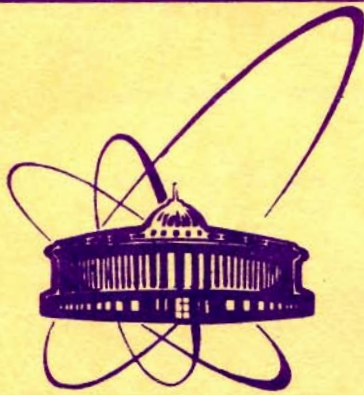


e



объединенный  
институт  
ядерных  
исследований  
дубна

1089/2-80

18/3-80

P17 - 12962

В.Л.Аксенов, Н.М.Плакида, Т.Фрауенхайм,  
Ю.Шрайбер

МАГНИТО-ВИБРАЦИОННЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ  
В СОЕДИНЕНИЯХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ МЕТАЛЛОВ

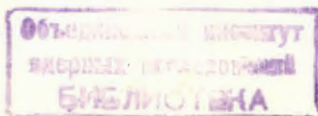
*Направлено в "Journal of Physics F: Metal Physics"*

1979

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время наблюдается большой интерес к проблеме магнитных возбуждений в редкоземельных металлах /РЗМ/ и их соединениях /1/. Наиболее полную информацию для понимания микроскопических свойств этих соединений дают исследования с помощью неупругого рассеяния нейтронов /2/. Измерение спектров магнитного рассеяния в ряде соединений /3-8/ показывает, что для адекватного описания экспериментальных результатов кроме энергии кристаллического поля и изотропного магнитного обмена необходимо учитывать и другие взаимодействия РЗ ионов с окружением. Прежде всего, это - магнитоупругое взаимодействие, которое испытывают РЗ ионы в результате колебаний решетки. Такое взаимодействие может приводить к смешиванию магнитных возбуждений с акустическими фононами. Возможность этого эффекта при наличии магнитного поля /внешнего или эффективного в феррофазе/ обсуждалась в работе /7/.

В настоящей работе развит основанный на методе уравнений движения для двухвременных функций Грина /ФГ/ /8/ новый подход к описанию спектра коллективных возбуждений в модели редкоземельных интерметаллических соединений с учетом магнитоупругого взаимодействия. Получено уравнение Дайсона для однофононной ФГ в приближении типа хаотических фаз. Показано, что в спектре коллективных возбуждений могут возникать смешанные магнитовибрационные возбуждения как в ферро-, так и в парафазе без внешнего магнитного поля, что зависит от симметрии решетки и взаимодействия. В качестве примеров рассмотрены модельные системы кубической симметрии с немагнитным основным состоянием. Вычисленная дисперсионная зависимость магнитовибрационных возбуждений в ферромагнитной фазе  $\text{PrAl}_2$  /полный момент  $J = 4$ / хорошо согласуется с экспериментальной /8/. Обсуждается возможная интерпретация экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов на парамагнетике Ван Флека  $\text{PrAl}_3$ .



## 2. ГАМИЛЬТониан МОДЕЛИ

При описании РЗМ обычно исходят из модельных представлений, основанных на том, что магнитный момент определяется только локализованными  $4f$  электронами РЗ ионов. Взаимодействие  $4f$  электронов с окружением РЗ ионов может быть представлено электростатическим потенциалом /кристаллическое поле/, который приводит к расщеплению мультиплетов свободного иона. Разложение потенциальной энергии иона в кристаллическом поле по деформациям решетки в простейшем виде приводит к гамильтониану /1,7/:

$$H_{\text{кп}} = H_{\text{кп}}^{\circ}(\vec{J}_i) + W_1 \sum_{q\mu} A_{q\mu} V_1(\vec{J}_i, q\mu) e^{i\vec{q}\vec{R}_i} + \\ + W_2 \sum_{q\mu, q'\mu'} A_{q\mu} A_{q'\mu'} V_2(\vec{J}_i, q\mu, q'\mu') e^{i(\vec{q}-\vec{q}')\vec{R}_i} \quad /1/$$

где  $H_{\text{кп}}^{\circ}(\vec{J}_i)$  - энергия иона в кристаллическом поле на жесткой решетке, которую обычно представляют в виде суммы полиномов от проекций оператора полного момента  $J_i$ , вид этого представления зависит от симметрии решетки. Второй и третий члены в /1/ представляют магнитоупругое взаимодействие в результате деформации и вращения кристаллического поля,  $V_1, V_2$  - функции компонент оператора  $J_i$ , параметров кристаллического поля и параметров решетки;  $W_1, W_2$  - параметры магнитоупругого взаимодействия. Операторы  $A_{q\mu}^{\pm} = \frac{1}{2}(a_{q\mu}^{\pm} + a_{-q\mu}^{\pm})$ , где  $a_{q\mu}^{\pm}$  - операторы уничтожения и рождения акустических фононов с квазиимпульсом  $q$  и поляризацией  $\mu$ . Для описания фононов воспользуемся гармоническим приближением:

$$H_{\text{реш.}} = \sum_{q\mu} \omega_{q\mu}^{\circ} (a_{q\mu}^{\dagger} a_{q\mu} + \frac{1}{2}), \quad /2/$$

$\omega_{q\mu}^{\circ}$  - частоты колебаний решетки.

Взаимодействие  $4f$  электронов РЗ ионов с электронами проводимости приводит к эффективному взаимодействию между ионами, которое при учете только изотропного обменного взаимодействия имеет вид

$$H_{\text{М}} = -\frac{1}{2} \sum_{ij} I_{ij} \vec{J}_i \vec{J}_j \quad /3/$$

Таким образом, полный гамильтониан модели можно представить в виде

$$H = \sum_i H_{\text{кп}}^{\circ}(\vec{J}_i) + H_{\text{М}} + H_{\text{реш.}} + H_{\text{МВ}} \quad /4/$$

Эта простая модель позволяет интерпретировать результаты экспериментальных исследований магнитных возбудений в РЗ интерметаллических соединениях. Наиболее полную информацию о них можно получить с помощью рассеяния нейтронов. Рассеиваясь на такой системе, нейтроны будут испытывать как ядерное, так и магнитное рассеяние. При этом, если имеется магнитоупругое взаимодействие и возникают связанные магнитовибрационные возбудения, то эти возбудения будут одинаково проявляться как в ядерном, так и в магнитном рассеянии. Сечение рассеяния можно выразить /10/ через спиновую, в случае магнитного, и через фононную, в случае ядерного рассеяния, функцию Грина.

## 3. ОДНОФОНОННАЯ ФУНКЦИЯ ГРИНА

Введем однофононную двухвременную ФГ  $D_q(t-t')$ , согласно обозначениям  $\langle \langle V_1(\vec{J}_i, q, t); A_q^{\dagger}(t') \rangle \rangle$ . Уравнения движения для ее фурье-образа с гамильтонианом /4/ получаем в виде

$$\omega^2 D_q(\omega) = 2\omega_q^{\circ} + (\omega_q^{\circ})^2 D_q(\omega) + \\ + 2\omega_q^{\circ} \sum_i W_1 \langle \langle V_1(\vec{J}_i, q); A_q^{\dagger} \rangle \rangle_{\omega} e^{-i\vec{q}\vec{R}_i} + \\ + 2\omega_q^{\circ} \sum_{i,q'} W_2 \langle \langle [V_2(\vec{J}_i; q, q') + V_2(\vec{J}_i; q', q)] A_q^{\dagger} \rangle \rangle_{\omega} e^{-i(\vec{q}-\vec{q}')\vec{R}_i} \quad /5/$$

Вводя нулевую фононную ФГ

$$D_q^{\circ}(\omega) = \frac{2\omega_q^{\circ}}{\omega^2 - (\omega_q^{\circ})^2 - 4N\omega_q^{\circ} W_2 \langle V_2(\vec{J}_i; q, q) \rangle} \quad /6/$$

и дифференцируя ФГ  $\langle \langle V_1(\vec{J}_i, q, t); A_q^{\dagger}(t') \rangle \rangle$  по времени  $t'$ , получаем уравнение для ФГ  $D_q(\omega)$

$$D_q(\omega) = D_q^{\circ}(\omega) + D_q^{\circ}(\omega) P_q(\omega) D_q^{\circ}(\omega), \quad /7/$$

где поляризационный оператор

$$P_q(\omega) = \sum_{ij} W_1^2 \langle \langle V_1(\vec{J}_i, q); V_1(\vec{J}_j, q) \rangle \rangle_{\omega} e^{i\vec{q}(\vec{R}_i - \vec{R}_j)} \quad /8/$$

где  $D$  - определитель, а  $M_{ik}$  - алгебраическое дополнение матрицы  $(\hat{I} - \sum_{mn} g_{mn}^k \phi_{mn}^i)$ .

В принятом приближении учета взаимодействия порядка  $W_1^2$  ФГ  $G_{mn}^{V_1 V_1}(q, \omega)$  и определяет сильносвязанную часть поляризацонного оператора  $P_q$ . Следовательно, уравнение для однофононной ФГ принимает вид

$$D_q(\omega) = \{ [D_q^0(\omega)]^{-1} - W_1^2 \sum_{mn} G_{mn}^{V_1 V_1}(q, \omega) \}^{-1} \quad /16/$$

ФГ /15/ описывает возбуждения, возникающие в магнитной системе в результате деформации решетки. Отметим, что в отличие от работы /7/, где массовый оператор ФГ /9/ был приближенно вычислен при учете определенного класса диаграмм, полученное нами выражение /15/ является формально точным во втором порядке по  $W_1$ . Однако прямое сопоставление соответствующих выражений для массовых операторов затруднительно ввиду различного подхода при определении спиновых возбуждений.

В следующем разделе мы используем уравнение /16/ для вычисления энергии возбуждений в конкретных системах.

#### 4. МАГНИТОВИБРАЦИОННЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ

Рассмотрим интерметаллические соединения с кубической симметрией, имеющие два 4f электрона /полный момент  $J=4$  / и немагнитное основное состояние. Ограничимся случаем низких температур, когда основную роль играют переходы только на первый возбужденный уровень:  $\Gamma_1 - \Gamma_4$  или  $\Gamma_3 - \Gamma_4$ . Магнитоупругое взаимодействие в /1/ будем рассматривать как результат сдвиговой деформации в плоскости  $x-z$  ( $V_1(J_i, q) = (J_i^x J_i^z + J_i^z J_i^x)$ ).

Система  $\Gamma_1 - \Gamma_4$  была исследована в работе /7/, где был сделан вывод о том, что связанные магнито-вибрационные возбуждения возможны только при наличии магнитного поля.

##### 4.1. Ферромагнитная фаза

Рассмотрим в ферромагнитной фазе систему дублет-триплет  $\Gamma_3$  /уровни энергий 1,2/ -  $\Gamma_4$  /уровни энергий 3,4,5/. Для системы синглет-триплет  $\Gamma_1 - \Gamma_4$  качественно результаты те же самые/. При низких температурах возможны только поперечные  $J^\pm$  переходы с основного состояния между уровнями

1-3 и 1-4. Поскольку для дипольных переходов имеется правило отбора  $\Delta(M - M') = \pm 1$  / $M, M'$  - проекции полного момента/, то из симметрии волновых функций следует, что не равны нулю только матричные элементы  $J_{13}^-$ ,  $J_{31}^+$ ,  $J_{41}^-$  и  $J_{13}^+$ . Учитывая это и используя уравнения /15/, /16/, получаем уравнение для фононной ФГ:

$$D_q(\omega) = \frac{2\omega_q^0}{\omega^2 - (\omega_q^0)^2 - 4\omega_q^0 W_2 \langle V_2 \rangle - 4\omega_q^0 W_1^2 \{ G_{13}^{V_1 V_1}(q, \omega) + G_{14}^{V_1 V_1}(q, \omega) \}} \quad /17/$$

где

$$G_{13}^{V_1 V_1}(q, \omega) = \frac{X_4(q, \omega) X_2(q) + X_3(q) X_5(q)}{X_1(q, \omega) X_4(q, \omega) - X_3(q) X_6(q)}, \quad /18/$$

$$G_{14}^{V_1 V_1}(q, \omega) = \frac{X_1(q, \omega) X_5(q) + X_2(q) X_6(q)}{X_1(q, \omega) X_4(q, \omega) - X_3(q) X_6(q)}$$

Функции  $X_i(q, \omega)$  в /18/ определяются соотношениями

$$X_1(q, \omega) = (\omega^2 - \omega_{31}^2) + 2\omega_{31} I_q A_{13}^{-+} - A_{13}^{+1}{}^2 (A_{13}^{-+} + A_{41}^{-+}),$$

$$X_2(q) = \omega_{31} A_{13}^{V_1 V_1} - I_q A_{13}^{V_1+} (A_{13}^{-V_1} + A_{41}^{-V_1}),$$

$$X_3(q) = [I_q (A_{13}^{-+} + A_{41}^{-+}) - (\omega_{31} + \omega_{14})] A_{13}^{V_1+} I_q \frac{J_{41}^-}{V_{41}}, \quad /19/$$

$$X_4(q, \omega) = (\omega^2 - \omega_{14}^2) + 2\omega_{14} I_q A_{41}^{-+} - A_{41}^{+1}{}^2 (A_{13}^{-+} + A_{41}^{-+}),$$

$$X_5(q) = \omega_{14} A_{41}^{V_1 V_1} - I_q A_{41}^{V_1+} (A_{13}^{-V_1} + A_{41}^{-V_1}),$$

$$X_6(q) = [I_q (A_{13}^{-+} + A_{41}^{-+}) - (\omega_{31} + \omega_{14})] A_{41}^{V_1+} I_q \frac{J_{13}^-}{V_{13}}.$$

Энергия коллективных возбуждений определяется полюсами ФГ /17/. Чтобы их вычислить, необходимо знать параметры кристаллического поля для определения энергий уровней и волновых функций, а также энергию обменного взаимодействия  $I_q$ , вид энергии акустического фонона  $\omega_q^0$  и параметр магнитоупругого взаимодействия  $W_1$ . Для сравнения наших результатов с экспериментом рассмотрим соединение  $\text{PrAl}_2$ , в котором методом неупругого рассеяния нейтронов <sup>6</sup> были измерены дисперсионные кривые коллективных возбуждений при температуре  $4,4^\circ\text{K}$ .

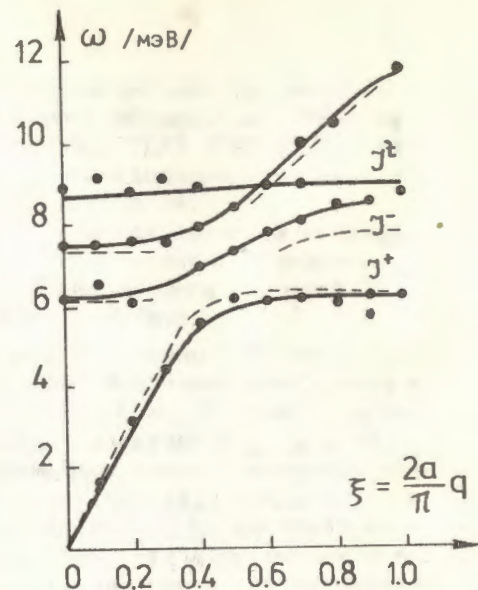
$\text{PrAl}_2$  имеет кубическую структуру типа C15 с немагнитным основным состоянием /дублет  $\Gamma_3$ / и первым возбужденным состоянием /триплет  $\Gamma_4$ / при энергии  $\Delta = 2,36$  мэВ. Полный момент количества движения  $J=4$ . При температуре  $T < T_c = 33^\circ\text{K}$   $\text{PrAl}_2$  переходит в ферромагнитное состояние. Анализ различных экспериментальных данных <sup>12/</sup> показывает, что для описания эффектов кристаллического поля в  $\text{PrAl}_2$  наилучший набор параметров имеет вид: параметры кристаллического поля  $x = 0,77$ ,  $W = -0,29$  мэВ, и максимальное значение фурье-образа обменного интеграла  $I_0 = 0,2$  мэВ ( $I_q = I_0(1 - \cos qa)$ ). Для данных параметров  $x$  и  $W$  при  $T = 4,4^\circ\text{K}$  энергии уровней и соответствующие волновые функции имеют вид <sup>13/</sup>:

Уровень	Энергия /мэВ/	Волновые функции
1	0	$0,0159 -4\rangle - 0,01697 10\rangle + 0,9854 4\rangle$
2	5,1	$0,4828 -2\rangle + 0,08758 2\rangle$
3	6,4	$0,2077 -3\rangle + 0,9782 1\rangle$
4	7,6	$0,7138 -1\rangle + 0,7004 3\rangle$
5	8,7	$-0,2009 -4\rangle + 0,9648 0\rangle + 0,1695 4\rangle$

Энергию акустического фонона аппроксимируем выражением  $(\omega_q^0)^2 = (\omega_q^0)^2 + 4\omega_q^0 W_2 \langle V_2 \rangle \approx \omega_0^2 \sin^2 qa$ . Из сравнения с результатами работы <sup>8/</sup> мы выбрали  $\omega_0 = 11,7$  мэВ, а параметр магнитоупругого взаимодействия  $W_1 = 0,1$  мэВ. Дисперсионные кривые магнито-вibrационных возбуждений в направлении  $[00\xi]$ , полученные численным определением полюсов ФГ /17/, представлены на рис. 1 сплошными кривыми. Как видно для данного соединения, согласие с экспериментом вполне удовлетворительное.

Для сравнения с результатами работы <sup>7/</sup> для того же набора параметров были определены дисперсионные кривые из соответствующих уравнений работы <sup>7/</sup>. В этом случае имеется пять решений. Из них одно /нижняя ветвь/ всегда действительно. В области взаимодействия магнитных экситонов и фонона имеется две пары комплексно-сопряженных решений, а в области взаимодействия эти две пары становятся действительными, но вырожденными. На рис. 1 пунктиром приведены эти

Рис. 1. Дисперсионные кривые связанных магнито-вibrационных возбуждений в  $\text{PrAl}_2$  в направлении  $[00\xi]$  при  $T = 4,4^\circ\text{K}$ . Точками обозначены результаты эксперимента <sup>6/</sup>, сплошной линией - результаты расчета данной работы, пунктиром - работы <sup>7/</sup>.



решения. Таким образом, принятые в работе <sup>7/</sup> приближения не позволяют корректно описать наиболее интересно область пересечения дисперсионных кривых.

#### 4.2. Парамагнитная фаза

В парамагнитной фазе без внешнего магнитного поля остаются только два перехода, в результате чего  $\omega_{31} + \omega_{14} = 0$ ,  $A_{13}^{-+} + A_{41}^{-+} = 0$  и  $A_{13}^{V_1+} (A_{13}^{-V_1} + A_{41}^{-V_1}) \Rightarrow 2A_{13}^{V_1+} A_{13}^{-+}$ . При этом ФГ /18/ принимает вид

$$G_{mn}^{V_1+} (q, \omega) = \frac{(\omega_{nm} - 2I_q \sum_{\alpha, \beta} A_{mn}^{\alpha\beta}) A_{mn}^{V_1+}}{\omega^2 - \omega_{nm}^2 + 2I_q \omega_{nm} \sum_{\alpha, \beta} A_{mn}^{\alpha\beta}}; \quad (\alpha, \beta = +, -), \quad /20/$$

Прямое вычисление матричных элементов  $V_{1mn}$  показывает, что в случае системы синглет-триплет ( $\Gamma_1 - \Gamma_4$ ) они равны нулю, и таким образом смешивания магнитных экситонов и фононов не происходит. Этот результат и был получен в работе <sup>7/</sup>.

Однако в случае системы дублет-триплет ( $\Gamma_3 - \Gamma_4$ ) симметрия уровней и магнитоупругого взаимодействия такова, что  $V_{1mn} \neq 0$ . С помощью уравнений /17/ и /20/ получаем уравнение для коллективных возбуждений

$$\omega_{q\pm}^2 = \frac{\Delta \cdot \Delta_q + \tilde{\omega}_q^2}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\Delta \cdot \Delta_q - \tilde{\omega}_q^2}{2}\right)^2 + 4\tilde{\omega}_q^2 \Delta_q W_1^2 (|V_{\Gamma_3\Gamma_4}|^2 + |V_{\Gamma_3\Gamma_4}|^2)}, \quad /21/$$

где

$$\Delta = \omega_{\Gamma_4\Gamma_3}, \quad \Delta_q = \omega_{\Gamma_4\Gamma_3} - 2I_q \sum_{\alpha,\beta} A_{\Gamma_3\Gamma_4}^{\alpha\beta}, \quad f_{\Gamma_4\Gamma_3} = 1.$$

Уравнение /21/ описывает энергию возбуждений, возникающих в результате взаимодействия фонона с магнитным экситоном между уровнями  $\Gamma_3$  и  $\Gamma_4$ , индуцированным полем деформации.

На рис. 2 представлен результат вычисления дисперсионной зависимости этих возбуждений для набора параметров  $x = 0,77$ ,  $W = -0,29$  мэВ,  $\omega_0 = 11,7$  мэВ,  $I_q = 0$ ,  $W_1 = 0,1$  мэВ в направлении  $[00\xi]$ . При приложении внешнего магнитного поля исходные энергетические уровни в кристаллическом поле расщепляются, и картина становится аналогичной рис. 1. Нам не известны прямые экспериментальные наблюдения смешивания магнитных экситонов и фононов в парафазе. Однако в работе 9. при изучении с помощью неупругого некогерентного магнитного рассеяния нейтронов при энергиях 10-12 мэВ наблюдался пик, который не описывается собственно переходами в кристал-

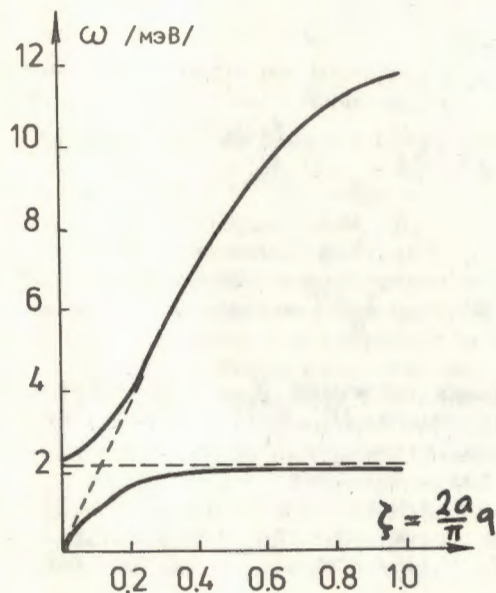


Рис. 2. Дисперсионные кривые связанных магнито-вибрационных возбуждений в парафазе модельной кубической системы дублет-триплет.

лическом поле.  $\text{PrAl}_3$  является парамагнетиком Ван-Флека, поэтому в нем вполне могут быть индуцированы магнитные экситоны магнитоупругим взаимодействием. Для ответа на этот вопрос необходимы дополнительные исследования зависимости рассеяния от температуры и магнитного поля.

Таким образом, результаты проведенных расчетов показывают, что в общем случае возможность появления связанных магнито-вибрационных возбуждений определяется симметрией кристалла и магнитоупругого взаимодействия.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Fulde P. In: Handbook on Physics and Chemistry of Rare Earths, North Holland Publ. Comp., 1978, ch.17.
2. Crystal Field Effects in Metall and Alloys. Ed by A.Furrer, Plenum Press, New York and London, 1977.
3. Jensen J. Int. J. Magnetism, 1971, 1, p.271.
4. Houmann I.G. et al. Phys.Rev.Lett., 1975, 34, p.587.
5. Jensen J. J.Phys. C., 1976, 9, p.111.
6. Purwins H.-G. et al. AIP Conference Proceedings, 1976, No.29, p.259.
7. Thalmer P., Fulde P. Z.Phys. B., 1975, 22, p.359.
8. Тябликов С.В. Методы квантовой теории магнетизма. "Наука", М., 1975.
9. Андреефф А. и др. ОИЯИ, P14-11451, Дубна, 1978; phys. stat.sol. (b), 1978, 87, p.535.
10. Marshall W., Lovesey S.W. Theory of Thermal Neutron Scattering. Clarendon, Oxford, 1971.
11. Фрауенхайм Т., Шрайбер Ю. ОИЯИ, P17-11978, Дубна, 1978.
12. Frauenheim Th., Matz W., Feller G. Solid State Comm., 1979, 29, p.805.
13. Lea K.R., Leask M.G., Wolf W.P. J.Phys.Chem.Sol., 1962, 23, p.1381.

Рукопись поступила в издательский отдел  
28 ноября 1979 года.