЭЧАЯ, 1981, т.12, вып.2, с.277.
2. Fulde E. In: Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths (Eds. K.A.Gschneider and Eyring L.). North-Holland Publishing Company, 1978, p.287.
3. Greidanus F.J.A.M. Abstracts IV Int.Conf. on Crystal Field and Structural Effects in f-Electron Systems. Wroclaw, 1981, p.22; Greidanus F.J.A.M. et al. Physica B+C, 1982, vol.112, p.92.
4. Hutchings M.T. Solid State Physics, 1964, 16, p.227.
5. Becker K.W., Fulde P., Keller J. Z.Phys.B, 1977, vol.28, p.9; Becker K.W., Fulde P. In: Crystal Field in Metals and Alloys. Plenum Press, N.Y., 1977, p.284.
6. Gross W. et al. Z.Phys.B, 1980, vol.37, p.123.
7. Loewenhaupt M. In: Crystalline Electric Field and Structural Effects in f-Electron Systems. Plenum Press, N.Y., 1980, p.589-605.

8. Hennig K. et al. Sol.St.Comm., 1979, vol.21, p.297.
9. Frauenheim T., Matz W., Feller G. Sol.St.Comm., 1979, vol.29, p.805.
10. Purwins H.-G. et al. AIP Conf. Proc., 1976, No.29, p.259.
11. Aksenov V.L. et al. J.Phys.F: Metal Phys., 1981, vol.11, p.905.
12. Loewenhaupt M., Steglich F. In: Crystal Field Effects in Metal and Alloys. (Ed. A.Furrer). Plenum Press, N.Y., 1977.

Аксенов В.Л. и др. P14-82-458
 Ширины линий магнитных экситонов в кубических соединениях фазы Лавеса PrAl_2 , PrNi_2

На основе данных по неупругому рассеянию нейтронов рассмотрена температурная зависимость ширин линий локализованных магнитных экситонов в редкоземельных интерметаллидах PrAl_2 и PrNi_2 с помощью модели s-f обмена.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Aksenov V.L. et al. P14-82-458
 Magnetic Exciton Line Widths in Cubic Compounds of Laves Phase PrAl_2 , PrNi_2

On the base of experimental data on neutron inelastic scattering a temperature dependence of line widths of localized magnetic excitations in rare Earth's intermetallics PrAl_2 and PrNi_2 by means of s-f exchange model is considered.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Рукопись поступила в издательский отдел
 16 июня 1982 года.

Р Перевод О.С.Виноградовой.