

ной от упругой неоднородности в области ДГ, по порядку величины равна $\eta\lambda\Delta M^2/C$ (C — упругий модуль), для V_p получаем следующую оценку: $V_p \sim (\omega_p \eta\lambda/C)^2 \Delta^3 M^3 \rho \gamma / \alpha$. Сравнивая V_p с выражением (7), нетрудно убедиться, что для реальных численных значений параметров ФМ всегда выполняется условие $V \gg V_p$. Следует, однако, отметить, что звуковое давление может быть и основной причиной равномерного движения ДГ. Такая ситуация реализуется, например, в случае продольной поляризации звука, когда $V=0$.

Автор выражает благодарность Ю. И. Горобцу за обсуждение результатов работы.

Список литературы

- [1] Барьяхтар В. Г., Иванов Б. Н. // ФММ. 1975. Т. 39. № 3. С. 478—485.
- [2] Туров Е. А., Луговой А. А. // ФММ. 1980. Т. 59. № 5. С. 903—913.
- [3] Słonczewski J. C. // Intern. J. Magn. 1972. V. 2. № 3. P. 85—97.
- [7] Гребеников Е. А. Метод усреднения в прикладных задачах. М., 1985. 256 с.

Лонецкий государственный университет
Донецк

Поступило в Редакцию
3 мая 1989 г.

УДК 541.57—162; 548.31

Физика твердого тела, том 31, в. 11, 1989
Solid State Physics, vol. 31, N 11, 1989

ОПРЕДЕЛЕНИЕ НИЖНИХ УРОВНЕЙ СПЕКТРА Np^{4+} В $NpOS$ ПО ДАННЫМ МАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ

А. В. Калинин

Оксисульфид нептуния $NpOS$ кристаллизуется в тетрагональную структуру типа $RbFCl$ (пространственная группа симметрии D_{4h}^7). Ион Np в этой структуре занимает двукратную c -позицию с точечной симметрией C_{4v} . Магнитная структура $NpOS$ до конца не ясна. Тем не менее характер

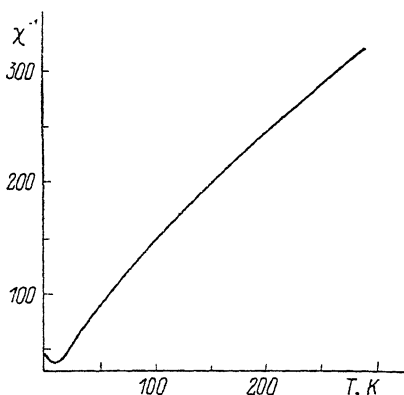


Рис. 1. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости оксисульфида нептуния [1].

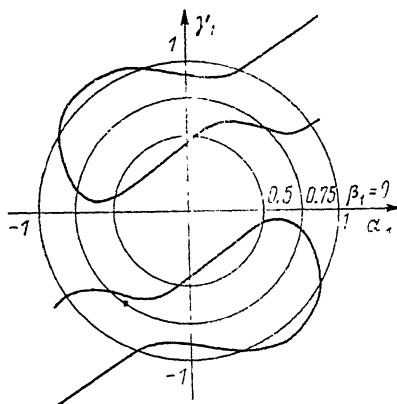


Рис. 2. Результаты численного расчета коэффициентов в волновых функциях дублета Γ_6^1 .

Точки пересечения окружностей (условие нормировки) с кривыми определяют наборы значений $(\alpha_1, \beta_1, \gamma_1)$.

поведения кривой обратной магнитной восприимчивости [1] говорит о том, что ниже $T_N \approx 5$ К $NpOS$ становится антиферромагнетиком. В парамагнитной фазе обратная восприимчивость оксисульфида нептуния линейно зависит от температуры в диапазоне $T=20\div 60$ К с эффективным магнитным моментом и парамагнитной температурой Кюри соответственно $\mu_{\text{эф}} =$

$=2.04 \mu_B$; $\Theta_p = 15$ К (рис. 1). Как видно из рис. 1, при $T \approx 60$ К наблюдается изменение наклона кривой и при $T \approx 300$ К эффективный магнитный момент составляет $3.37 \mu_B$ [1]. Измерение мессбауэровских спектров дает значение изомерного сдвига $\delta = -5.2$ мм/с, что говорит о валентности иона нептуния Np^{4+} [2]. Цель этой работы — воспользоваться экспериментальными результатами для определения спектра собственных значений энергии иона Np^{4+} в NpOS .

В приближении LS-взаимодействия основным мультиплетом свободного иона нептуния будет десятикратно вырожденный уровень $^4I_{9/2}$ ($J=9/2$). В кристаллическом поле с симметрией C_{4v} этот мультиплет расщепится на пять дублетов: $D_{9/2} = 3\Gamma_{16} + 2\Gamma_{17}$ (обозначения даны в соответствии с [3]). Поведение обратной магнитной восприимчивости заставляет предположить, что при низких температурах основным состоянием Np^{4+} будет один из дублетов, а при $T > 60$ К в магнитную восприимчивость начинает давать вклад первый вышележащий уровень, отделенный от основного энергетической щелью Δ . Выберем в качестве основного дублет $\Gamma_{16}^{(1)}$, а в качестве первого возбужденного — $\Gamma_{17}^{(1)}$. Перебор вариантов показывает, что никакие другие комбинации двух дублетов не позволяют получить численные значения $\mu_{эф}$, близкие к экспериментальным.

Волновые функции дублета $\Gamma_{16}^{(1)}$ имеют вид

$$\psi_{1,2} = \alpha_1 \left| \pm \frac{9}{2} \right\rangle + \beta_1 \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle + \gamma_1 \left| \mp \frac{7}{2} \right\rangle. \quad (1)$$

Гамильтониан представляет собой сумму гамильтониана кристаллического поля $\hat{H}_{кр}$ и зеемановского слагаемого

$$\hat{H} = \hat{H}_{кр} + \mu_B (\mathcal{J} + S) H. \quad (2)$$

В базе (1) он имеет следующие собственные значения:

$$\varepsilon_{1,2} = \pm g \sqrt{a_1^2 H_x^2 + b_1^2 (H_x^2 + H_y^2)}, \quad (3)$$

где $a_1 = 1/2 (9\alpha_1^2 + \beta_1^2 - 7\gamma_1^2)$, $b_1 = 1/2 (6\alpha_1\gamma_1 + 5\beta_1^2)$, $g = 8/11$ — фактор Ланде.

Используя (3), получим набор значений магнитного момента для дублета (1)

$$M_{1,2}^z = \frac{\partial \varepsilon_{1,2}}{\partial H_x} \Big|_{H_x, H_y=0} = \pm g |a_1|, \\ M_{1,2}^{x,y} = \pm g |b_1|. \quad (4)$$

Соответственно продольная и поперечная компоненты магнитной восприимчивости будут иметь вид

$$\chi_{\parallel} = \frac{g^2 (9\alpha_1^2 + \beta_1^2 - 7\gamma_1^2)^2 N_A \mu_B^2}{4k_B (T - \Theta_p)}, \quad \chi_{\perp} = \frac{g^2 (6\alpha_1\gamma_1 + 5\beta_1^2)^2 N_A \mu_B^2}{4k_B (T - \Theta_p)}. \quad (5)$$

Поскольку в парамагнитной фазе $\chi = 1/3\chi_{\parallel} + 2/3\chi_{\perp}$, а эффективный магнитный момент связан с восприимчивостью соотношением $\mu_{эф} = [3\chi(T - \Theta_p)k_B / (N_A \mu_B^2)]^{1/2}$ [4], получим для системы уровней (1)

$$\mu_{эф}(\Gamma_{16}^{(1)}) = g \sqrt{a_1^2 + 2b_1^2} \mu_B. \quad (6)$$

Требование $\mu_{эф}(\Gamma_{16}^{(1)}) = 2.04 \mu_B$ совместно с условием нормировки $\alpha_1^2 + \beta_1^2 + \gamma_1^2 = 1$ определяет набор значений коэффициентов в волновых функциях (1). Поскольку на три параметра $\alpha_1, \beta_1, \gamma_1$ наложены только два ограничения, то, выбирая один из них, например α_1 , произвольно, можно численно получить зависимости $\gamma_1 = f(\alpha_1)$ (рис. 2) и $\beta_1 = f(\alpha_1)$.

Учет волновых функций дублета $\Gamma_{17}^{(1)}$

$$\psi_{3,4} = \alpha_2 \left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle + \beta_2 \left| \mp \frac{3}{2} \right\rangle \quad (7)$$

приводит к следующему секулярному уравнению для определения собственных значений гамильтониана (2):

$$\varepsilon^2 (\Delta - \varepsilon)^2 - \varepsilon^2 (a_2^2 H_x^2 + b_2^2 H_y^2) - (\Delta - \varepsilon)^2 (a_1^2 H_x^2 + b_1^2 H_y^2) + 2\varepsilon (\Delta - \varepsilon) c^2 H_x^2 + a_1^2 a_2^2 H_x^4 + (b_1 b_2 - c^2)^2 H_x^4 + (a_1^2 b_2^2 + a_2^2 b_1^2 + 2a_1 a_2 c^2) H_x^2 H_y^2 + 16b_1 b_2 c^2 H_x^2 H_y^2 = 0. \quad (8)$$

Здесь $a_2 = 1/2 (5\alpha_2^2 - 3\beta_2^2)$, $b_2 = \sqrt{21}\alpha_2\beta_2$, $c = \sqrt{6}\beta_1\beta_2 + 2\gamma_1\alpha_1$, $H_{\pm}^2 = H_x^2 + H_y^2$. Не приводя громоздкого решения уравнения (8), запишем выражения для высокотемпературной магнитной восприимчивости

$$\chi_{\parallel} = \frac{g^2 (a_1^2 + a_2^2) N_A \mu_B^2}{2k_B (T - \theta_p)}, \quad \chi_{\perp} = \frac{g^2 (b_1^2 + b_2^2) N_A \mu_B^2}{2k_B (T - \theta_p)}. \quad (9)$$

Эффективный магнитный момент квартета (1), (7) с учетом (9) будет равен

$$\mu_{\text{эф}} (\Gamma_{ig}^{(1)} + \Gamma_{if}^{(1)}) = g \sqrt{1/2 (a_1^2 + a_2^2) + (b_1^2 + b_2^2)}. \quad (10)$$

Экспериментальное значение $\mu_{\text{эф}} = 3.37 \mu_B$, полученное в [1], совместно с выражениями (10) и (6) позволяет определить коэффициенты α_2 и β_2 , входящие в (7): $\alpha_2 = 0.167$, $\beta_2 = 0.991$. Используя полученные значения вместе с экспериментальными данными [1], можно оценить величину

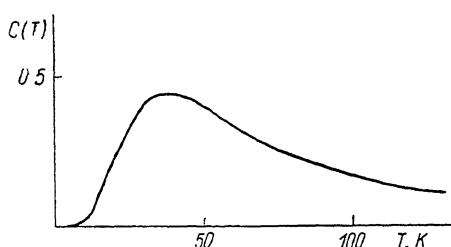


Рис. 3. Зависимость теплоемкости от температуры, рассчитанная на основании полученных результатов.

энергетической щели Δ между уровнями. Численный расчет приводит к значению $\Delta \approx 90$ К.

Таким образом, теория кристаллического поля позволяет, с одной стороны, объяснить поведение магнитной восприимчивости оксисульфида нептуния в парамагнитной фазе, а с другой — определить значения коэффициентов смешивания волновых функций основного и первого возбужденного дублетов, а также дать оценку величины энергетической щели между дублетами. Проверка этих предположений должна включать в себя тепловые измерения. Так, теплоемкость этого соединения должна получать дополнительный вклад за счет присоединения возбужденного уровня. Численные оценки показывают, что это приведет к максимуму на зависимости $C(T)$ в районе $T \approx 40$ К (рис. 3). Все другие дублеты спектра расположены выше 300 К, т. е. не попадают в тот температурный интервал, в котором проводились измерения.

Список литературы

- [1] Collard J. M., Blaise A., Bogé M., Bonniseau D., Burlet P., Fournier J. M., Loroque J., Beauvy M. // J. Less-Common Met. 1986. V. 121. P. 313—318.
- [2] Dunlap B. D., Kalvius G. M. Handbook of the Physics and Chemistry of the Actinides. V. 2. / Ed. A. Freeman and G. H. Lander. North—Holland, Amsterdam, 1983. S. 117.
- [3] Леушин А. М. Таблицы функций, преобразующихся по неприводимым представлениям кристаллографических точечных групп. М.: Наука, 1968. 142 с.
- [4] Смарт Дж. Эффективное поле в теории магнетизма. М.: Мир, 1968. 271 с.

Ростовский-на-Дону инженерно-строительный институт
Ростов-на-Дону

Поступило в Редакцию
4 мая 1989 г.