

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



1/XI - 76

Д-772

P14 - 9907

4323/2-76

В. Дрэксель, П. Зайферт, Л. П. Каун, Б. Липпольд,
З. Маттхиз, В. Матц, Н. И. Морева, К. Хенниг

КРИСТАЛЛИЧЕСКИЕ УРОВНИ Pr^{3+} В PrAl_2 ,
ОПРЕДЕЛЕННЫЕ МЕТОДОМ
НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

1976

P14 - 9907

В.Дрэксель,¹ П.Зайферт,¹ Л.П.Каун, Б.Липпольд,
З.Маттхиз, В.Матц, Н.И.Морева,² К.Хенниг

КРИСТАЛЛИЧЕСКИЕ УРОВНИ Pr^{3+} В PrAl_2 ,
ОПРЕДЕЛЕННЫЕ МЕТОДОМ
НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

Направлено в "Solid State Communications"

¹ Институт Лауэ-Ланжевена, Гренобль, Франция.

² Государственный Ордена Октябрьской революции
Научно-исследовательский и проектный институт
редкометаллической промышленности "ГИРЕДМЕТ",
Москва.



В кубической фазе Лавеса (C15) PrAl_2 ^{/1/}, как и во многих других соединениях редкоземельных элементов, эффекты электростатического кристаллического поля играют важную роль для понимания их макроскопических свойств^{/2/}. Часто из измерений макроскопических свойств, таких, как намагниченность^{/3,4/}, удельная теплоемкость^{/5/} и др., невозможно получить надежную информацию об энергиях и собственных функциях уровней электрического кристаллического поля. Эти уровни получаются в результате расщепления основного мультиплета ($^3\text{H}_4$) иона Pr^{3+} в кристаллическом поле PrAl_2 с кубической точечной симметрией T_d для иона Pr. В настоящей работе сообщается о прямых исследованиях кристаллических уровней в PrAl_2 методом неупругого рассеяния нейтронов.

Поликристаллический образец PrAl_2 был изготовлен из Pr с чистотой 99,9% и Al с чистотой 99,99% методом дуговой плавки в Государственном институте редких металлов /Москва/. Дифракционная нейтронограмма образца указывала на отсутствие других фаз системы Pr-Al.

Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов проводились методом времени пролета. На *рис. 1* показаны спектры, полученные при температурах 300 и 80 K на спектрометре обратной геометрии с бериллиевым фильтром перед детектором^{/6/} на импульсном реакторе ИБР-30 в ОИЯИ. Буквой S обозначены положения так называемых сателлитов быстрых нейтронов, типичных для реактора типа ИБР. На *рис. 2* показаны спектры, полученные при температурах 7,7, 20, 30 и 50 K на спектрометре IN4 в Институте Лауэ-Ланжевена в Грe-

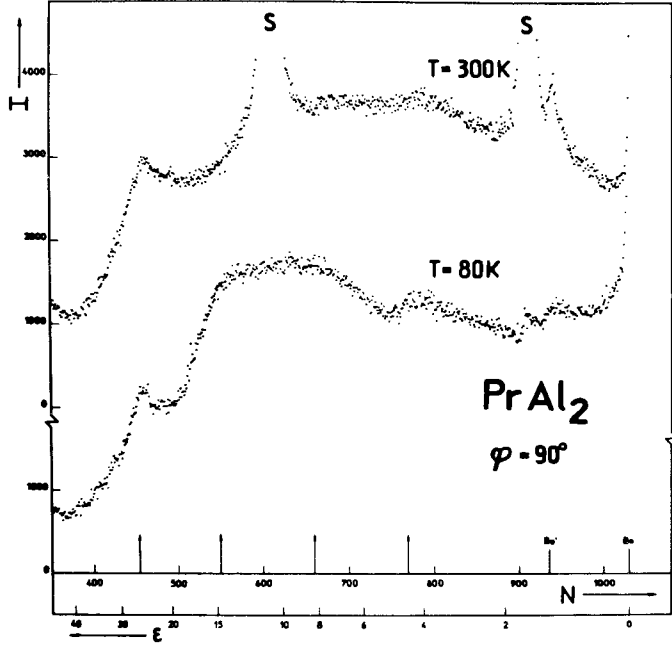


Рис. 1. Спектры неупругорассеянных нейтронов в PrAl_2 при угле рассеяния $\phi = 90^\circ$. N - номер канала с шириной канала 32 мкс, ϵ - энергия передачи в мэВ; I - интенсивность на канал за 80 часов; Ве и Ве' - бериллиевая граница и предграница, соответственно, S - сателлиты быстрых нейтронов.

нобле /7/. Данные после учета фона были пересчитаны на линейную энергетическую шкалу и умножены на фактор k/k' / k и k' - волновые векторы соответственно падающих и рассеянных нейтронов/. Спектры представляют собой сумму по всем детекторам в области углов рассеяния от 9 до 43° . Энергия падающих нейтронов $E_0 = 22,2$ мэВ. В табл. 1 даны энергии всех наблюдавшихся пиков. Положение пиков и ошибки определялись непосредственно из экспериментального спектра без дополнительной процедуры подгонки. Качественно спектры можно охарактеризовать следующим образом: при низких температурах наблюдаются хорошо разделенные пики,

Таблица
Энергии пиков, наблюдаемые в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов на PrAl_2

Температура в К	7,7	20	30 и 50	80	300
Энергии в мэВ	4,5+0,2 6,2+0,2 8,2+0,2 8,7+0,2 12,5+0,3 15,2+0,6 22,0+1,0*	4,5+0,2 6,2+0,5 8,2+0,3 8,7+0,3 12,5+0,3 15,2+0,6	4,5+0,4	4,4+0,2 8,2+0,3 14,7+0,4 24,4+0,7	4,2+0,3 24,0+0,6

*Из дополнительного эксперимента при $E_0 = 50$ мэВ

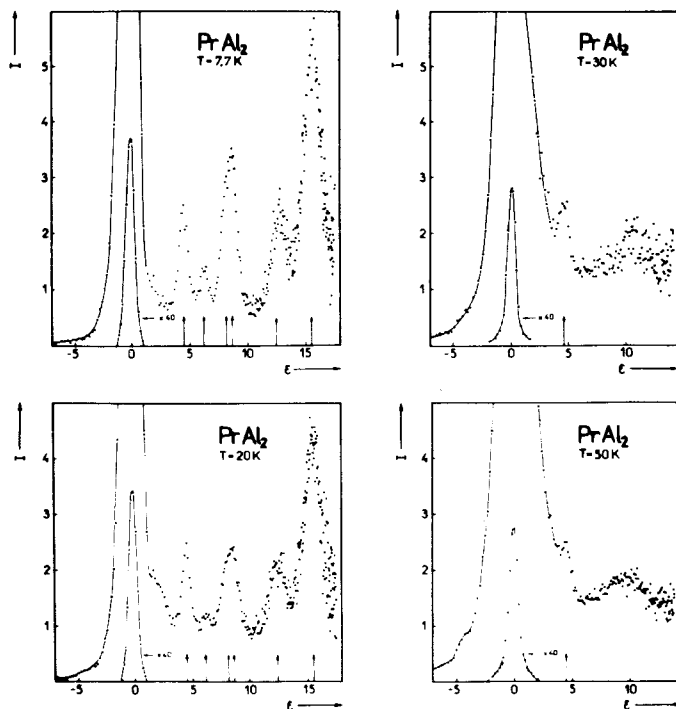


Рис. 2. Энергетические спектры неупругорассеянных нейтронов в PrAl_2 при различных температурах /см. текст/. ϵ - энергия передачи в мэВ. I - интенсивность в произвольных единицах.

которые при температуре $\geq 30 \text{ K}$ заметно уширяются, за исключением пика при 4,5 мэВ.

При интерпретации возникает вопрос, какие из пиков вызываются переходами между кристаллическими уровнями и какие - другими процессами рассеяния? Из анализа изменения интенсивности пика в зависимости от изменения температуры и угла рассеяния можно отличить вклад фононов от вклада переходов в кристаллическом поле. Интенсивность пиков от рассеяния на фононах пропорциональна Q^2 , и рассеяние описывается статистикой Бозе. С другой стороны, интенсивность от рассеяния, вызванная переходами в кристаллическом поле, пропорциональна

$f^2(Q)$ и описывается статистикой Больцмана. $\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}'$ - вектор рассеяния, а $f(Q)$ - магнитный формфактор иона Pr. На основе вышесказанного пика с энергиями 12,5, 22 и 25 мэВ можно приписать фононам. Однозначная идентификация 4,5 мэВ пика на основании этих аргументов оказывается, однако, невозможной. В кристаллической структуре C15 атомы Al выстроены в регулярные тетраэдры /1/. Возможно, эти тетраэдры совершают колебания при малых энергиях подобно так называемой кагомэ-ветви в фазе Лавеса MgZn_2 /8/, вызывая пик при 4,5 мэВ. В последующем мы будем рассматривать пики с энергиями 6,2, 8,2, 8,7, 14,7 /15,2/ мэВ как пики, вызванные переходами между кристаллическими уровнями.

PrAl_2 упорядочивается ферромагнитно при $T_c = 34 \text{ K}$ вдоль направления $\langle 100 \rangle$. Разрешенные пики от переходов в кристаллическом поле в наших экспериментах видны при температурах ниже магнитного фазового перехода. Поэтому гамильтониан можно записать в виде суммы двух членов: вклад от кубического кристаллического поля и обменного взаимодействия. В приближении молекулярного поля одноионный гамильтониан имеет вид

$$H = W \left[\frac{x}{F(4)} (O_4^0 + 5O_4^4) + \frac{1 - |x|}{F(6)} (O_6^0 - 21O_6^4) \right] + g\mu_B J_z H_M^z,$$

где x и W - параметры Ли-Лиск-Вольфа /10/, O_l^m - операторы Стивенса /11/, H_M - молекулярное поле, J_z - момент иона Pr в направлении ферромагнитного порядка /взято направление z / и $F(4)$, $F(6)$ - константы /10/. Гамильтониан диагонализировался в зависимости от параметров x и $y = g\mu_B H_M^z$. Масштабный фактор W брался для этой процедуры равным 1 мэВ. Наряду с собственными значениями мы посчитали собственные функции для определения вероятности переходов и магнитных моментов кристаллических уровней.

Из магнитных измерений известно, что магнитный момент Pr при $T = 0 \text{ K}$ равен $2,88 \mu_B / 4$. Это ограничивает выбор возможных основных состояний. Величину момента и наши экспериментальные данные можно объяснить следующим набором параметров: $x = -0,58 \pm 0,02$;

$W = /-0,48 \pm 0,02/ \text{ мэВ}$. $H_M = /480 \pm 50/ \text{ кЭ}$. Это означает, что основное состояние - немагнитный дублет Γ_3 в парамагнитной области. Для параметров кристаллического поля B_4 и B_6 ^{/10/} получаем:

$$B_4 = \frac{Wx}{F(4)} = (47,2 \pm 4,0) \cdot 10^{-4} \text{ мэВ}$$

$$B_6 = \frac{W(1 - |x|)}{F(6)} = - (156 \pm 12) \cdot 10^{-6} \text{ мэВ}.$$

Константа молекулярного поля

$$\lambda = \frac{H_M}{g\mu_B \langle J \rangle} = (208 \pm 22) \text{ кЭ} / \mu_B.$$

Наши результаты, которым в парамагнитной области соответствует схема энергетических уровней $\Gamma_3(0)$, $\Gamma_5 / 8,2 \text{ мэВ}/$, $\Gamma_4 / 15 \text{ мэВ}/$, $\Gamma_1 / 36 \text{ мэВ}/$, находятся в разногласии с энергиями кристаллических уровней, определенных в работе ^{/3/} из измерений намагниченности. Полное расщепление кристаллическим полем в работе ^{/3/} меньше 3 мэВ . Другая схема энергий кристаллических уровней ^{/12/} дает значения для B_4 и B_6 , сравнимые с нашими результатами, только B_4 имеет обратный знак. Наблюдаемое уширение пиков от переходов в кристаллическом поле в парамагнитной области можно объяснить динамическим эффектом Зеемана ^{/13/}. Грубая оценка уширения воспроизводит качественно экспериментальные результаты. Чтобы объяснить неожиданное исчезновение пика при $12,5 \text{ мэВ}$ при температурах выше T_c , необходимо провести измерения на монокристаллах.

К.Х. благодарит руководство ИЛЛ за гостеприимство. Авторы благодарны Ю.М.Останевичу и Л.Черу за полезные дискуссии.

Литература

1. J.H.Wernick, S.Geller. Trans.Met.Soc., AIME 218, 866 (1960).
2. W.E.Wallace. Rare Earth Intermetallics, Academic Press New York, 1972.
3. K.H.Mader, E.Segal, W.E.Wallace. J.Phys.Chem.Solids, 30, 1 (1969).
4. H.G.Purwins, E.Walker, B.Barbara, M.F.Rossignol, P.Bak. J.Phys.C (Solid State Phys.) 7, 3573 (1974).
5. C.Deenadas, A.W.Thompson, R.S.Craig, W.E.Wallace. J.Phys.Chem.Solids, 32, 1853 (1971).
6. K.Parlinski, M.Sudnik-Hryniewicz, A.Bajorek, J.A.Janik, W.Olejarczyk in "Research Applications of Nuclear Pulsed Systems" IAEA Vienna 1967, p.179.
7. Neutron Beam Facilities at the HFR Available for Users, ILL Grenoble, 1973.
8. H.Eschrig, K.Feldmann, K.Hennig, L.Weiss in "Inelastic Neutron Scattering" (Proc. Symp. Grenoble, 1972). IAEA Vienna 1972, p.157.
9. N.Nereson, C.Olsen, G.Arnold. J.Appl. Phys., 39, 4605 (1968).
10. K.R.Lea, M.J.M.Leask, W.P.Wolf. J.Phys.Chem.Solids, 23, 1381 (1962).
11. K.W.H.Stevens. Proc. Phys.Soc., A65, 209 (1952).
12. P.Bak. Risø-Report No.312 (1974).
13. A.Furrer, H.Heer. Phys.Rev.Lett., 31, 1350 (1973).

Рукопись поступила в издательский отдел
25 июня 1976 года.