

АКАДЕМИЯ НАУК УКРАИНСКОЙ ССР
ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР

INIS-SU--407

В. В. Хоткевич, И. В. Свечкарев, В. Б. Плужников, Г. Е. Гречнев

ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА УПОРЯДОЧЕННЫХ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКИХ
СОЕДИНЕНИЙ Cd_3Mg и Mg_3Cd

Препринт 22-86

ХАРЬКОВ 1986

АКАДЕМИЯ НАУК УКРАИНСКОЙ ССР
ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР

В. В. Хоткевич, И. В. Свечкарев, В. Б. Плужников, Г. Е. Гречнев

ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА УПОРЯДОЧЕННЫХ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКИХ
СОЕДИНЕНИЙ Cd_3Mg и Mg_3Cd

Препринт 22-86

Харьков 1986

ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА УПОРЯДОЧЕННЫХ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКИХ
СОЕДИНЕНИЙ Cd_3Mg И Mg_3Cd

Экспериментально изучен эффект де Гааза-ван Альфена (дГВА) в интерметаллическом соединении Cd_3Mg . Наблюдено более семи отдельных частотных ветвей дГВА, определены некоторые эффективные массы и температуры Дингла. На основе полуэмпирических псевдопотенциалов проведены расчеты зонной структуры как Cd_3Mg , так и Mg_3Cd с целью построения поверхностей Ферми (ПФ) этих соединений. Используя рассчитанную угловую зависимость площадей экстремальных сечений ПФ, удалось предложить объяснение наблюдаемых в Cd_3Mg частотных ветвей дГВА. Обсуждается роль эффектов спин-орбитального взаимодействия в формировании зонного электронного спектра и ПФ Cd_3Mg .

Препринт Физико-технического института низких температур АН УССР, Харьков, 1986, № 22

Khotkevich V.V., Svechkaev I.V.,
Pluzhnikov V.V., Grechnev G.E.

ELECTRONIC STRUCTURE OF ORDERED INTERMETALLIC COMPOUNDS
 Cd_3Mg AND Mg_3Cd

The de Haas-van Alphen (dHVA) effect is studied experimentally in the intermetallic compound Cd_3Mg . More than seven separate dHVA frequency branches are observed and several effective masses and Dingle temperatures are determined. The band structure calculations based on the semiempirical pseudopotentials are carried out both for Cd_3Mg and Mg_3Cd to construct the Fermi surfaces (FS) of these compounds. It is possible to propose the explanation of dHVA frequency branches in Cd_3Mg using the calculated angle dependence of FS extremal cross sectional areas. The role of spin-orbit interaction effects in Cd_3Mg electron band spectrum and FS formation is discussed.

The preprint of the Institute of Low Temperature
Physics & Engineering, UkrSSR,
Academy of Sciences, Kharkov, 1986, № 22

В В Е Д Е Н И Е

Для системы сплавов кадмия с магнием характерны неограниченная взаимная растворимость и образование в твердом растворе (вследствие атомного упорядочения) трех стабильных при низкой температуре интерметаллических соединений [1]. Два из них, отвечающие химическим составам Cd_3Mg и Mg_3Cd , обладают гексагональной кристаллической структурой DO_{19} типа Ni_3Sn с восемью атомами на элементарную ячейку. Псевдоячейка кристаллической структуры DO_{19} (построенная без учета сорта атомов) аналогична элементарным ячейкам ПЦУ структур исходных компонент.

Интерес к фазам Cd_3Mg и Mg_3Cd обусловлен возможностью исследования на их примере закономерностей в образовании и стабилизации упорядоченных фаз в сплавах простых металлов. Ценным свойством указанных фаз представляется сохранение симметрии кристаллической решетки при фазовом переходе порядок-беспорядок, позволяющее наиболее непосредственным образом выяснить роль зонных эффектов в формировании сверхструктуры. Немаловажным обстоятельством, способствующим проведению такого рода исследований, является наблюдение на монокристаллах Cd_3Mg квантовых осцилляций де Гааза-ван Альфена (дГВА), дающих непосредственную спектроскопическую информацию об электронных состояниях на уровне Ферми.

Ранее нами сообщались некоторые результаты экспериментального изучения эффекта де Гааза-ван Альфена в упорядоченном интерметаллическом соединении Cd_3Mg [2,3]. Были выполнены также расчеты зонной структуры данного соединения [3,4] методом псевдопотенциала. Усовершенствование методики эксперимента с одной стороны и техники зонных расчетов с другой позволило наблюдать ряд новых периодов осцилляций дГВА в Cd_3Mg и на единой методической основе рассчитать электронные энергетические спектры и построить модели поверхности Ферми (ПФ) как Cd_3Mg , так и Mg_3Cd .

I. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА И ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Для приготовления образцов использовались кадмий и магний высокой степени чистоты¹, подвергавшиеся сплавлению в графитовом тигле в атмосфере гелия. Монокристаллы выращивались методом зонной плавки в установке с горизонтальным расположением тигля. Концентрационный состав полученных монокристаллов определялся путем химического анализа с точностью 1-2 ат. %. Подробно технология приготовления образцов описана в [5]. Кристаллы ориентировались рентгенографически с погрешностью около 1° и вырезались электроэрозионным способом в форме параллелепипедов 2x2x5 мм. Монтаж образцов в низкотемпературном измерительном устройстве спектрометра дГВА производился с приданием необходимой ориентации относительно внешнего магнитного поля сверхпроводящего соленоида до 75 кГс. Окончательное уточнение ориентации осей кристалла при низкой температуре достигалось непосредственно в ходе эксперимента. Для наблюдения осцилляций дГВА нами применялась стандартная методика низкочастотной модуляции поля [6] с детектированием сигнала на второй гармонике частоты модуляции. Результирующий продетектированный сигнал дГВА выводился на двухкоординатный графопостроитель и одновременно записывался в оперативную память ЭВМ М6000. Фурье-анализ, выполнявшийся на фоне накопления очередного набора экспериментальных данных, позволял установить спектральный состав осцилляций дГВА, т.е. определить амплитуды осцилляционных компонент и их частоты. Последние находились с погрешностью около 1%. На рис.1 приведены экспериментальные значения частот осцилляций дГВА в соединении Cd_3Mg при ориентации вектора магнитного поля в главных кристаллографических плоскостях.

Осцилляции дГВА наблюдались в интервале магнитных полей 9-70 кГс при температуре 1,5-4,2 К. Частоты осцилляций находятся в диапазоне от 0,1 до 6,0 МГц. Сводка численных значений частот дГВА при ориентации вектора магнитного поля в основных симметричных направлениях дана в табл.1.

Амплитуды осцилляций дГВА в соединении Cd_3Mg сравнительно невелики. Согласно нашим экспериментальным оценкам, характерные осцилляции дГВА в монокристалле цинка (с отношением удельных сопро-

¹ Сплавы приготавливались из кадмия марки КД-00 (99,997% Cd) и магния с относительным остаточным сопротивлением $\approx 10^{-3}$.

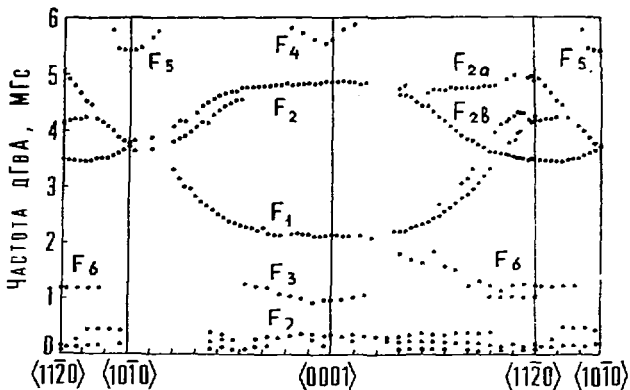


Рис.1. Частотные ветви дГВА в упорядоченном интерметаллическом соединении Cd_3Mg , полученные экспериментально.

тивлений $\rho_{300 \text{ К}} / \rho_{4,2 \text{ К}} \approx 10^4$) на два порядка превосходят по амплитуде осцилляции, наблюдавшиеся в Cd_3Mg в равном по величине поле. Это обстоятельство может быть объяснено тем, что на практике трудно удовлетворить условию точного совпадения химического состава сплава со стехиометрическим.

Следует отметить, что только две частотные ветви дГВА F_1 и F_2 (рис.1) характеризуются сравнительно большими амплитудами и уверенно наблюдаются во всем диапазоне углов в полях выше 20 кГс.

Оптимизация отношения сигнал/шум в нашей экспериментальной установке при общем повышении линейности измерительного тракта позволила зарегистрировать ряд новых ветвей дГВА с частотой как более 5 МГц (ветвь F_4), так и менее 2,1 МГц (ветви F_3, F_6, F_7), не наблюдавшихся ранее [3]. Осцилляции F_4 видны в поле выше 40 кГс, а низкочастотные осцилляции, в особенности F_7 , детектируются только в слабых полях, начиная с 9 кГс. Отличительной чертой новых ветвей являются малые по сравнению с F_1 и F_2 амплитуды осцилляций и ограниченный по углу интервал наблюдения. Последнее может обуславливаться как особенностями строения ПФ Cd_3Mg , так и быть следствием малости амплитуды сигнала дГВА, теряющегося в шумах. В связи со сказанным выше, трудно установить детальную структуру самих

Таблица I. Экспериментальные значения частот дГВА, эффективные массы носителей заряда и температура Дингла в интерметаллическом соединении Cd_3Mg

Символ частотной ветви дГВА	Ориентация магнитного поля	Частота дГВА, МГц	Эффективная масса, ед. m_0	Температура Дингла, К
F_1	$\langle 000\bar{1} \rangle$	2,09	$0,13 \pm 0,02$	8
	$\langle 10\bar{1}0 \rangle$	3,67		
	$\langle 1\bar{1}20 \rangle$	4,19		
F_2	$\langle 000\bar{1} \rangle$	4,83	$0,16 \pm 0,03$	10
	$\langle 10\bar{1}0 \rangle$	3,74	$0,13 \pm 0,02$	14
F_{2a}	$\langle 1\bar{1}20 \rangle$	4,86		
$F_{2\beta}$	$\langle 1\bar{1}20 \rangle$	3,42		
F_3	$\langle 000\bar{1} \rangle$	0,95		
F_4	$\langle 000\bar{1} \rangle$	5,60		
F_5	$\langle 10\bar{1}0 \rangle$	5,39		
F_6	$\langle 1\bar{1}20 \rangle$	1,20		
F_7	$\langle 000\bar{1} \rangle$	0,39		
	$\langle 10\bar{1}0 \rangle$	0,18 0,42		
	$\langle 1\bar{1}20 \rangle$	0,14		

низкочастотных ветвей дГВА. На рис. I вся группа этих частот обозначена F_7 .

Значения эффективных масс носителей заряда, измеренные по температурной зависимости амплитуд для наиболее интенсивных осцилляций F_1 и F_2 в направлениях высокой симметрии зоны Бриллюэна (ЗБ) кристалла Cd_3Mg , приведены в табл. I. Из полевой зависимости амплитуд этих осцилляций найдены температуры Дингла, значения которых оказываются весьма велики (см. табл. I). По-видимому, именно

высокие температуры Дингла препятствуют наблюдению в эксперименте высокочастотных осцилляций дГВА, амплитуда которых, как известно, наиболее чувствительна к рассеянию электронов. Так, не удалось зарегистрировать осцилляции дГВА с частотой выше 6,0 МГц, хотя использовавшийся спектрометр позволял наблюдать эффект дГВА, связанный с "пузом" ПФ меди (частота дГВА $F \approx 6 \cdot 10^2$ МГц [7]).

Несмотря на склонность к разрушению вследствие растрескивания по базисной плоскости, обнаруженную в сплавах близких по составу к Cd_3Mg при экспонировании образцов на воздухе, нами наблюдалась хорошая воспроизводимость результатов экспериментов по дГВА, выполненных на ряде монокристаллов Cd_3Mg на протяжении трех лет. Исследованные образцы Cd_3Mg не проявляли чувствительности к скорости охлаждения в измерительной установке от 300 до 4,2 К и числу таких термических циклов. Сказанное выше наряду с известными данными о высокой скорости протекания процесса упорядочения в соединении Cd_3Mg [1] позволяет считать, что в исследовавшихся монокристаллах достигалось вполне упорядоченное состояние при низкой температуре.

2. РАСЧЕТ ЗОННОЙ СТРУКТУРЫ И ПОВЕРХНОСТИ ФЕРМИ СОЕДИНЕНИЙ Cd_3Mg И Mg_3Cd

Зонная структура и топология поверхности Ферми соединения Cd_3Mg изучалась ранее [3] с использованием модельных псевдопотенциалов (ПП) Хейне-Абаренкова-Анималу [8]. Было установлено, что электронный энергетический спектр Cd_3Mg характеризуется сложной системой зон, связанной с наличием ряда сверхструктурных брэгговских плоскостей, ограничивающих ЗБ упорядоченной фазы. ПФ данного соединения содержит набор как открытых, так и закрытых участков. Среди них было обращено внимание на сравнительно небольшие по величине дырочные "пирамидки" в 7-й зоне в окрестности точки H ЗБ, электронные участки 9-й зоны, расположенные на вертикальных ребрах КН, а также на вложенные друг в друга электронные поверхности, центрированные в точке A и принадлежащие зонам с номерами II-14. ПФ Cd_3Mg не имеет прямых аналогов среди ПФ двухвалентных гексагональных металлов. В целом, объемы, занимаемые отдельными группами носителей, оказываются меньше, чем в кадмии или магнии. Однако в ряде случаев удается проследить генезис ПФ при переходе от магния к упорядочен-

ной фазе Cd_3Mg . Так, электронные "сигары", присущие ПФ 2-й зоны магния, трансформируются в две асимметричные "сигары" примерно вдвое меньших размеров, лежащие на ребрах КН ЗБ Cd_3Mg . В данном случае осцилляции дГВА, продуцируемые экстремальными орбитами на асимметричных "сигарах", имеют частоты, близкие к частоте γ -осцилляций в магнии [9] в окрестности [000], и оказываются примерно в два раза меньше последних вблизи осей 2-го порядка.

Наличие небольших по размеру закрытых участков ПФ Cd_3Mg дает возможность, в принципе, объяснить природу низкочастотных осцилляций дГВА, зарегистрированных в эксперименте. Становится очевидным, что высокая чувствительность небольших экстремальных площадей сечений ПФ Cd_3Mg к различного рода возмущениям электронного спектра требует использования более реалистической по сравнению с [3] модели эффективного кристаллического потенциала, пригодной для конкретного описания угловой зависимости частот дГВА и детализации ПФ Cd_3Mg .

Развивая подход, предложенный в [4], нами проведены расчеты электронных энергетических спектров упорядоченных фаз Cd_3Mg и Mg_3Cd методом псевдопотенциала. Известно, что использование ШП, полученных подгонкой по экспериментальным данным о ПФ металлов, позволяет описать электронный спектр непереходного металла вблизи энергии Ферми E_F с погрешностью около 1 мРидб. [10]. Исходя из этого, мы использовали индивидуальные полуэмпирические ШП Старка-Аудука [11] для кадмия и Кимбалла-Старка-Мюллера [12] для магния. Если для описания всех участков ПФ кадмия с погрешностью порядка одного процента [13] необходимо пользоваться нелокальным ШП, то ПФ магния хорошо описывается в рамках модели локального ШП [12], что было учтено в настоящей работе. Следует отметить, что при детальном расчете зонной структуры как кадмия, так и магния достаточно принимать во внимание четыре фурье-компоненты ШП, отвечающие векторам обратной решетки G_i типа $\langle 0002 \rangle$, $\langle 1010 \rangle$ и $\langle 1012 \rangle$, модули которых удовлетворяют условию

$$1,1 < G_i < 1,9 \text{ ат. ед.}^{-1}. \quad (1)$$

В то же время в упорядоченных фазах Cd_3Mg и Mg_3Cd благодаря наличию сверхструктуры набор волновых векторов, по модулю не превосходящих $G_i \text{ ат. ед.}^{-1}$, оказывается гораздо шире (этот набор включает 14 типов ненулевых волновых векторов), причем векторы,

отвечающие сверхструктурным плоскостям $\{10\bar{1}0\}$, $\{0001\}$, $\{10\bar{1}1\}$ и $\{1120\}$, по модулю малы и лежат вне указанного выше интервала (1), характерного для кристаллов чистых компонент. Считая неоправданным применение экстраполяционных процедур для вычисления формфакторов ПП в области малых волновых векторов, мы использовали в расчете соответствующим образом нормированные формфакторы локальных ПП [8] при $G_i < 1,1$ ат.ед.⁻¹.

В данном расчете были приняты значения параметров решетки $a = 6,1855 \text{ \AA}$ и $c = 4,9930 \text{ \AA}$ упорядоченной фазы Cd_3Mg , полученные на основании результатов рентгеноструктурных исследований при низких температурах². Низкотемпературные значения параметров решетки упорядоченной фазы Mg_3Cd $a = 6,2900 \text{ \AA}$, $c = 5,0600 \text{ \AA}$ взяты из [1].

Матричные элементы псевдогамильтониана в представлении плоских волн, пренебрегая спин-орбитальным взаимодействием, можно записать по аналогии с [13] как

$$\langle \bar{k}_i | H | \bar{k}_j \rangle = k^2 \delta_{ij} + \delta_{\bar{k}_i - \bar{k}_j, \bar{G}} \left\{ S_1(\bar{G}) \times \right. \quad (2)$$

$$\left. \times [U_{L1}(\bar{G}) + V_{N1}(\bar{k}_i, \bar{k}_j)] + S_2(\bar{G}) U_{L2}(\bar{G}) \right\},$$

где \bar{G} - вектор обратной решетки, S_1 и S_2 - структурные факторы, соответствующие кадмию и магнию в решетке типа DO_{19} , U_{L1} и U_{L2} - формфакторы локального ПП кадмия и магния, V_{N1} соответствует нелокальному потенциалу кадмия, причем $V_{N1} \neq 0$ при выполнении условия (1). Так как решетки DO_{19} имеют центр инверсии, при надлежащем выборе системы координат структурные факторы S_1 и S_2 скажутся вещественными, благодаря чему секулярные матрицы, построенные согласно (2), вещественны. Последнее обстоятельство существенно упрощает решение задачи на собственные значения. Размерность секулярных матриц выбиралась исходя из необходимых условий формирования полных k -звезд в шести вершинах неприводимой части ЗБ с учетом энергетического параметра обрезания E_{c1} в разложении псевдодолговой функции по плоским волнам. Значение параметра обрезания $E_{c1} = 7E_{F0}$, где E_{F0} - соответствующая свободноелектронная энергия Ферми для Cd_3Mg или Mg_3Cd , обеспечивает сходимость

² Эксперименты по исследованию температурной зависимости параметров решетки в соединении Cd_3Mg были выполнены В.В.Прыткиным и Е.В.Библик.

собственных энергий $E_n(\vec{k})$ с точностью ≈ 1 мРидб. С целью снижения временных затрат на диагонализацию секулярных матриц применялась "свертка" последних до порядка $58 \leq n \leq 72$, отвечающая значению параметра обрезания $E_{c2} = 4 E_{F0}$, выбранному опытным путем на основе компромисса между сходимостью $E_n(\vec{k})$ и временем счета на ЭВМ. Дополнительные матричные элементы, соответствующие значению E_{c1} ($138 \leq n \leq 162$), учитывались во втором порядке теории возмущений [10]. Электронные энергетические спектры соединений Cd_3Mg и Mg_3Cd , полученные с использованием описанной выше расчетной схемы, приведены на рис.2 и 3.

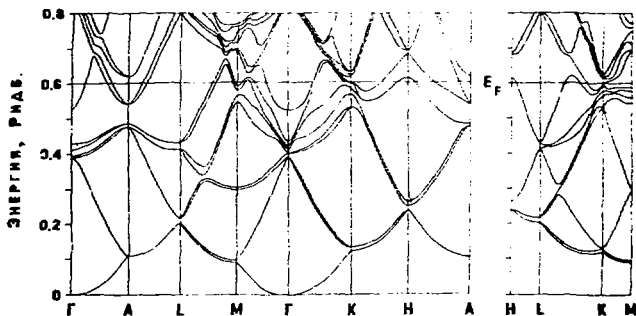


Рис.2. Электронный энергетический спектр соединения Cd_3Mg .

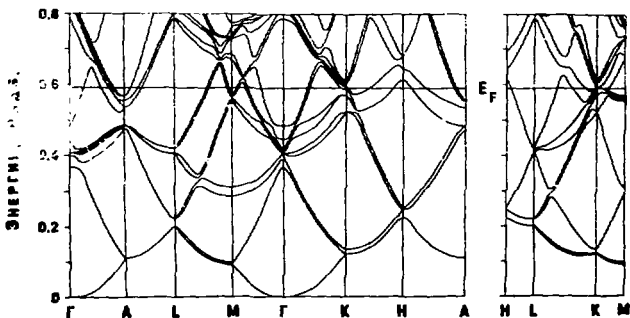


Рис.3. Электронный энергетический спектр соединения Mg_3Cd .

Энергия Ферми E_F для Cd_3Mg и Mg_3Cd определялась из условия нормировки интегральной плотности состояний, рассчитанной на основе лучевого метода интегрирования по ЗБ [14]. Согласно нашему расчету, E_F равно $0,606 \pm 0,001$ Ридб. для Cd_3Mg и $0,589 \pm 0,001$ Ридб. для Mg_3Cd . Применение лучевой интерполяционной схемы [14] оказывается успешным и при восстановлении ПФ, обеспечивая высокую точность интерполяции $E_n(\vec{k})$ ($\Delta E_n \approx 0,3$ мРидб.). Наборы сечений ПФ Cd_3Mg и Mg_3Cd плоскостями, ограничивающими ЗБ, с указанием типа носителей заряда и номеров зон изображены на рис. 4 и 5, соответственно. ПФ упорядоченной фазы Mg_3Cd в целом подобна ПФ Cd_3Mg . Исключения составляют листы в I3-й и I4-й зонах, а также небольшие

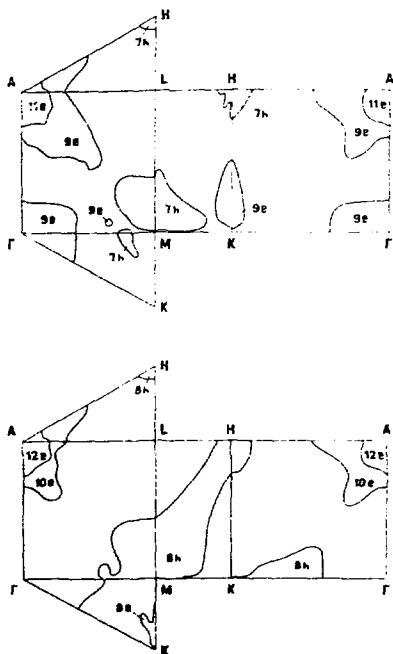


Рис. 4. Сечения поверхности Ферми Cd_3Mg плоскостями, ограничивающими неприводимую часть зоны Бриллюэна, с указанием точек высокой симметрии.

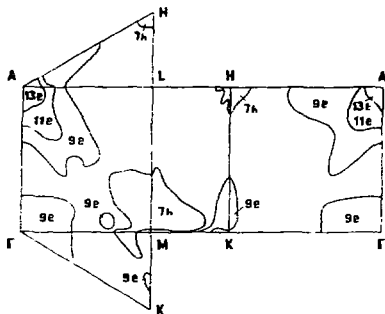
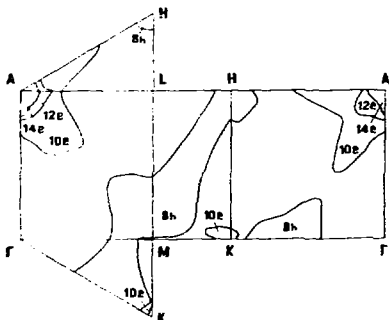


Рис.5. Сечения поверхности Ферми Mg_3Cd плоскостями, ограничивающими неприводимую часть зоны Бриллюэна, с указанием точек высокой симметрии.



электронные участки десятой зоны вблизи точки К, отсутствующие в Cd_3Mg . Некоторые экстремальные сечения закрытых участков ПФ, характерных для Cd_3Mg , изображены на рис.6. Значения частот д/ГвА, отвечающие этим и некоторым другим сечениям ПФ, даны в табл.2 наряду с зонными эффективными массами, полученными численным дифференцированием площадей экстремальных сечений по энергии.

Следует отметить, что все приведенные на рис.6 участки ПФ Cd_3Mg присущи модели ПФ, построенной в одноволновом приближении.

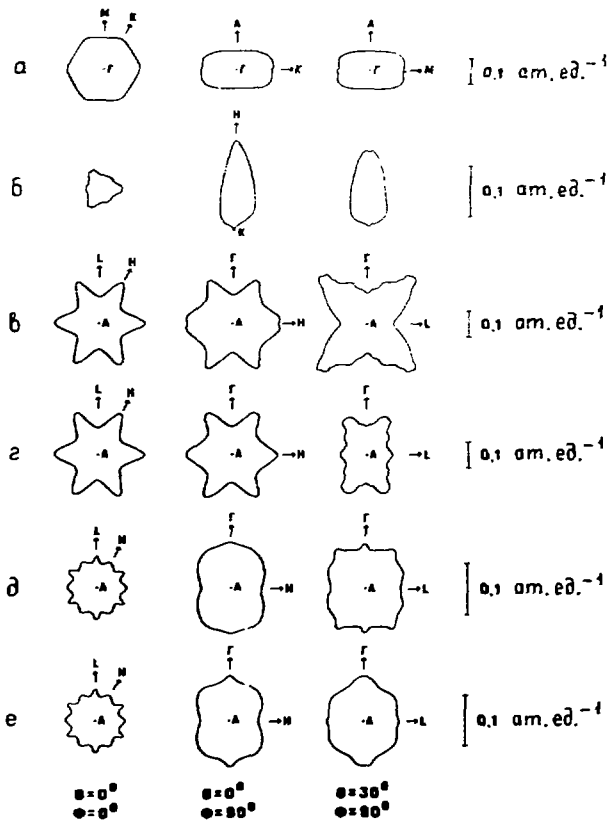


Рис.6. Некоторые экстремальные сечения закрытых участков поверхности Ферми Cd_3Mg при $E_F = 0,6055$ Ридб.:
 а - e9Г; б - асимметричная "сигара" eЖ; в - e9А; г - e10А;
 д - e11А; е - e12А.

Таблица 2. Частоты дГэА F и эоныне эффективные массы носителей заряда m_3^* , соответствующие экстремальным сечениям Пф Cd₃Mo при E_F = 0,6055 Ридб.

Участок Пф	θ , град.	Φ , град.	F, МГц	m_3^* , ед. m_0
h0h	0	0	1,75	-0,098
h0h	0	90	2,10	-0,123
h0h	0	90	4,88	-0,100
h0h	0	0	1,75	-0,098
h0h жж	0	0	1,44	-0,074
h0h жж	0	0	4,17	-0,208
h0h жж	0	90	2,45	-0,147
h0h жж	0	90	5,02	-0,319
h0h жж	0	90	4,65	-0,244
h0h жж	30	90	3,17	-0,211
e9Г	0	0	20,39	0,151
e9Г	0	90	13,65	0,189
e9Г	30	90	12,82	0,163
e9к жж	0	0	1,20	0,076
e9к жж	0	90	3,02	0,128
e9к жж	30	90	2,91	0,151
e9А	0	0	20,74	0,476
e9А	0	90	27,66	0,540
e9А	30	90	34,22	0,504
e10А	0	0	20,74	0,476
e10А	0	90	23,96	0,516
e10А	30	90	16,12	0,314
e11А	0	0	3,31	0,105
e11А жж	0	0	5,50	0,182
e11А жж	0	90	6,93	0,178
e11А жж	30	90	7,43	0,229
e12А	0	0	3,31	0,105
e12А жж	0	0	4,85	0,094
e12А жж	0	90	6,21	0,155
e12А жж	30	90	6,50	0,164

жж - плоскость сечения Пф не проходит через точку симметрии ЗБ.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В недавно опубликованной работе [15] приводятся результаты экспериментального изучения дГВА в Cd_3Mg , которые в деталях подтверждают данные, полученные нами ранее [2,3]. В данной работе было обнаружено несколько высокочастотных ($F \geq 10^7$ Гс) ветвей осцилляций, наблюдаемых в ограниченном диапазоне углов вблизи осей симметрии. Наряду с этим отмечена тонкая структура ветвей F_{2a} и F_{2b} в окрестности осей второго порядка, выявленная, однако, нечетко вследствие малости амплитуд наблюдавшихся дГВА-компонент. К сожалению, авторам упомянутой работы не удалось провести измерения эффективных масс из-за недостаточно высокого качества кристаллов. Основываясь на близости отношения c/a для кристаллов Cd_3Mg и магния (без учета сверхструктуры c/a для Cd_3Mg равно 1,619 [15], а для магния - 1,623) и результатах предшествовавшего выполнению работы исследования ПФ концентрированных сплавов $Cd-Mg$ методом аннигиляции позитронов [16], авторы [15] предложили "магниподобную" модель ПФ для соединения Cd_3Mg , в которую, однако, им пришлось искусственно внести существенные количественные изменения для согласования с собственными данными по эффекту дГВА. Предложенная в работе [15] модель ПФ не в состоянии объяснить наличие высокочастотных осцилляций в Cd_3Mg с частотой более 6 МГц и ряда низкочастотных ветвей, лежащих по частоте ниже 1 МГц, отсутствующих в магнии. ПФ Cd_3Mg не является в целом подобной ПФ магния, для которой не характерны наблюдаемые в эксперименте частоты дГВА (см. рис.1).

Нельзя отрицать возможность проявления магнитного пробоя (МП) в формировании экстремальных орбит в Cd_3Mg в сильных магнитных полях. Однако низкочастотные осцилляции с частотами до 6 МГц, по всей видимости, не подвержены МП в полях до 70 кГс, т.к. все они прослеживаются, начиная со сравнительно слабых магнитных полей (отдельные ветви с 9 кГс).

Наличие непрерывных во всем рассматриваемом диапазоне углов ветвей F_1 и F_2 заставляет в первую очередь обратить внимание на замкнутые участки ПФ, характерные для Cd_3Mg . С целью интерпретации экспериментальных данных нами проведен расчет угловой зависимости площадей экстремальных сечений закрытых участков ПФ Cd_3Mg , результаты которого приведены на рис.7. Были рассмотрены дюрочные

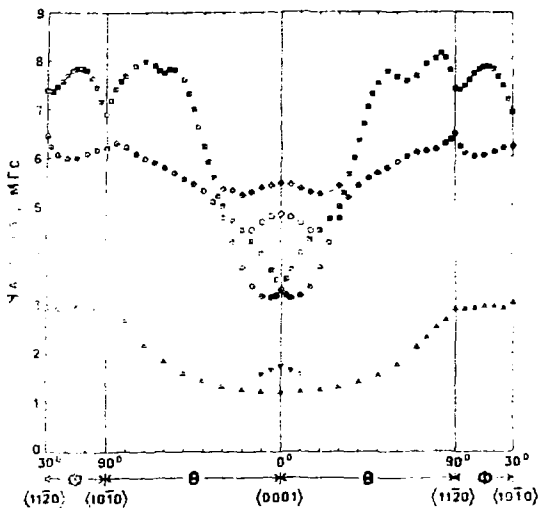


Рис.1. Угловая зависимость частот дΓВА в Cd_3Mg (расчет):
 □ - дырочные "пирамидки" 7-й зоны $h7H$; ▲ - электронные асимметричные "сигары" 9-й зоны $e9K$; ■ - центральные экстремальные сечения $e11A$; ◆ - нецентральные экстремальные сечения $e11A$; ● - центральные экстремальные сечения $e12A$; ○ - нецентральные экстремальные сечения $e12A$.

"пирамидки" 7-й зоны, расположенные вблизи точки H ЗБ, по форме близкие к таковым в кадмии, однако значительно меньше по размерам. Следует отметить, что анизотропия угловой зависимости дΓВА на этих участках ПФ не позволяет отнести к ним какую-либо частотную ветвь (рис.1). Весьма обнадеживающим оказывается вид угловой зависимости дΓВА для асимметричных "сигар" $e9K$. Абсолютные значения частоты дΓВА полученные в расчете (табл.2), позволяют предположить, что данные участки ПФ обуславливают осцилляции F_3 (рис.1), наблюдаемые в эксперименте в ограниченном диапазоне углов.

Замкнутые, вложенные друг в друга электронные участки Пф $e11A$ и $e12A$ (см. рис.4 и рис.6), продуцируют частоты дГВА, представленные в верхней части рис.7. Для этих участков Пф характерно образование в магнитном поле $H \parallel \langle 0001 \rangle$ двух типов экстремальных орбит, лежащих в плоскости, проходящей через центр симметрии Пф (точку A), и в плоскостях, равным образом смещенных по отношению к A в направлении точек Γ (нецентральные орбиты). Площади как центральных (минимальных) сечений, так и нецентральных (максимальных) экстремальных сечений обнаруживают высокую чувствительность к конкретной геометрии "гантелевидных" Пф $e11A$ и $e12A$. Было выдвинуто предположение, что ниспадающие от оси $[0001]$ частотные ветви F_2 могут ассоциироваться с нецентральными сечениями в том случае, если несколько увеличить отношение характерных диаметров гантелевидной Пф. Однако непосредственный расчет угловой зависимости экстремальных сечений Пф $e12A$ в Mg_3Cd , где "перешеек" гантели более выражен, чем в Cd_3Mg , показал, что даже путем разумного сдвига уровня химического потенциала не удастся получить ниспадающую частотную ветвь подходящей формы. Следует признать невозможность объяснения осцилляций F_2 наличием участков $e11A$ и $e12A$.

Поиск ветвей типа F_2 оказывается затруднительным в рамках имеющегося набора замкнутых малых участков Пф Cd_3Mg . Было обращено внимание на открытую дырочную Пф, принадлежащую 8-й зоне (рис.8). Интересно отметить, что минимумы площадей сечений имеют место для этой Пф на "рукавах" вблизи точки H при всех ориентациях вектора магнитного поля. Дырочная Пф в 8-й зоне имеет довольно сложное строение и может быть представлена как набор "рукавов", которые, постепенно утоньшаясь, сходятся в точке H по шесть и, расширяясь, соединяются по четыре в точке L . При этом вблизи L структура "рукавов" весьма сложна и характеризуется "перетяжкой" (см. рис.8). Нами проведен расчет площадей экстремальных сечений Пф $h8H$ при ориентации вектора магнитного поля в главных плоскостях симметрии, результаты которого представлены на рис.9. Видно, что "рукава" дырочной Пф $h8H$ обуславливают дГВА-частоты, обладающие подходящей анизотропией для ветви F_4 , абсолютные значения которых оказываются заниженными примерно вдвое вблизи $\langle 0001 \rangle$. При соответствующем сдвиге уровня ферми не более, чем на 5 мРидб., удастся добиться совпадения расчетных частот дГВА для ветвей F_4 и F_3 с результатами эксперимента. В окрестности оси шестого порядка имеется экстремум (минимум)

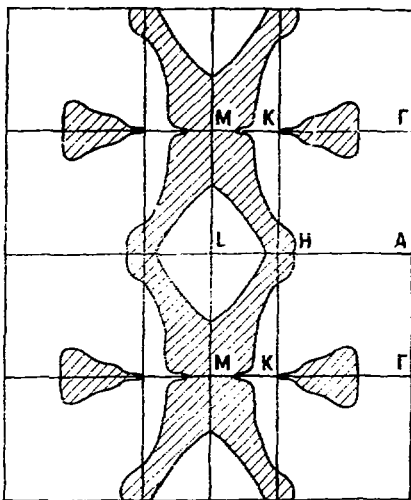


Рис.8. Сечение открытого дырочного участка поверхности ферми Cd_3Mg в δ -й зоне.

площадей сечений ПФ, проходящих через точку Н ЗБ. В окрестности $\langle 0001 \rangle$ имеются также орбиты, связанные с образованием "трилистника" при соединении треугольных в сечении рукавов. Не исключено, что здесь происходит внутризонное туннелирование электронов [17], и что амплитуда осцилляций дГВА может оказаться вследствие малой кривизны ПФ достаточной для их экспериментального наблюдения.

Говоря об амплитудах дГВА в Cd_3Mg , следует отметить, что сравнительная простота угловой зависимости частот (рис.1) может быть обусловлена особенностями геометрического строения ПФ, обладающей квазицилиндрическими участками с малой кривизной, уверенно наблюдаемыми в эксперименте даже в условиях сильного рассеяния. Указанному критерию наряду с сечениями "сигар" eЖ и рукавов h8H отвечают сечения ПФ h8H, лежащие вблизи седловой точки, которая имеет место при слиянии рукавов, приближающихся к Л. Можно высказать предположение, что осцилляции F_2 обязаны своим происхождением этому случаю, нечасто встречающемуся на практике. Группа частот, рассчитанных для указанных сечений, выделена на рис.9 штриховкой.

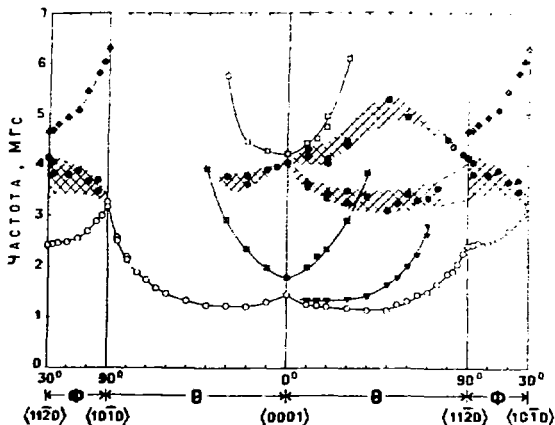


Рис.9. Результаты расчета угловой зависимости частот дГВА, связанных с сечениями дырочной поверхности Ферми $h\bar{v}N$ в 8-й зоне, изображенной на рис.8:

○, ▼ - минимальные сечения на тройных "рукавах", сходящихся в точке H ; ■ - экстремальные сечения, плоскость которых содержит точку H ; □ - сечения, предшествующие разделению тройных "рукавов"; ◆ - сечения, предшествующие разделению двух "рукавов"; ● - сечения, возникающие при раздвоении "рукавов".

Абсолютные значения частот в заштрихованной области весьма чувствительны к взаимному расположению ПФ и секущей плоскости. Если допустить справедливость высказанного предположения о гнроде ветви F_2 , то становится понятным, что даже при слабой взаимной разориентации осей кристалла и вектора магнитного поля возможно образование целого набора близких ветвей, как и было обнаружено в [15].

Высокочастотные осцилляции с частотами 19,6 и 35,6 МГц [15], зарегистрированные вблизи $\langle 0001 \rangle$, близки по величине к полученным в расчете частотам дГВА, относимым к центральным сечениям $e9Г$, $e9A$, $e10A$ (табл.2) и нецентральному экстремуму $e9A$ (28,9 МГц).

Чувствительность к относительному местоположению уровня Ферми

в зонном спектре, присущая рассмотренным экстремальным сечениям, приводит к необходимости более корректного расчета зонной структуры Cd_3Mg с учетом спин-орбитального взаимодействия (COB). В рамках описанной выше расчетной схемы COB учитывалось только для кадмия (как элемента с большим атомным номером). Матричные элементы w_{504} оператора COB записывались как

$$w_{504}(\bar{k}_i; s_i, \bar{k}_j; s_j) = i \{ \lambda_p + \lambda_d(\bar{k}_i, \bar{k}_j) \} ([\bar{k}_i, \bar{k}_j] \bar{\sigma}_{s_i s_j}),$$

где s_i, s_j - спиновые индексы, λ_p и λ_d - численные коэффициенты, а $\bar{\sigma}_{s_i s_j}$ - матрицы Паули. Диагонализуя секулярные комплексные эрмитовы матрицы, построенные с учетом энергетических параметров обрезания $E_{c1} = 7E_{F0}$, $E_{c2} = 3E_{F0}$, находим собственные значения энергии $E_n(\mathbf{k})$. Электронный спектр соединения Cd_3Mg рассчитанный с учетом COB, изображен на рис.10. Как видно, COB, приво-

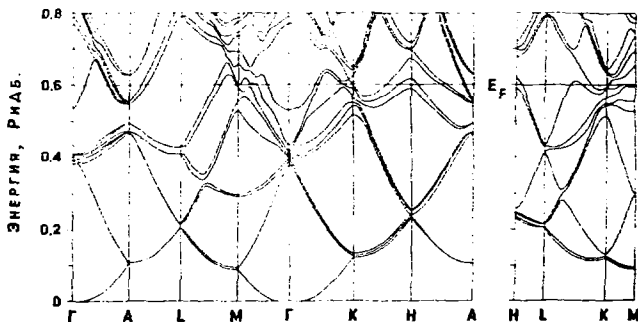


Рис.10. Электронный энергетический спектр упорядоченного интерметаллического соединения Cd_3Mg с учетом COB.

д к снятию вырождения зон, может существенно повлиять на тонкую структуру дисперсионных кривых на уровне Ферми (наимер вблизи точек M и K). Снятие вырождения в гексагональной плоскости ALH (за исключением линии AL) приводит к уплощению электронных участков ПФ e12A в направлении $\langle 0001 \rangle$ и, следовательно, уменьшению значений

частоты соответствующей восходящей ветви (см. рис.7). Заметные изменения могут также коснуться сечений Φ e_{9A} и e_{10A} , характеризующихся высокими значениями эффективных масс. Следует отметить исчезновение дырочных участков Φ в точке H и некоторое изменение размеров Φ e_{9H} и h_{9H} , получение новых численных данных об экстремальных сечениях которых требует проведения более обширных расчетов в рамках релятивистского подхода.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальные результаты изучения эффекта дГВА указывают на перестройку зонного спектра электронов, связанную со сверхструктурным упорядочением в решетке Cd_3Mg . Данные о Φ Cd_3Mg могут служить хорошим тестом для модели эффективного потенциала упорядоченного кристалла. Проведенные расчеты электронного спектра и Φ с использованием индивидуальных полуэмпирических Φ кадмия и магния позволили, в принципе, объяснить картину осцилляций дГВА в соединении Cd_3Mg и выявили высокую чувствительность отдельных участков Φ к малым возмущениям потенциала. Было бы желательным получение экспериментальных данных о дГВА в соединении Mg_3Cd , где эффекты СОВ должны быть выражены слабее.

Проведение экспериментов по изучению эффекта дГВА на более совершенных монокристаллах Cd_3Mg , а также Mg_3Cd могло бы, с одной стороны, дать ценную информацию о более широком наборе сечений Φ , в частности, позволить однозначно описать высокочастотные ветви дГВА. С другой стороны, в этом случае следует ожидать существенного усложнения общей картины осцилляций дГВА в данных соединениях. Так, для осцилляций с частотами 1-10 МГц, представляющих наибольший интерес, возможны интерференционные эффекты, обуславливающие появление комбинационных частот, что затруднит интерпретацию экспериментальных данных.

Наблюдение дГВА в монокристаллах Cd_3Mg , характеризующихся высокими температурами Дингла, позволяет надеяться, что в системе сплавов $Cd - Mg$ удастся экспериментально исследовать концентрационную зависимость пусть некоторых экстремальных сечений Φ . Такой эксперимент, будучи дополнен соответствующими расчетами зонной структуры, мог бы дать ключ к пониманию как перестройки электронного спектра при изменении концентрации компонент, так и образования границ упорядоченных фаз.

Авторы выражают благодарность В.Е.Прыткину и Е.В.Библик за проведение исследований параметров решетки соединения Cd_3Mg в области низких температур.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Вол А.Е., Каган И.К. Строение и свойства двойных металлических систем. - М.: Наука, 1979. - Ч. IV. - 576 с.
2. Андерсон Дж.Р., Плужников В.Б., Свечкарев И.В., Хоткевич В.В. Эффект де Гааза-ван Альфена в упорядоченном соединении Cd_3Mg // 21-е Всесоюз. совещ. по физике низких температур, Харьков, 23-26 сент. 1980 г.: Тез. докл. - Харьков, 1980. - Ч. III. - С. 100-101.
3. Хоткевич В.В., Плужников В.Б., Свечкарев И.В. и др. Электронный энергетический спектр и эффект де Гааза-ван Альфена в упорядоченном соединении Cd_3Mg // Физ. низк. температур. - 1984. - 10, № 4. - С. 431-434.
4. Гречнев Г.Е., Свечкарев И.В., Хоткевич В.В. Зонная структура и стабильность соединения Cd_3Mg // Физ. низк. температур. - 1984. - 10, № 5. - С. 548-552.
5. Фенстер М.Я., Хоткевич В.В., Плужников В.Б. Экспериментальное изучение эффекта де Гааза-ван Альфена в интерметаллическом соединении Cd_3Mg . - Харьков, 1985. - 33 с. - (Препринт / ФТИИТ АН УССР; 17-85).
6. Stark R.W., Windmiller L.R. Theory and technology for measuring the de Haas-van Alphen type spectra in metal // Cryogenics. - 1968. - 8, N 6. - P. 272-281.
7. Coleridge P.T., Templeton I.M. High precision de Haas-van Alphen measurements in the noble metals // J. Phys. F. - 1972. - 2, N 4. - P. 643-656.
8. Animalu A.O.E., Heine V. The screened model potential for 25 elements // Phil. Mag. - 1965. - 12, N 120. - P. 1249-1270.

9. Stark R.W. Fermi surface of magnesium. II : The de Haas-van Alphen effect // Phys. Rev. - 1967. - 162, N 3. - P. 589-600.
10. Хейне В., Коэн М., Уэйр Д. Теория псевдопотенциала - М.: Мир, 1973. - 560 с.
11. Auluck S. On the pseudopotential coefficients for zinc and cadmium // Phys. status solidi (b). - 1976. - 74, N 2. - P. KI29-KI33.
12. Kimball J.C., Stark R.W., Mueller F.M. The Fermi surface of magnesium. Local and nonlocal pseudopotential band structure models // Phys. Rev. - 1967. - 162, N 3. - P. 600-608.
13. Stark R.W., Falicov L.M. Band structure and Fermi surface for zinc and cadmium // Phys. Rev. Lett. - 1967. - 19, N 14. - P. 795-798.
14. Chen A.-B. Simple Brillouin-zone scheme for spectral properties of solids // Phys. Rev. B. - 1977. - 16, N 8. - P. 3291-3302.
15. Aoki H., Koike S., Ogawa K., Hirabayashi M. DEVA effect studies of the Fermi surface in Cd₃Mg // J. Phys. F. - 1985. - 15, N 4. - P. 869-876.
16. Koike S., Hasegawa M., Hirabayashi M., Suzuki T. Positron annihilation study on the Fermi surface of Cd-Mg alloys // J. Phys. Soc. Jap. - 1979. - 46, N 4. - P. 1185-1193.
17. Каганов М.И., Лифшиц И.М. Электронная теория металлов и геометрия // Успехи физ. наук. - 1979. - 129, вып. 3. - С. 487-529.

ХОТКЕВИЧ Владимир Владимирович
СВЕЧКАРЕВ Игорь Вадимович
ПЛУЖНИКОВ Василий Борисович
ГРЕЧНЕВ Геннадий Евгеньевич

Ответственный за выпуск Овчарова Л.С.

БЦ №09109. Подписано к печати 07.04.86. Физ. п. л. I, 6.
Уч.-изд. л. I, 6. Заказ 84. Тираж 150 экз. Цена 16 к.

Готапринт ФТИИТ АН УССР, Харьков-164, пр. Ленина, 47.