

УДК 538.61;538.221; 535.343.2; 535:548

ОПТИЧЕСКИЕ И МАГНИТООПТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ МОНОХАЛЬКОГЕНИДОВ УРАНА. РОЛЬ 5f-ЭЛЕКТРОНОВ

Ю. А. Успенский, Л. И. Сандрацкий¹, С. В. Халилов, Э. Т. Кулатов

Проведен расчет из "первых принципов" оптических и магнитооптических спектров соединений US и UTe . Рассчитанная диагональная оптическая проводимость, в целом, похожа на экспериментальную, однако заметно отличается от нее в области энергий 1-5 эВ. Еще большие отличия при этих энергиях имеют место для недиагональной проводимости. Показано, что в данной области энергий доминирующими являются переходы из $U5f$ -зоны в $U6d$ -зону. Полученные результаты указывают на необходимость учета многоэлектронных эффектов, выходящих за рамки стандартного зонного подхода, при описании 5f-электронов урана.

Монохалькогениды урана, кристаллизующиеся в структуре $NaCl$, являются, пожалуй, наиболее изученной группой соединений урана. Их отличает [1]: достаточно высокая температура Кюри (177, 160 и 102 К для US , USe и UTe соответственно), большая магнитооптическая активность и очень большой орбитальный момент, направленный антипараллельно спиновому магнитному моменту. Если ведущая роль 5f-электронов в формировании магнитного момента халькогенидов урана не вызывает сомнений, то их роль в формировании оптических и магнитооптических спектров далеко не ясна. С этим вопросом тесно связан другой – насколько сильно локализованы 5f-электроны урана, и могут ли они быть адекватно описаны в рамках зонного подхода. Рассмотрению данных вопросов и посвящена настоящая работа.

¹Институт физики твердого тела, Высшая техническая школа, Д-64289, Дармштадт, Германия.

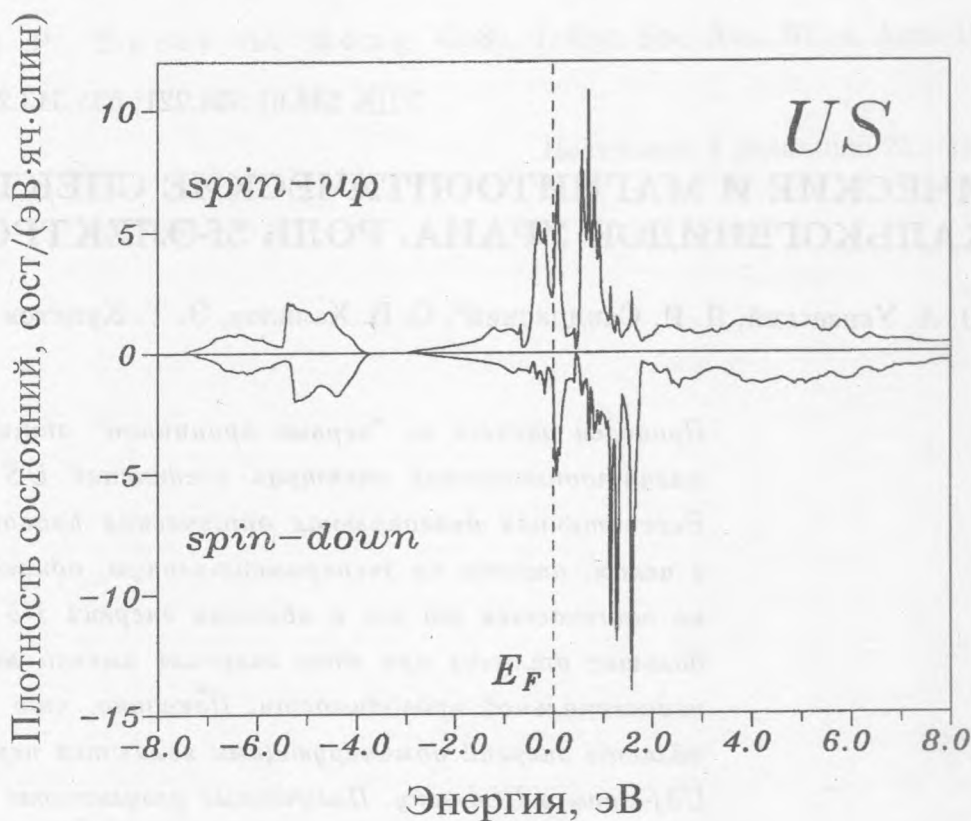


Рис. 1. Плотность электронных состояний US в спиновых подзонах большинства (верхняя панель) и меньшинства (нижняя панель) электронов. E_F – уровень Ферми.

Самосогласованные расчеты электронной структуры соединений US и UTe были выполнены в рамках приближения локальной спиновой плотности [2] с помощью релятивистского метода присоединенных сферических волн [3]. Элементарная ячейка, кроме сфер урана и серы, содержала также две пустые сферы, делающие упаковку более плотной. Рассчитанная плотность электронных состояний для соединения US со спиновым моментом в направлении $[001]$ показана на рис. 1. Обращают на себя внимание высокие максимумы плотности состояний вблизи уровня Ферми (энергии от $-0,5$ до $1,5$ эВ), отвечающие $5f$ -зоне урана, расщепленной за счет обменного и спин-орбитального взаимодействия. Электронные состояния $S3p$ сосредоточены, в основном, вблизи энергии -5 эВ, тогда как состояния $U7s$, $U7p$ и $U6d$ образуют широкую гибридованную зону с дном при энергии -3 эВ и центром вблизи 4 эВ. Рассчитанная величина спинового магнитного момента равняется $1,61 \mu_B$.

Расчеты тензора проводимости $\sigma_{\alpha\beta}(\omega)$ выполнялись с помощью релятивистского ме-

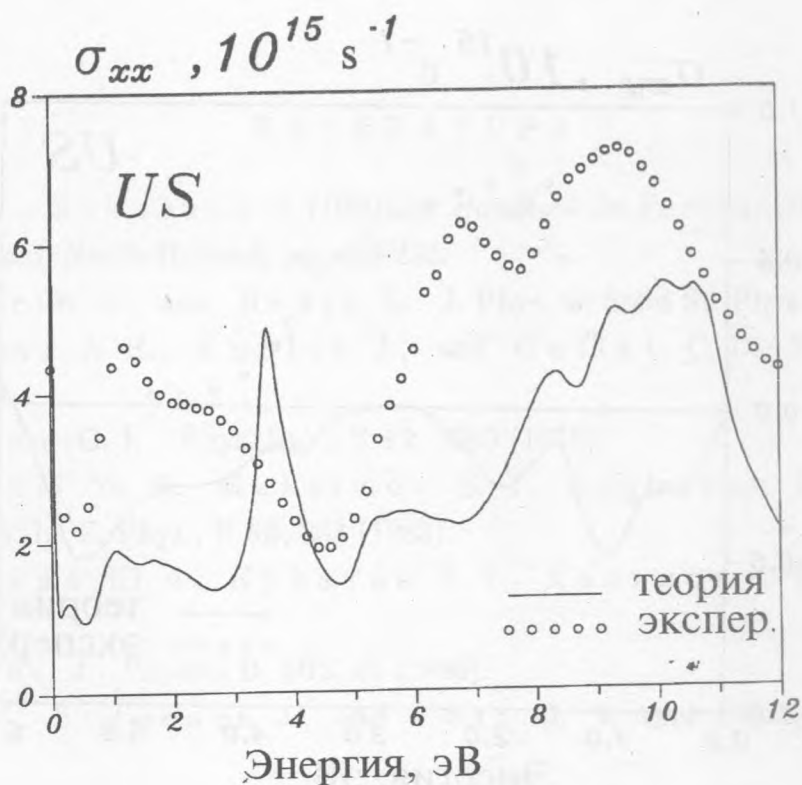


Рис. 2. Частотная зависимость диагональной проводимости $\sigma_{1,xx}(\omega)$. Сплошная линия – расчет, $\circ \circ \circ$ – эксперимент [7].

тогда ЛМТО [4]. Рис. 2 показывает вычисленную диагональную проводимость $\sigma_{1,xx}(\omega)$ в сравнении с экспериментальными результатами [7]. Хотя в областях $\hbar\omega = 1-2$ эВ и 7-12 эВ наблюдается определенное сходство кривых, в области энергий $\hbar\omega = 2-7$ эВ согласие явно плохое. Особенно резкие отличия наблюдаются при энергии фотонов 4 эВ, где расчетная кривая имеет сильный максимум, которого явно нет на эксперименте. Наши численные эксперименты показали, что вклады в проводимость при частотах $\hbar\omega \leq 2$ эВ обусловлены возбуждениями электронов внутри $U5f$ -зоны, при частотах $2 < \hbar\omega < 5$ эВ – возбуждениями $5f$ -электронов в зону $U6d$, а при более высоких частотах – возбуждениями $3p$ -электронов серы. В частности, максимум при $\hbar\omega = 4$ эВ связан с возбуждением $U5f \uparrow$ -электронов в пустую $U6d \uparrow$ -зону. Очень сильные отличия между расчетом и экспериментом [8] наблюдаются и для недиагональной проводимости $\sigma_{2,xy}(\omega)$ (рис. 3), которые также связаны с неверным описанием возбуждений $5f$ -электронов урана.

Результаты данного расчета резко контрастируют с достаточно хорошим согласием

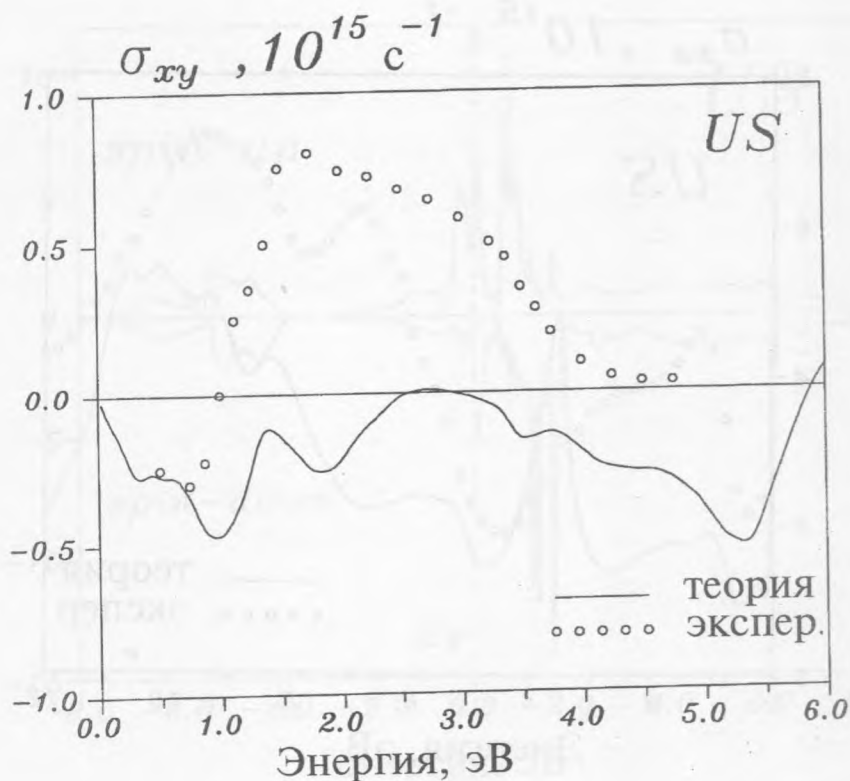


Рис. 3. Частотная зависимость недиагональной проводимости $\sigma_{2,xy}(\omega)$. Сплошная линия – расчет, ○ ○ ○ – эксперимент [8].

между теорией и экспериментом, достигнутым для металлов и соединений, не имеющих валентных f -электронов [5, 6]. Аналогичная картина получена и для соединения UTe , где сильный пик на зависимости $\sigma_{1,xx}(\omega)$ при энергии 2,5 эВ, связанный с возбуждением $5f$ -электронов урана, также не имеет отвечающего ему пика на экспериментальной кривой. Полученные результаты указывают на специфический характер возбуждения $5f$ -электронов в соединениях урана, что может быть вызвано как сильными поправками к энергиям одноэлектронных возбуждений за счет корреляционных эффектов, так и сильными вершинными поправками, обусловленными как корреляционными эффектами, так и эффектами локального поля.

Данная работа была частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, грант No 94-02-03680-а. Один из авторов (Ю.А.У.) также благодарен Sonderforschungsbereich 252-Darmstadt/Frankfurt/Mainz за финансовую поддержку во время визита.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Reim W., Schoenes J. (1990) in: *Handbook on Ferromagnetic Materials*, vol. 5, Amsterdam: North-Holland; pp. 133-236.
- [2] Von Barth U. and Hedin L. *J. Phys. C: Solid St. Phys.*, **5**, 1629 (1972).
- [3] Williams A. R., Kubler J., and Gellat C. D. *Phys. Rev.*, **B 19**, 6094 (1979).
- [4] Andersen O. K. *Phys. Rev.*, **B 12**, 3060 (1975).
- [5] Uspenskii Yu. A., Maksimov E. G., Rashkeev S. N., and Mazin I. I. *Z. Phys.*, **B 53**, 263 (1983).
- [6] Успенский Ю. А., Кулатов Э. Т., Халилов С. В. *ЖЭТФ*, **107**, 1708 (1995).
- [7] Schoenes J. *Physica B*, **102**, 45 (1980).
- [8] Reim W., Schoenes J., and Fogt O. *J. Appl. Phys.*, **58**, 1853 (1984).

Поступила в редакцию 2 апреля 1996 г.