

- Ю Каган, А.П. Жернов ЖЭТФ 60 в.5, 1832 (1971).
 5. И. М. Лифшиц, ЖЭТФ 44 С 1723 (1963).
 6. Н.Ф Мотт Переходы металл-изолятор М., изд. Наука, 1979.



UA0800101

4.15. МАГНИТООБЪЕМНЫЙ ЭФФЕКТ В СОЕДИНЕНИЯХ YNi_5 и $CeNi_5$

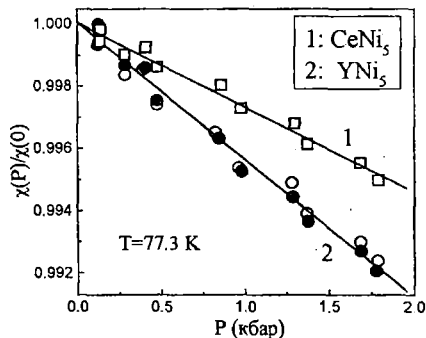
Г.Е. Гречнев, А. В. Логоша, А.С. Панфилов, И.В. Свечкарев
 Физико-технический институт низких температур НАН Украины

Редкоземельные соединения YNi_5 и $CeNi_5$ с гексагональной кристаллической решеткой типа $CaCu_5$ характеризуются обменно-усиленным зонным парамагнетизмом, обусловленным почти заполненными 3d-электронными состояниями атомов Ni, близкими к ферромагнитной неустойчивости [1]. Температурная зависимость магнитной восприимчивости $\chi(T)$ имеет широкий максимум при $T_{max} \approx 250$ и 100 К соответственно для YNi_5 и $CeNi_5$ и убывает по закону Кюри-Вейсса при $T > T_{max}$. Предполагается [1,2], что наблюдаемые особенности $\chi(T)$ обусловлены спецификой зонной структуры соединений. Дальнейшее изучение электронных характеристик YNi_5 и $CeNi_5$ представляется важным для понимания особенностей свойств соединений RNi_5 и, в том числе, роли электронных корреляций в их магнетизме.

В работе экспериментально исследовано поведение магнитной восприимчивости YNi_5 и $CeNi_5$ в условиях меняющегося атомного объема. Анализ основных вкладов и величины магнитообъемного эффекта в восприимчивости проведен с помощью расчетов электронной структуры и магнитных свойств соединений в приближении локальной спиновой плотности.

Поликристаллические образцы соединений готовились плавлением в аргонодуговой печи стехиометрических количеств исходных компонентов.

Измерения восприимчивости под давлением P до 2 кбар проведены при фиксированных температурах $T=77.3$ и 300 К с помощью магнитометра маятникового типа, размещенного внутри камеры высокого давления [3]. В качестве передающей давление среды применялся газообразный гелий. Относительная погрешность измерений не превышала 0.05 %. Пример зависимостей $\chi(P)$ при $T=77.3$ К приведен на рисунке (два набора данных для YNi_5 соответствуют результатам двух измерений). Как видно, с ростом давления наблюдается линейное (в пределах погрешностей)



уменьшение χ , что определяет величину производной $d\ln\chi/dP = -4.4 \pm 0.4$ Мбар⁻¹ и -2.7 ± 0.3 Мбар⁻¹ соответственно для YNi₅ и CeNi₅. Соответствующие значения производных восприимчивости по объему при использовании в качестве модуля объемного сжатия его экспериментальной оценки $B=1.5$ Мбар составляют $d\ln\chi/d\ln V = 6.6 \pm 0.6$ и 4 ± 0.4 . При $T=300$ К величина эффекта давления примерно на 30% меньше в обоих соединениях.

Самосогласованные расчеты зонной структуры исследуемых соединений проводились в рамках линейаризованного метода "muffin-tin" орбиталей (LMTO) [4] с использованием как релятивистского подхода с полным потенциалом (FP-LMTO), так и приближения атомных сфер (LMTO-ASA). Интегрирование по зоне Бриллюэна проводилось методом тетраэдров. Плотность электронных состояний на последнем этапе расчета вычислялась с разрешением по энергии не менее 0.1 mRy. Максимальное значение орбитального квантового числа l принималось $l_{\max}=2$ для Y, Ni и $l_{\max}=3$ для Ce. В FP-LMTO расчетах включались полуостовные $4p$ -состояния Y и $5p$ -состояния Ce. Для расчета из первых принципов индуцированного внешним полем \mathbf{B} магнитного момента гамильтониан метода FP-LMTO был модифицирован включением оператора Зеемана $H_Z = \mathbf{B}(2s+1)$, что позволяет в ходе релятивистских спин-поляризованных расчетов определить спиновый χ_s и орбитальный χ_o вклады электронов проводимости в магнитную восприимчивость.

В соединении YNi₅ рассчитанные FP-LMTO методом значения вкладов для равновесного объема элементарной ячейки составляют $\chi_s = 2.2 \times 10^{-3}$ и $\chi_o = 0.25 \times 10^{-3}$ см³/моль. Их суммарное значение $\chi = 2.45 \times 10^{-3}$ см³/моль с учетом небольшого диамагнетизма ионных остовов разумно согласуется с экспериментальной оценкой $\chi_{\text{exp}} = 1.9 \dots 2.2 \times 10^{-3}$ см³/моль для $T=0$ К [2]. Доминирование в восприимчивости спинового вклада обусловлено его большим фактором усиления Стонера ($S \approx 6$). Аналогичные расчеты восприимчивости как функции объема элементарной ячейки дают величину объемной производной $d\ln\chi/d\ln V \approx 8$, что лишь немного превышает ее экспериментальное значение (6.6 ± 0.6).

К сожалению, в использованном методе не удалось получить должную сходимость в случае CeNi₅, вероятно, из-за близости к уровню Ферми f -состояний церия. Однако можно использовать найденное отношение $\chi_s/\chi_o \approx 1.2$, которое остается устойчивым в итерационном процессе. Для определения величины спинового вклада (и его зависимости от объема) в CeNi₅ была использована модель Стонера $\chi_s = \chi_s^o / (1 - I N(E_F)/2) \equiv S \chi_s^o$ (χ_s^o – невозмущенная спиновая восприимчивость Паули), параметры которой рассчитывались в рамках метода LMTO-ASA. В таблице приведены найденные значения плотности электронных состояний на уровне Ферми $N(E_F)$ и параметра обменно-корреляционного взаимодействия I для некоторых значений объема элементарной ячейки V .

$V,$ Å^3	$N(E_F),$ States/Ry cell	$N_f(E_F),$ States/Ry cell	$I,$ mRy cell	$\chi_s,$ $10^{-3} \text{ cm}^3/\text{mole}$
82.532	161	50	9.47	1.609
81.296	154	41	9.44	1.339
80.077	148	43	9.46	1.172
77.675	140	39	9.49	0.991

Отметим заметный вклад 4f-состояний церия (порядка 30%) в полную плотность состояний. Рассчитанная величина спинового вклада $\chi_s = 1.609 \times 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{mole}$, для экспериментального значения $V=82.532 \text{ Å}^3$ характеризуется фактором усиления Стонера $S=4.2$. Найденное с ее помощью и с учетом приведенного выше отношения $\chi_s/\chi_o=1.2$ значение $\chi \approx \chi_s + \chi_o = 2.95 \times 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{mole}$ близко к экспериментальному значению $\chi_{\text{exp}}=3.0 \times 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{mole}$ для $T=0 \text{ K}$ [2]. Величина магнитообъемного эффекта в CeNi_5 определяется, главным образом, поведением спинового вклада и его долей в полной восприимчивости. Его расчет в рамках модели Стонера $d \ln \chi / d \ln V \approx (\chi_s/\chi) [S d \ln N(E_F) / d \ln V + (S-1) d \ln I / d \ln V]$ с использованием вытекающих из таблицы значений $d \ln N(E_F) / d \ln V = 2.9$, $d \ln I / d \ln V = 0$ и $S=4.2$ дает $d \ln \chi / d \ln V = 6.6$, что более чем в 1.5 раза превышает экспериментальное значение (4 ± 0.4). Заметим, что для согласования расчета с экспериментом необходимо предположить значительную объемную зависимость обменного параметра $d \ln I / d \ln V \approx -1.3$. Именно такое поведение I под давлением в отличие от вычисленного из первых принципов в приближении локальной электронной плотности, получается в модели Стонера у всех исследованных переходных d- и f-металлов и их соединений [5].

1. D. Gignoux, F. Givord, R. Lemaire, H. Launois, F. Sayetat, J. Physique **43** (1982) 173.
2. M. Coldea, D. Andreica, M. Bitu, V. Crisan, J. Magn. Magn. Mater. **157-158** (1996) 627.
3. А.С. Панфилов, Физика и техника высоких давлений **2** (1992) 61.
4. H.L. Skriver, The LMTO method, Springer, Berlin (1984).
5. A.S. Panfilov, G.E. Grechnev, I.V. Svechkarov, H. Sugawara, H. Sato, O.Eriksson, Physica B **319** (2002) 268.