

СПИНОВЫЕ ФЛУКТУАЦИИ И ПРОСТРАНСТВЕННАЯ ДИСПЕРСИЯ В СОЕДИНЕНИЯХ УРАНА

В.П. Силин, А.З. Солонцов

Рассмотрено влияние спиновых флуктуаций на тепловое расширение и теплоемкость в соединениях урана. Показано, что при переходе от слабого ферромагнетика UPt к спин-флуктуационным системам UPt₂ и UAl₂ и соединению с тяжёлыми фермионами UPt₃ роль флуктуационных эффектов возрастает, сопровождаясь ослаблением пространственной дисперсии спиновой восприимчивости.

Для объяснения электронных и магнитных свойств интерметаллических соединений на основе урана, характеризующихся большим электронным вкладом в теплоемкость [1, 2], используется представление о тяжёлых фермионах [3]. В сплавах UAl₂, UPt₂, UPt₃ обнаружены аномальные температурные зависимости теплоемкости, теплового расширения, магнитной восприимчивости [4–6], свидетельствующие о существенной роли спиновых флуктуаций (СФ) [4, 7].

В настоящей работе на основе флуктуационной теории магнитообъемных эффектов [8, 9] обсуждается влияние СФ на тепловое расширение и теплоемкость урановых соединений. Как показано в [9], для не слишком высоких температур и магнитных полей, когда $\kappa T, \mu_B B \ll \kappa T_{SF}$, (μ_B – магнетон Бора, κT_{SF} – характерная энергия СФ), флуктуационный вклад в коэффициент теплового расширения ферромагнитных и почти ферромагнитных металлов имеет вид: $a_{fl} = a_p T + a_{SW} T^{3/2}$. Парамагнетический вклад характеризуется коэффициентом $a_p = - (9\pi)^{-1} C \kappa^2 K_B^{-1} \Gamma_0^{-1} [\chi_{\parallel} - \chi_{\parallel}(q_1)]$ в ферромагнитных и $a_p = (6\pi)^{-1} C \kappa^2 K_B^{-1} [\chi_{\parallel} - \chi_{\parallel}(q_1)]$ в парамагнитных металлах. Вклад магнонов описывается коэффициентом $a_{SW} = - (5/8\pi) \zeta(5/2) \times \times C K_B^{-1} q_0^3 \kappa^{5/2} (\pi \hbar \omega_{\max})^{-3/2} \chi_{\parallel}$. Здесь $C = - (V/2) \partial(\chi_{\parallel} V)^{-1} / \partial \ln V$ – магнитоупругая постоянная; V – объем, K_B – модуль всестороннего сжатия при постоянной магнитной индукции $B = \text{const}$, $\Gamma_0 = \hbar A/D$, A и D – коэффициенты разложения продольной и поперечной компонент динамической спиновой восприимчивости $\chi_{\parallel}^{-1}(\omega, q) = \chi_{\parallel}^{-1}(q) - iD\omega/|q| \chi_p = \chi_{\parallel}^{-1} + (Aq^2 - iD\omega/|q|)/\chi_p$; χ_p – паулиевская восприимчивость; q_0 – максимальный волновой вектор; $\hbar \omega_{\max} \sim \kappa T_{SF} \sim (\chi_p/\chi_{\parallel} A)^{3/2} \Gamma_0$ – энергия магнонов; q_1 – вектор обрезания; $\zeta(x)$ – дзета-функция Римана.

Температурная зависимость коэффициента теплового расширения, обусловленная СФ, аналогична зависимости от температуры флуктуационного вклада в теплоемкость [8, 10] $C_{fl} = \gamma_p T + \gamma_{SW} T^{3/2}$, где $\gamma_p = (\kappa^2/12\pi\Gamma_0) [\ln \chi_{\parallel}/\chi_{\parallel}(q_2) + 2 \ln \chi_{\parallel}(q_0)/\chi_{\parallel}(q_2)]$, $\gamma_{SW} = (15/32) \zeta(5/2) q_0^3 \kappa^{5/2} (\pi \hbar \omega_{\max})^{-3/2}$ отвечают соответственно вкладам парамагнонов (продольных и поперечных) и спиновых волн, $q_2 \neq q_1$ – вектор обрезания.

Подобно константе Грюнрайzena фононов [11] введем флуктуационные константы Грюнрайzena $\Gamma_p = 3a_p K_B/\gamma_p$ и $\Gamma_{SW} = 3a_{SW} K_B/\gamma_{SW}$, описывающие соответственно эффекты парамагнонов и магнонов, для которых получаем значения $\Gamma_p = \Gamma/(1 + \chi_p/\chi_{\parallel} A q_1^2) [\ln(1 + \chi_{\parallel} A q_2^2/\chi_p) + 2 \ln q_2^2/q_0^2]$, $\Gamma_{SW} = 2\Gamma$ (где $\Gamma = \partial \ln(\chi_{\parallel} V)/\partial \ln V$) в ферромагнетиках и $\Gamma_p = \Gamma/(1 + \chi_p/\chi_{\parallel} A q_1^2) \ln(1 + \chi_{\parallel} A q_2^2/\chi_p)$ в парамагнетиках. Константы Грюнрайzena Γ_p и Γ_{SW} пропорциональны величине $\Gamma = [\Gamma_e - 2\Psi\nu \partial \ln(\Psi/V)/\partial \ln V]/(1 + 2\Psi\nu)$ [6, 8, 9] (Ψ – параметр обменного взаимодействия, $\Gamma_e = \partial \ln(\nu V)/\partial \ln V$ – электронная константа Грюнрайzena, ν – плотность состояний электронов с заданным спином на поверхности Ферми), которая в случае слабых ферромагнетиков ($0 < - (1 + 2\Psi\nu) \ll 1$) и почти ферромагнитных металлов ($0 < 1 + 2\Psi\nu \ll 1$) по абсолютной величине существенно превосходит Γ_e . При этом Γ_p существенно зависит от пространственной дисперсии неоднородной спиновой восприимчивости $\chi_{\parallel}(q)$. Например, в парамагнитных металлах с сильной

дисперсией ($Aq_1^2, Aq_2^2 \gg \chi_p/\chi_l$) отношение $\Gamma_p/\Gamma \approx \ln^{-1}(\chi_l Aq_2^2/\chi_p) \ll 1$ мало. В пределе слабой дисперсии ($Aq_1^2, Aq_2^2 \ll \chi_p/\chi_l$) $\Gamma_p/\Gamma \sim (q_1/q_2)^2$.

Таблица 1

Теплоемкость и тепловое расширение

Соединение	$\gamma, 10^4 \cdot \text{эрг/моль} \cdot \text{K}^2$	$\gamma_{SW}, 10^4 \cdot \text{эрг/моль} \cdot \text{K}^{5/2}$	$a, 10^{-8} \text{K}^{-2}$	$\chi_p, 10^{-3} \text{моль}^{-1}$	Γ	$d, \text{Å}$
UAl ₂	133	—	36	3,60	11,9	3,38
UPt	109	4,0	-2,6	5,29	-33,2	3,61
UPt ₂	75	—	11	2,94	20,0	3,81
UPt ₃	422	—	120	7,72	47,9	4,12

Таблица 2

Флуктуационные вклады в теплоемкость и тепловое расширение

Соединение	$(1 + 2\Psi\nu)^{-1}$	$\gamma_e, 10^4 \cdot \text{эрг/моль} \cdot \text{K}^2$	$\gamma_p, 10^4 \cdot \text{эрг/моль} \cdot \text{K}^2$	$a_e, 10^{-8} \text{K}^{-2}$	$a_{SW}, 10^{-8} \text{K}^{-5/2}$	$a_p, 10^{-8} \text{K}^{-2}$	Γ_p
UAl ₂	5,1	51	82	3,3	—	33	31,7
UPt	-5,3	73	36	2,3	-0,4	-4,0	-17,7
UPt ₂	8,6	25	50	0,62	—	10	40,3
UPt ₃	20,6	27	395	0,52	—	119	79,8

В табл. 1 приведены значения коэффициентов γ , γ_{SW} , характеризующих электронный (γT) и спиновой вклады в теплоемкость, и величина $a = a/T|_{T=1,5K}$, определяющая коэффициент теплового расширения a , в слабом ферромагнетике UPt с температурой Кюри 27 К /12, 13/ и почти ферромагнитных сплавах UAl₂, UPt₂, UPt₃ /6/. Здесь же приводятся взятые из /6, 12/ значения χ_l , Γ и расстояния d между ближайшими атомами урана. При этом считаем, что орбитальный вклад в магнитную восприимчивость этих соединений одинаковый /4/ $0,96 \cdot 10^{-3} \text{моль}^{-1}$, а для сжимаемостей UPt и UPt₂ используем значение $K_B^{-1} \cong 0,5$ Мбар, близкое к измеренному (0,48 Мбар) в UPt₃ /6/, для UAl₂ полагаем /6/ $K_B^{-1} = 1,35$ Мбар.

Используя приближение /6/ $\Gamma_e = 7/3$, $\Psi/V = \text{const}$ и выражения /8, 9/ $\chi_l = \chi_p/(1 + 2\Psi\nu)$ и $\chi_l = -\chi_p/2(1 + 2\Psi\nu)$ для спиновой восприимчивости в пара- и ферромагнетиках и учитывая приведенные в табл. 1 значения Γ и χ_l , находим коэффициент стонеровского усиления $(1 + 2\Psi\nu)^{-1}$, плотность состояний электронов ν и оцениваем фермиевские вклады электронов в теплоемкость ($\gamma_e T$) и в коэффициент теплового расширения ($a_e T$) /11/. Полагая $a_{SW} = 2\Gamma\gamma_{SW}/3K_B$, $\gamma_p = \gamma - \gamma_e$ и $a_p = a - a_e$ для парамагнитных металлов и $a_p = a - a_e - a_{SW}\sqrt{1,5}$ для ферромагнитного сплава UPt, находим флуктуационные вклады в теплоемкость и тепловое расширение сплавов урана (табл. 2). Полученное значение a_p в UAl₂ очень близко к оценке $a_p = 34 \cdot 10^{-8} \text{K}^{-2}$, которую можно получить, используя измеренные зависимости магнитной восприимчивости сплава UAl₂ от температуры /4/ $\propto T^2$ и магнитного поля /5/ $\propto B^2$.

Из табл. 2 видно, что флуктуационные эффекты играют существенную роль во всех рассматриваемых сплавах урана. Вклады СФ в теплоемкость и тепловое расширение парамагнитных сплавов UAl₂, UPt₂, UPt₃ превышают фермиевские вклады электронов. Наиболее ярко влияние СФ проявляется в соединении UPt₃, где $a_p/a_e \approx 230$, $\gamma_p/\gamma_e \approx 14,5$. В ферромагнетике UPt флуктуационные и фермиевские вклады в γ и a сравнимы.

Большие значения парамагнитных констант Грюнайзена $\Gamma_p \sim \Gamma$ (табл. 2) указывают на сравнительно слабую пространственную дисперсию спиновой восприимчивости в урановых соединениях. В частности, в UAl₂, UPt₂ и UPt₃ имеем $\Gamma_p > \Gamma$, что отвечает векторам обрезания $q_1 > q_2$.

Для иллюстрации эффектов СФ, определяющихся пространственной дисперсией спиновой восприимчивости, для простоты используем условие $\chi_l Aq_1^2/\chi_p \gg 1$, качественно не отражающееся на полученных результатах. Полагая $q_2 = \pi/d$, по величине Γ_p оцениваем коэффициент A в парамагнитных металлах. В фер-

ромагнетике UPt величину A находим по жесткости магнонов $\hbar\omega_{\max}/q_0^2 = 41,0 \text{ мэВ} \cdot \text{Å}^2$, полученной из γ_{SW} . По значениям γ_p и Γ_p оцениваем максимальный волновой вектор магнонов q_0 и параметр Γ_0 , определяющий релаксацию парамагнонов. Величины $\chi_f A q_0^2 / \chi_p$, $A q_0^2$, q_2 , q_0 , A , Γ_0 для урановых соединений приведены в табл. 3. Для сравнения там же приведены параметры слабых ферромагнетиков MnSi и Ni₃Al, измеренные непосредственно с помощью неупругого рассеяния нейтронов /10/.

Т а б л и ц а 3

Спектральные характеристики флуктуаций

Соединение	$\chi_f A q_0^2 / \chi_p$	$A q_0^2$	$q_2, \text{Å}^{-1}$	$q_0, \text{Å}^{-1}$	$A, \text{Å}^2$	$\Gamma_0, 10^{-2} \text{эВ} \cdot \text{Å}^3$
UAl ₂	0,453	0,0887	0,929	—	0,103	1,53
UPt	2,95	1,11	0,870	0,768	1,47	4,37
UPt ₂	0,642	0,0747	0,824	—	0,110	3,16
UPt ₃	0,822	0,0399	0,763	—	0,0686	0,610
MnSi	2,22	0,0983	0,860	0,4	0,133	5,46
Ni ₃ Al	78,9	1,23	1,10	0,1	1,02	49,5

Указанные соединения существенно различаются величиной пространственной дисперсии спиновой восприимчивости, характеризуемой коэффициентом A . В ряду сплавов урана UPt — UPt₂ — UAl₂ — UPt₃ величина A убывает, меняясь примерно в 20 раз при переходе от слабого ферромагнетика UPt к соединению UPt₃ с тяжелыми фермионами. Величина Γ_0 также убывает. Спин-флуктуационные системы UPt₂, UAl₂, которым отвечает $A \sim 0,1 \text{ Å}^2$, занимают промежуточное положение. Свойства ферромагнитного сплава UPt близки к свойствам слабых ферромагнетиков MnSi и Ni₃Al, где, как и в UPt, флуктуационные вклады в тепловое расширение и теплоемкость сравнимы с вкладом фермиевских возбуждений электронов /9, 10/.

Полученная оценка величины Γ_0 в UPt₃ хорошо согласуется с результатами непосредственного измерения спектра флуктуаций с помощью неупругого рассеяния нейтронов $\Gamma_0 = 0,587 \cdot 10^{-2} \text{ эВ} \cdot \text{Å}^3$ /14/.

Анализ температурных зависимостей теплового расширения и теплоемкости указывает на существенную роль флуктуационных эффектов в урановых соединениях, проявление которых определяется пространственной дисперсией спиновой восприимчивости. Большие значения электронных вкладов в тепловое расширение и теплоемкость систем с тяжелыми фермионами типа UPt₃ обусловлены спиновыми флуктуациями электронов в условиях слабой пространственной дисперсии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Stewart G. R. Rev. Mod. Phys., 56, № 4, 755 (1984).
2. Алексеевский Н. Е., Хомский Д. И. УФН, 147, № 4, 767 (1985).
3. Фетисов Е. П., Хомский Д. И. ЖЭТФ, 92, № 1, 105 (1987).
4. Brodsky M. V. J. de Phys., 40, C4-147 (1979).
5. Frings P. H., Franse J. J. M. Phys. Rev., 31B, № 7, 4355 (1985).
6. Franse J. J. M. J. Less Common Met., 121, 73 (1986).
7. Cottey D., Pethik C. J. Phys. Rev., 33B, № 11, 7508 (1986).
8. Moriya T. Spin fluctuations in itinerant electron ferromagnetism. Berlin, Springer-Verlag, 1985.
9. Силин В. П., Солонцов А. З. Препринт ФИАН № 238, М., 1987.
10. Lonzarich G. G. JMMM, 54-57, 612 (1986).
11. Ашкрофт Н., Мермин Н. Физика твердого тела, ч. 2, М., Мир, 1979.
12. Kamra S. F. et al. Physica, 119B+C, 72 (1983).
13. Frings P. H., Franse J. J. M. JMMM, 51, 141 (1985).
14. Aerpli G., Bucher E., Shirane G. Phys. Rev., 32B, № 11, 7579 (1985).

Поступила в редакцию 22 октября 1987 г.