

*Frustracja i współzawodnictwo oddziaływań magnetycznych w
związkach międzymetalicznych ziem rzadkich*

Ł. Gondek

Plan wystąpienia

Cel badań

Metodologia badań

Badane materiały

Wybrane wyniki

Wnioski ogólne

Wskazanie korelacji pomiędzy:

-budową krystaliczną

(możliwość frustracji topologicznej, pole krystaliczne)

-oddziaływaniami wymiennymi

(współzawodnictwo oddziaływań, zasadność użycia modelu RKKY)

-strukturą elektronową

(efekt Kondo, hybrydyzacja f-d)

Metodologia badań

-dyfrakcja rentgenowska

(określenie struktury, wpływ podstawień)

-rozpraszanie neutronów

(dyfrakcja: badania struktury magnetycznej, INS: pole krystaliczne)

-magnetometria

(podatność magnetyczna, namagnesowanie)

-pomiar transportu elektrycznego

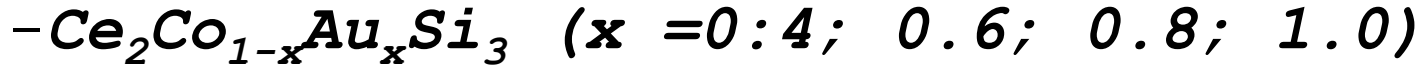
(oporność elektryczna, wsp. Seebecka)

-kalorymetria

(przejścia fazowe, pole krystaliczne, fonony, efekt magnetokaloryczny)

-spektroskopia fotoelektronów

(struktura elektronowa pasma walencyjnego i poziomów rdzeniowych)

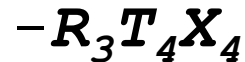


Związki o strukturze heksagonalnej typu AlB_2



($R = La-Nd, Gd-Er; T = Ni, Cu, Pd, Pt, Au$)

Związki o strukturze heksagonalnej typu $ZrNiAl$



($R = Nd, Ho, Tb; T = Cu, Ag; X = Si, Ge, Sn$)

Związki o strukturze rombowej typu $Gd_3Cu_4Ge_4$



($R = Gd, Dy, Er, Lu$)

Związki o strukturze rombowej typu $Lu_5Ni_2In_4$

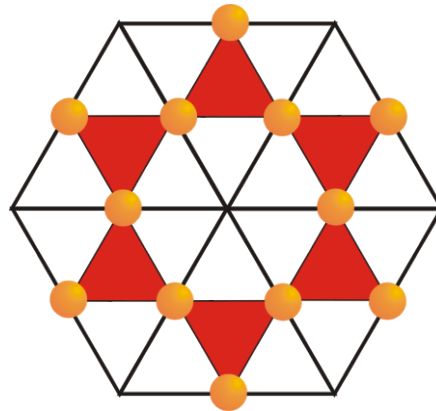
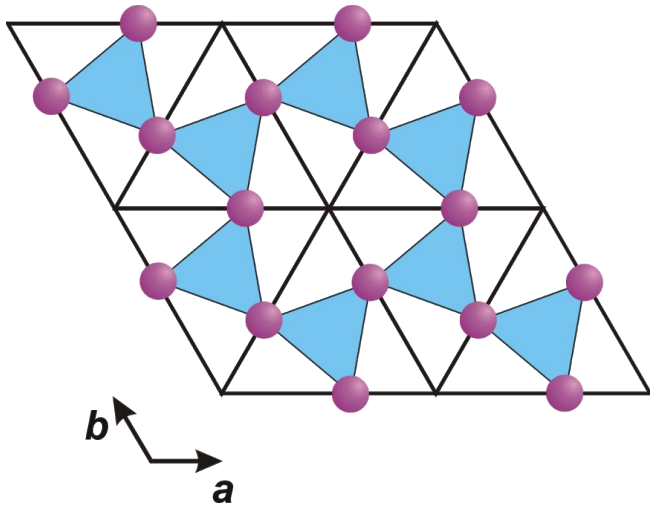
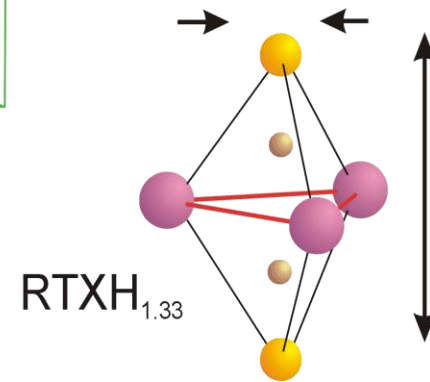
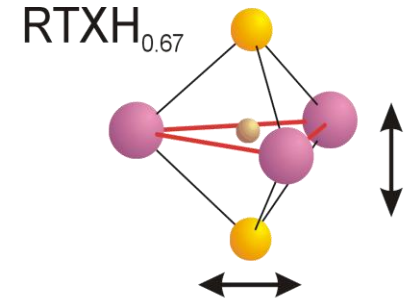
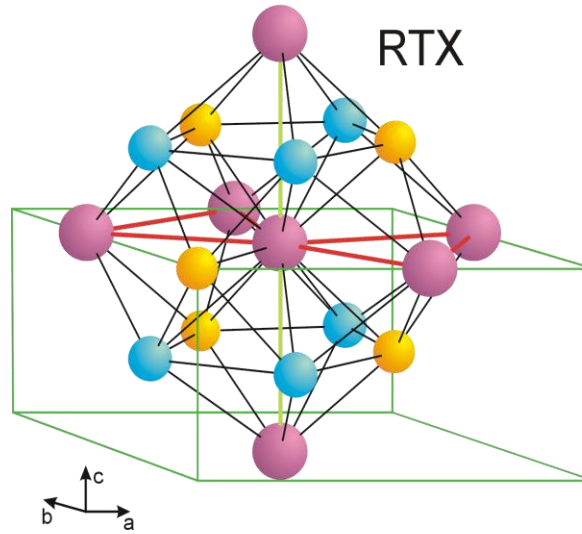
Wybrane wyniki - RPdIn

$R - (3g): x_R 0 0 ; 0 x_R 0 ; -x_R -x_R 0$

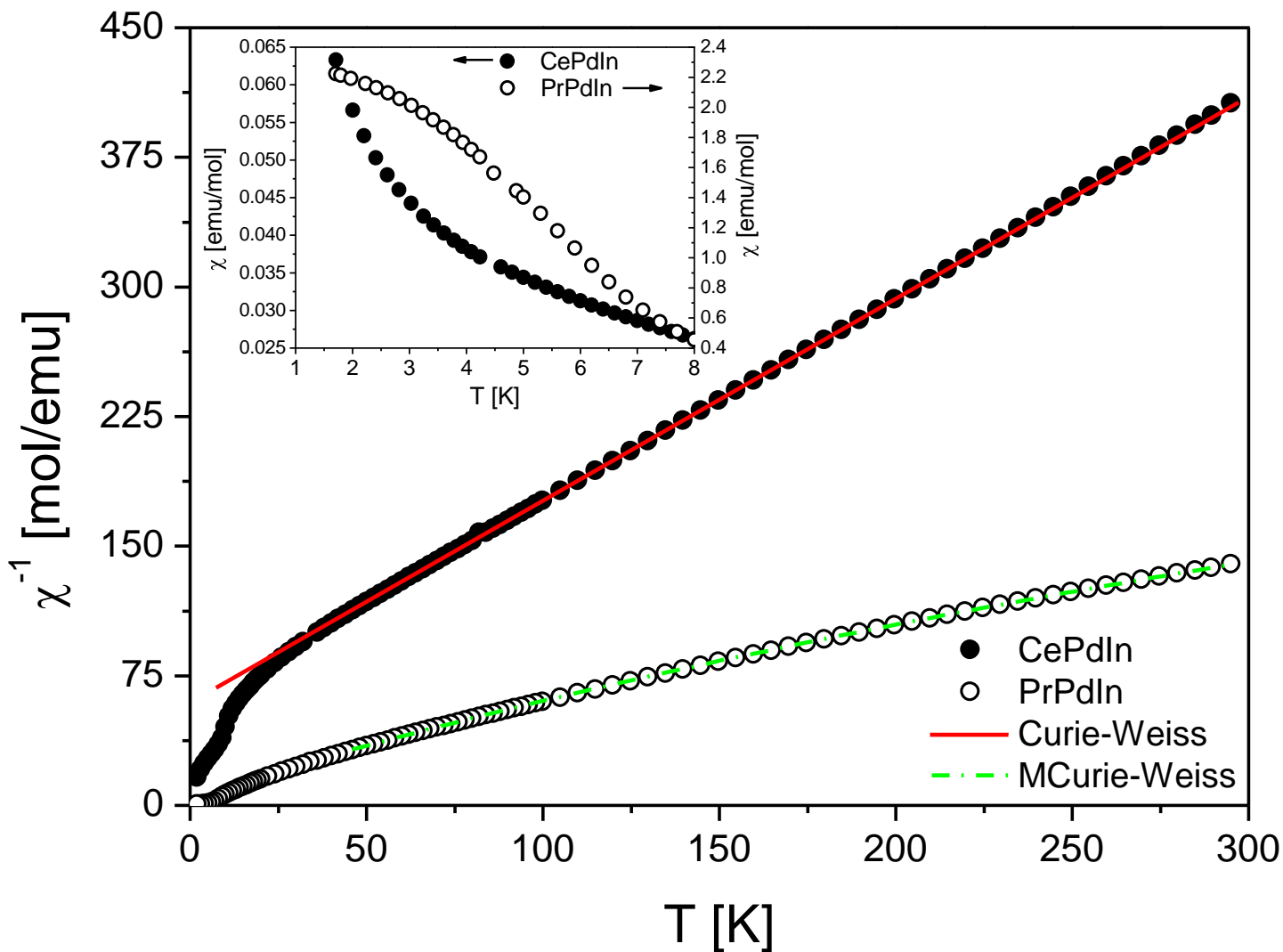
$Pd - (1b): 0 0 0 ;$

oraz $(2c): 1/3 2/3 1/2 ; 2/3 1/3 1/2$

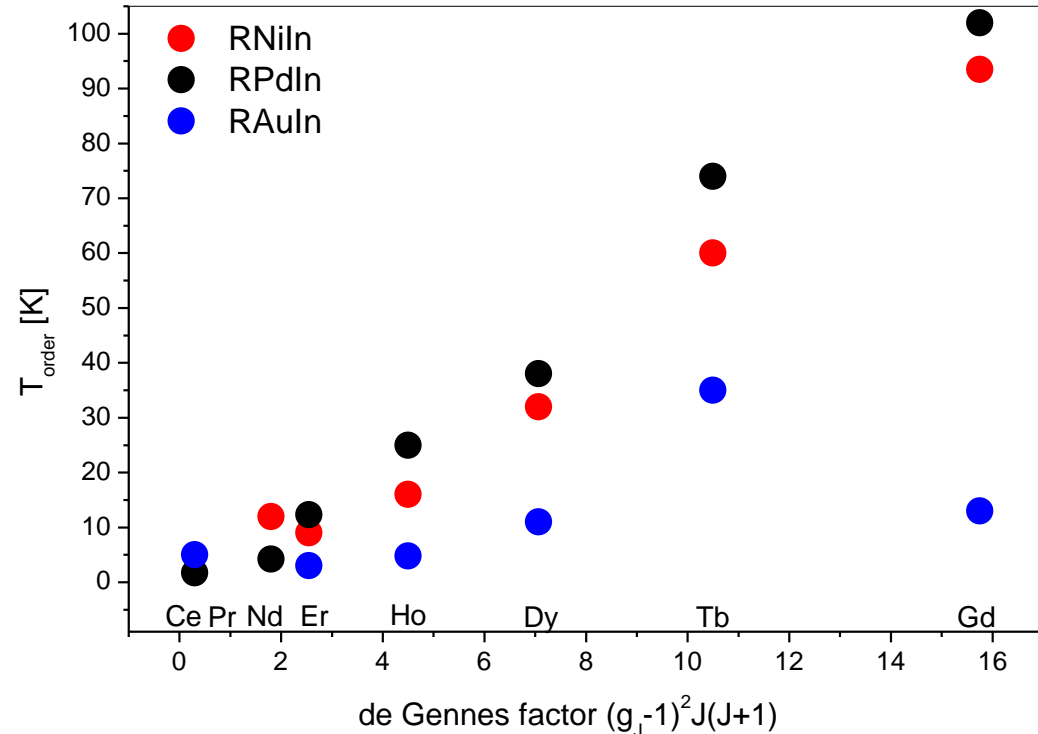
$In - (3f): x 0 1/2 ; 0 x_{In} 1/2 ; -x -x 1/2$



Wybrane wyniki - RPdIn



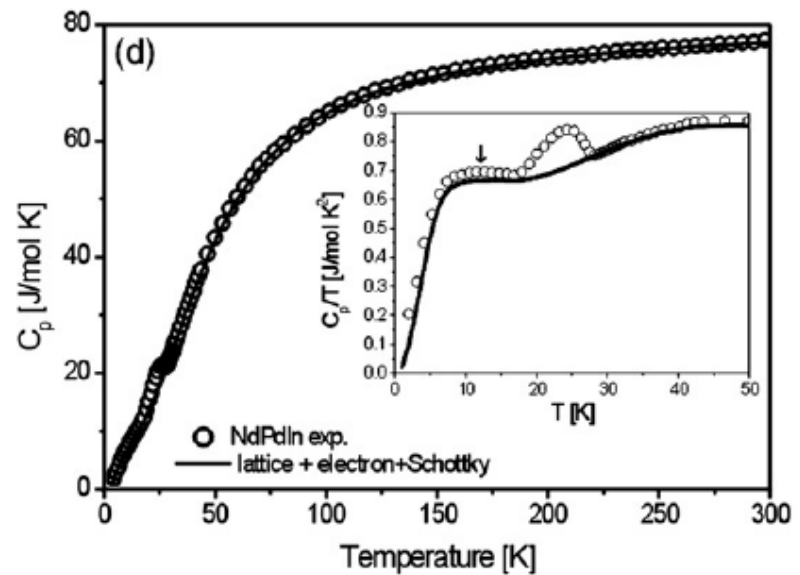
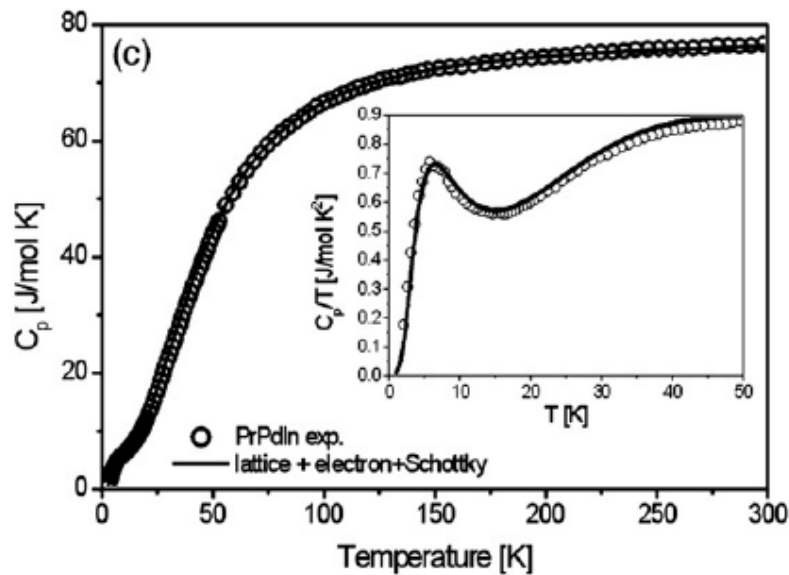
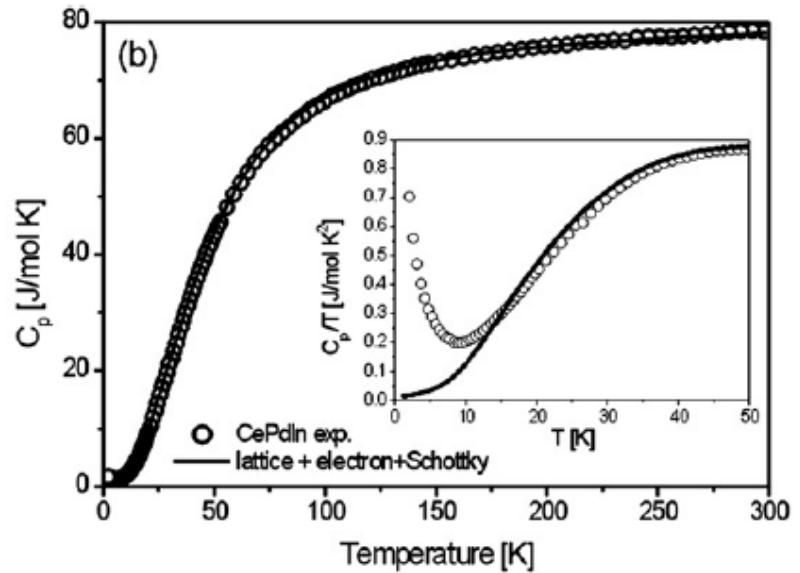
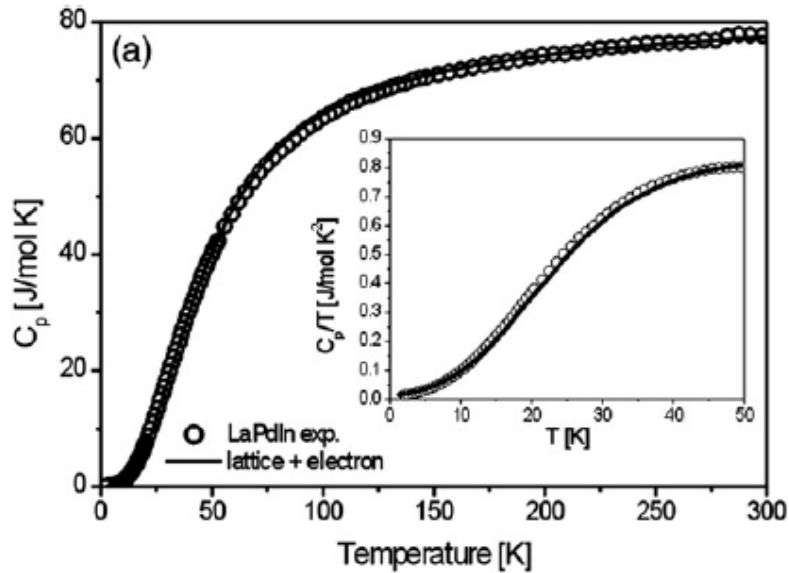
RPdIn	ordering	T_{REO}	ordering	T_{ORD}
Ce	AF?	-	-	1.7 K
Pr	-	-	-	-
Nd	F1	16 K	F2	30 K
Gd	F	-	-	102 K
Tb	F	-	-	74 K
Dy	AF + F	14 K	F	38 K
Ho	F	-	-	23 K
Er	F	-	-	12 K



W pomiarach proszkowej dyfrakcji neutronów nie wykazano uporządkowania dla CePdIn oraz PrPdIn do $T = 0.4$ K.

Dla CePdIn raportowano porządkowanie AF dla monokryształu z momentem $0.10 \mu_B$

Wybrane wyniki - RPdIn

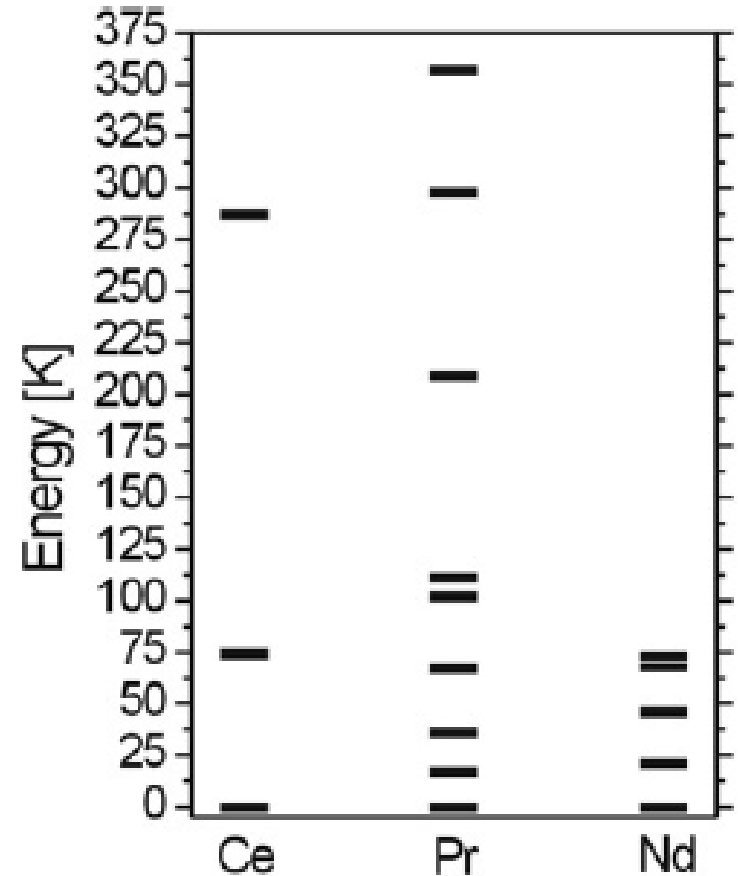


	LaPdIn	CePdIn	PrPdIn	NdPdIn
θ_D (K)	191.2(3)	190.7(7)	190.0(5)	189.5(6)
γ (mJ/(mol K ²))	13.9(1)	13.1(3) ^a	6.8(2)	12.6(3)

θ_D —Debye temperature, γ —Sommerfeld coefficient derived from 2 to 300 K temperature range.

$$C_{ph+el} = 9nR \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx + \gamma T$$

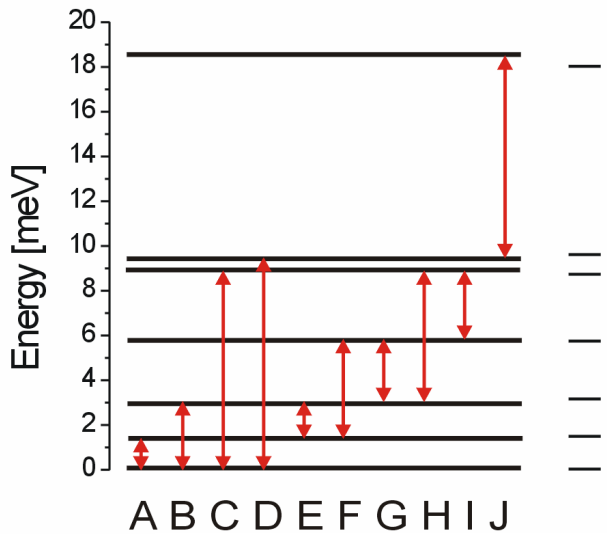
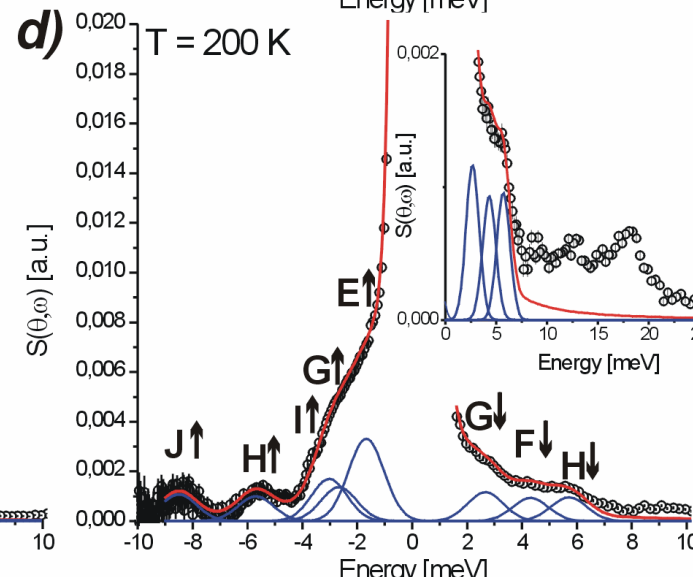
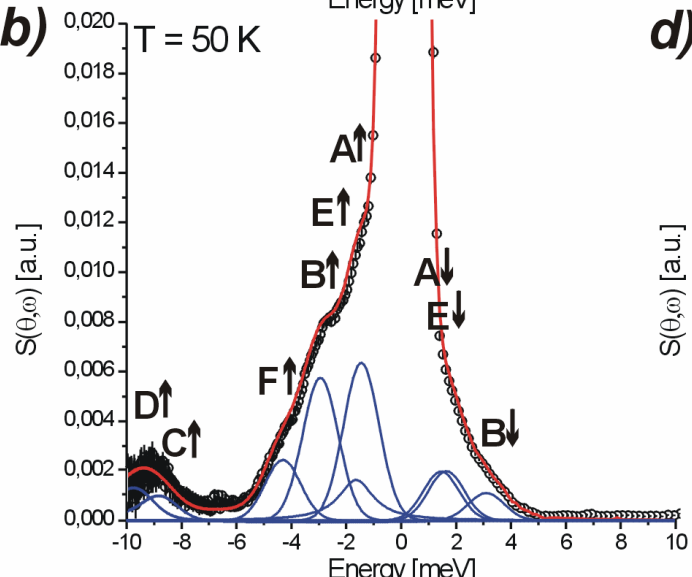
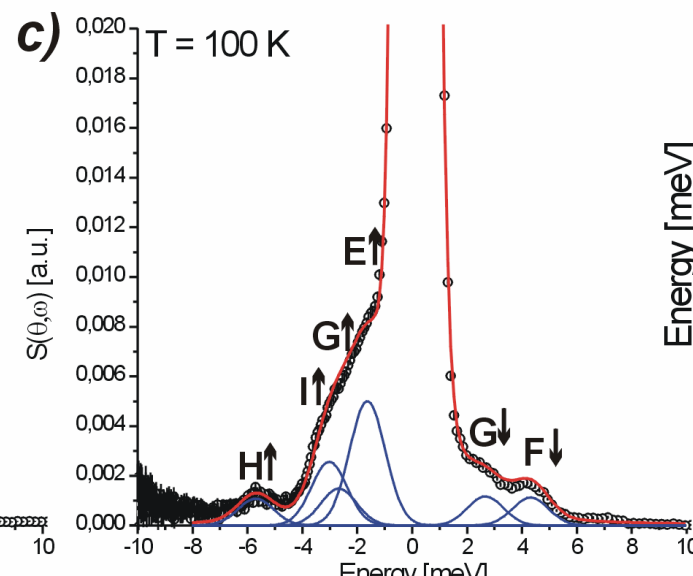
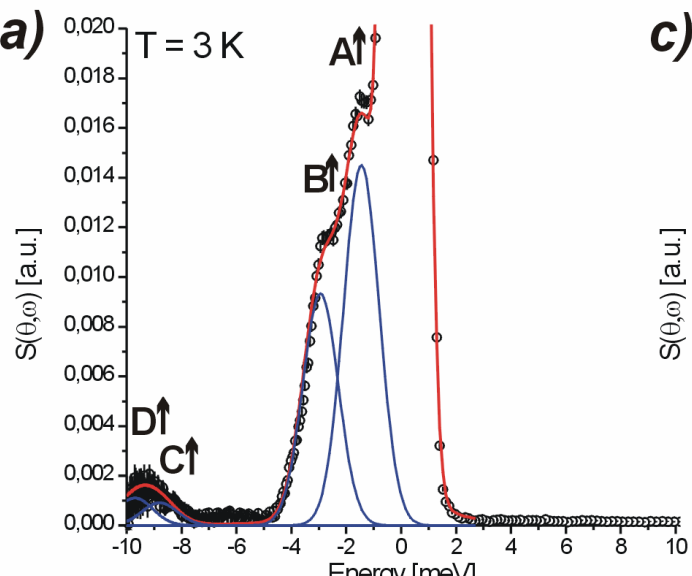
$$C_{Schottky} = \frac{R}{T^2} \left[\frac{\sum_i E_i^2 e^{-\frac{E_i}{T}}}{\sum_i e^{-\frac{E_i}{T}}} - \left(\frac{\sum_i E_i e^{-\frac{E_i}{T}}}{\sum_i e^{-\frac{E_i}{T}}} \right)^2 \right]$$





Wybrane wyniki - RPdIn

AGH

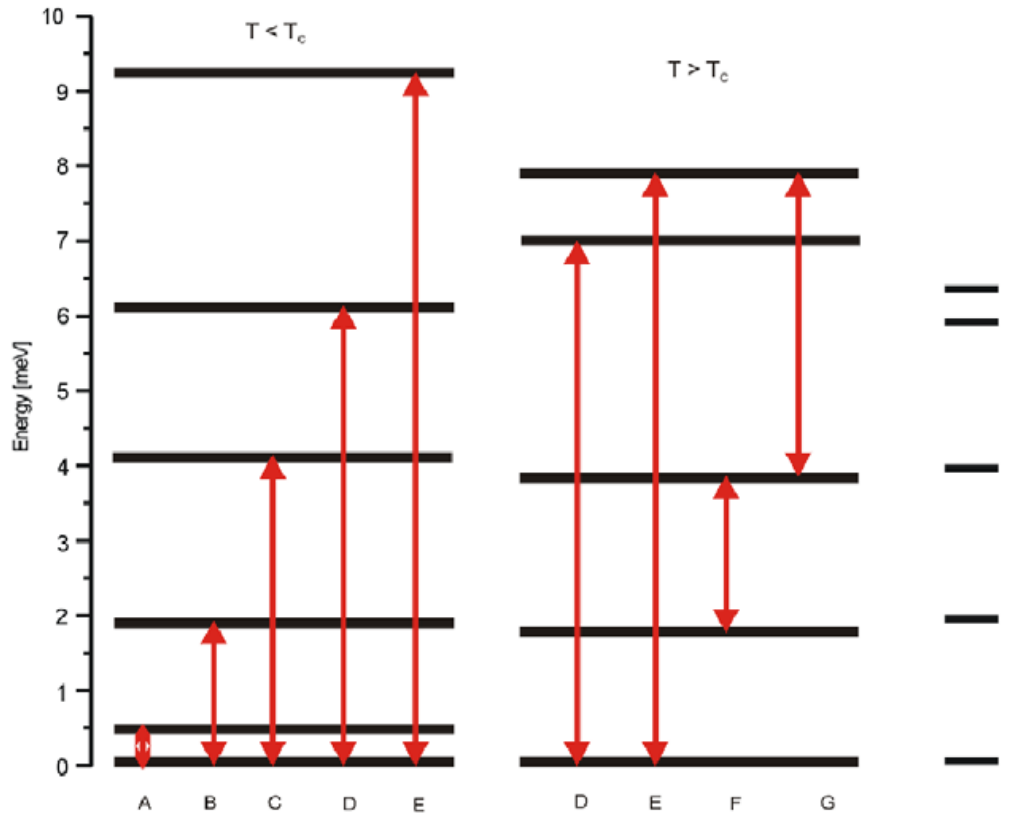
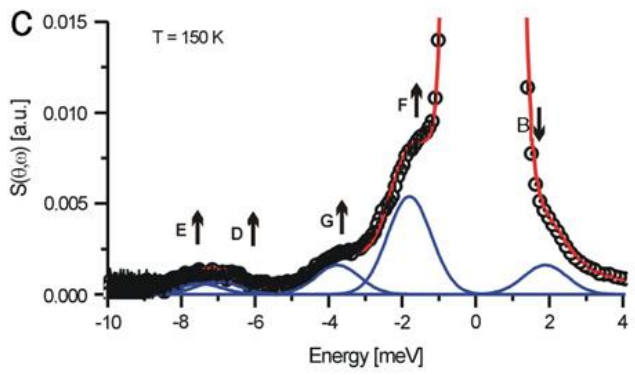
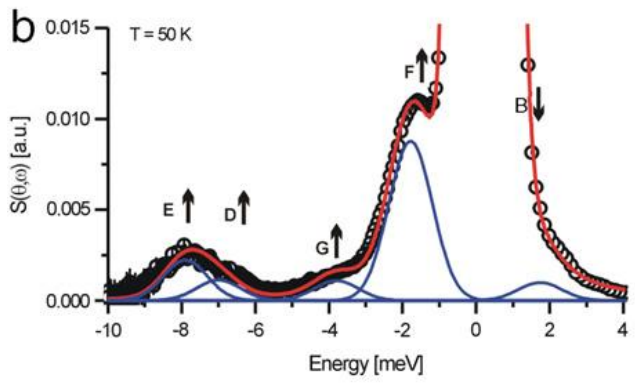
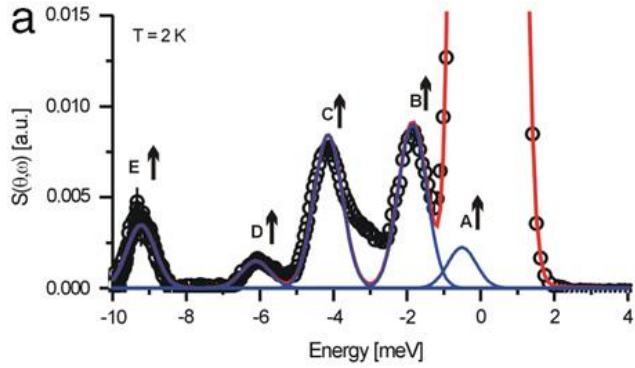


PrPdIn:
INS - Cp



Wybrane wyniki - RPdIn

AGH



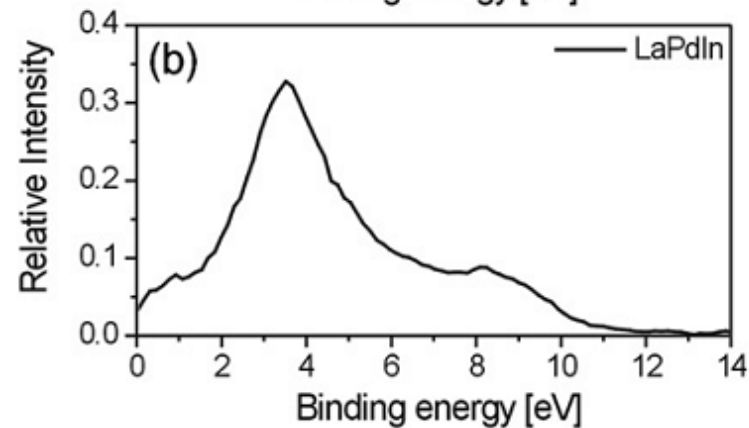
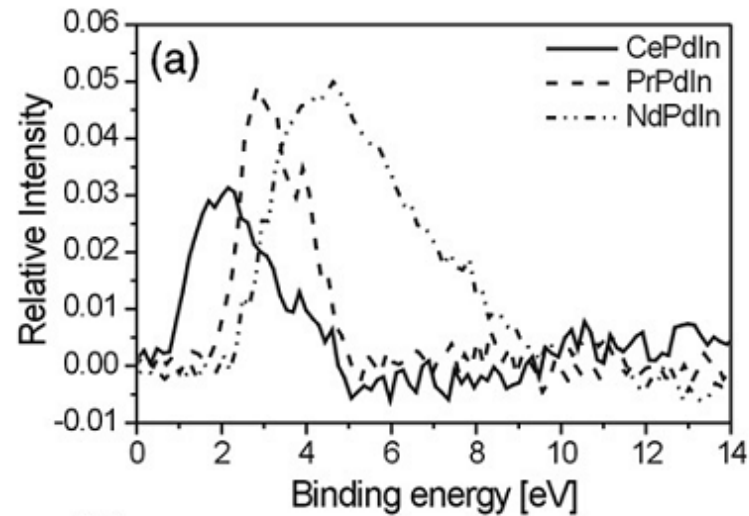
NdPdIn :

INS - Cp

Electronic structure details and hybridization matrix parameters for RPdIn (R = Ce, Pr, Nd) compounds

	CePdIn	PrPdIn	NdPdIn
δ_{4d-4f} (eV)	1.4	0.3	1.8
Δ (meV)	177	149	137
V_{df} (meV)	162	141	126

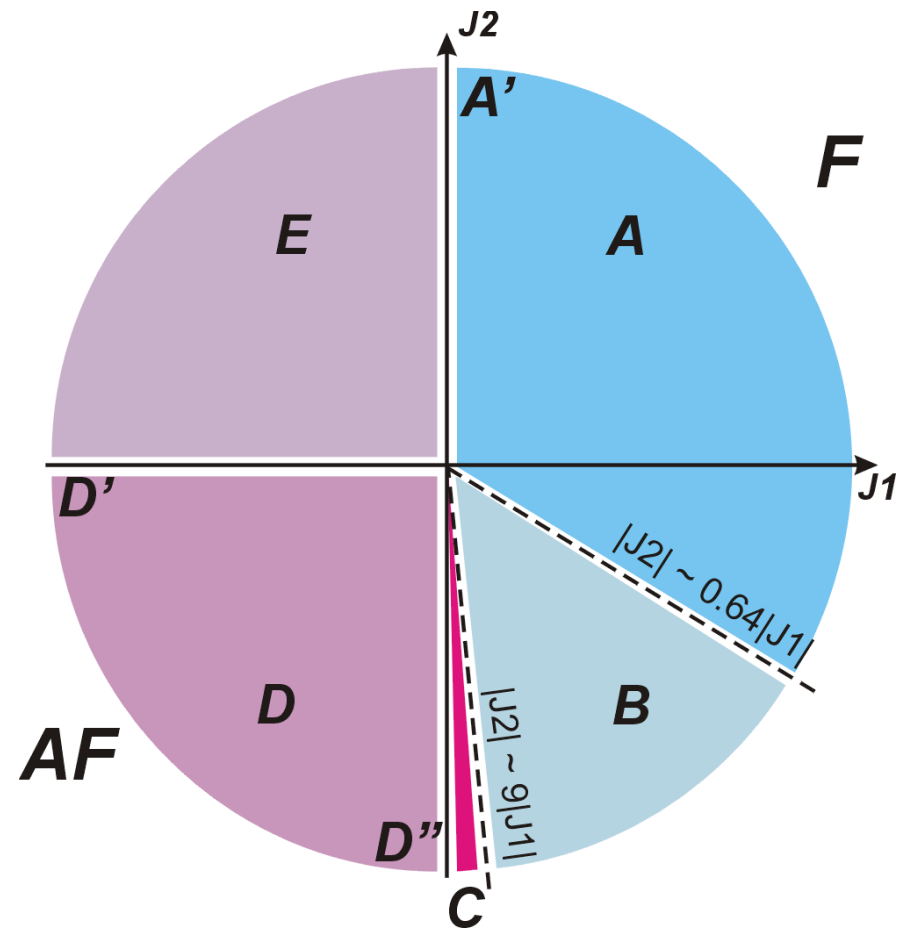
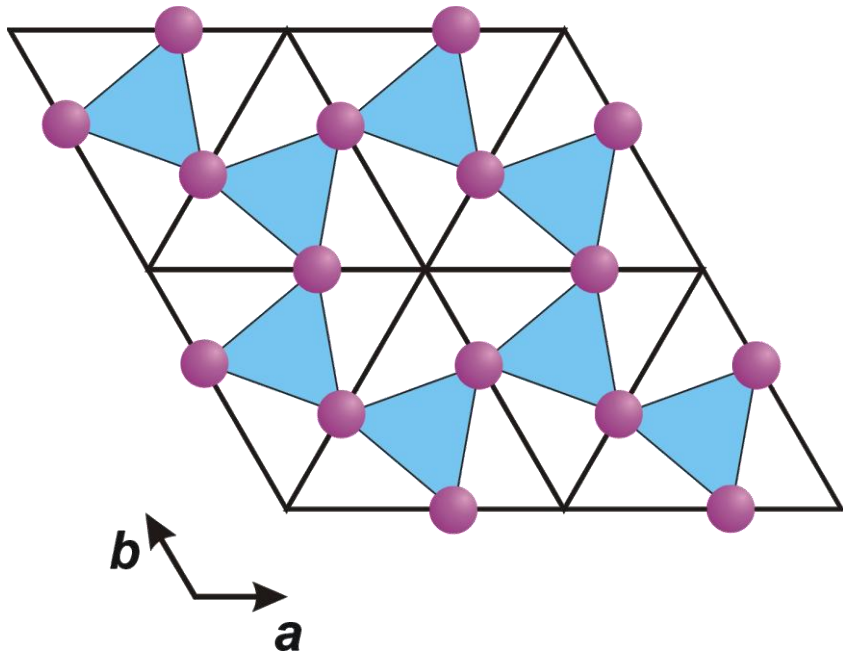
δ_{4d-4f} —energetic separation between Pd 4d and rare earth 4f levels, Δ —Gunnarsson–Schönhammer hybridization parameter, V_{df} — f-d hybridization matrix element.



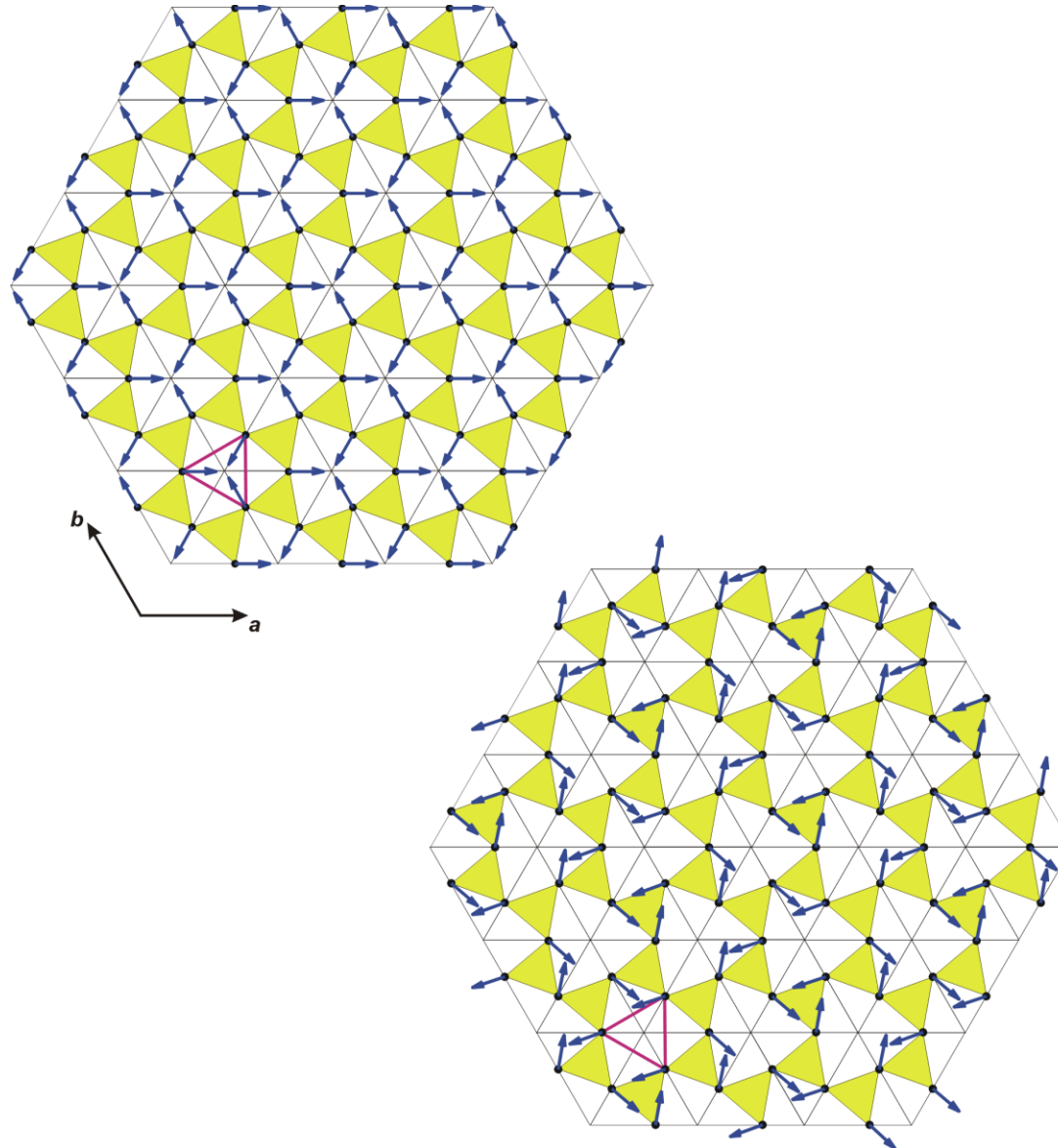
$$V_{ll'm} = \eta_{ll'm} \frac{\hbar^2}{m_e} \frac{\sqrt{r_l^{2l-1} r_{l'}^{2l'-1}}}{d^{l+l'+1}}$$

$$\eta_{ll'm} = \frac{(-1)^{l'+1} (-1)^m (l+l')! (2l)! (2l')!}{6\pi 2^{l+l'} l! l'!} \times \sqrt{\frac{(2l+1)(2l'+1)}{(l+m)!(l-m)!(l'+m)!(l'-m)!}}$$

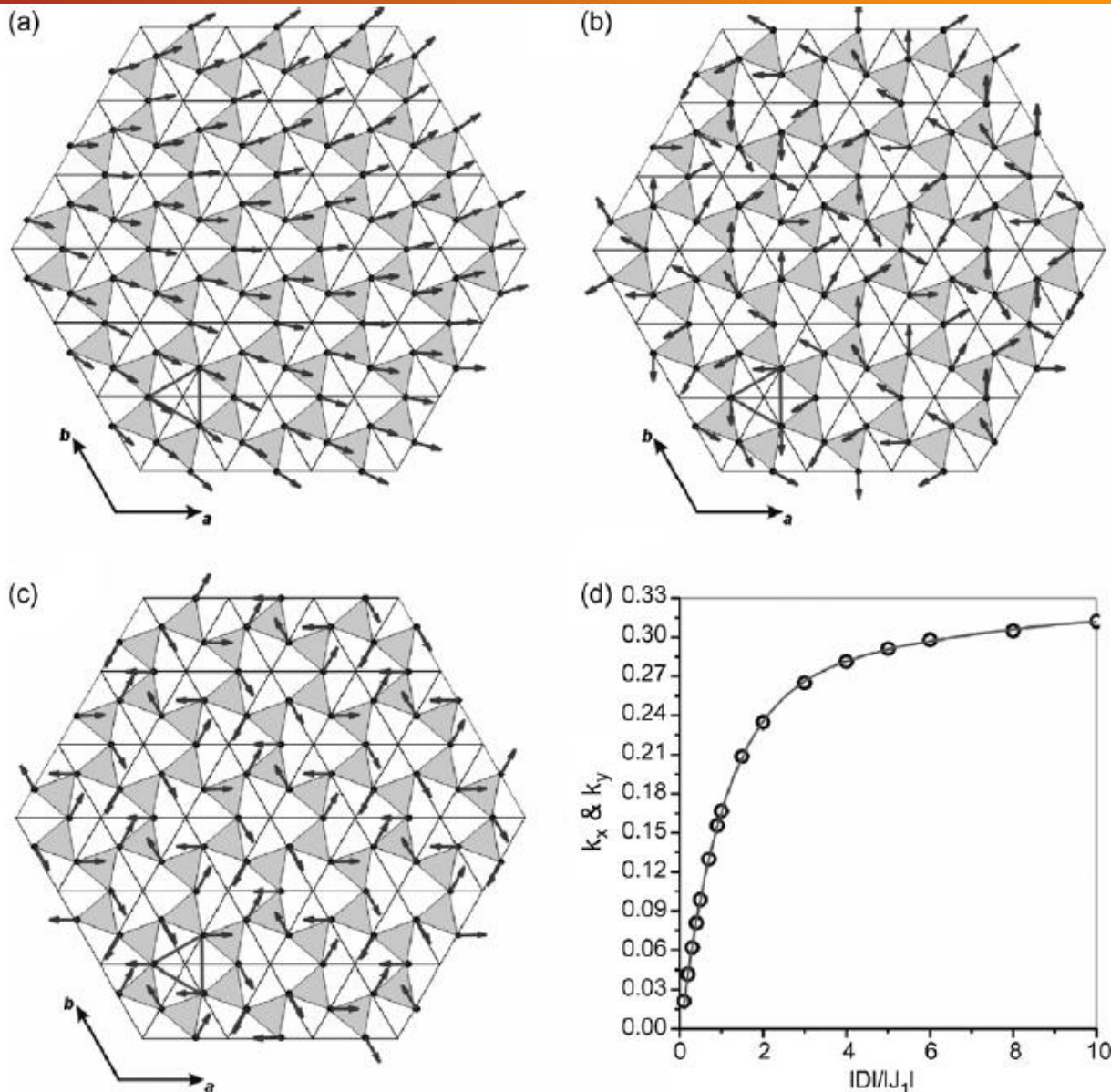
$$H = -J_1 \sum_{i,i+1} \vec{S}_i \vec{S}_{i+1} - J_2 \sum_{i,i+2} \vec{S}_i \vec{S}_{i+2} - \vec{D} \sum_{i,i+1} \vec{S}_i \times \vec{S}_{i+1}$$

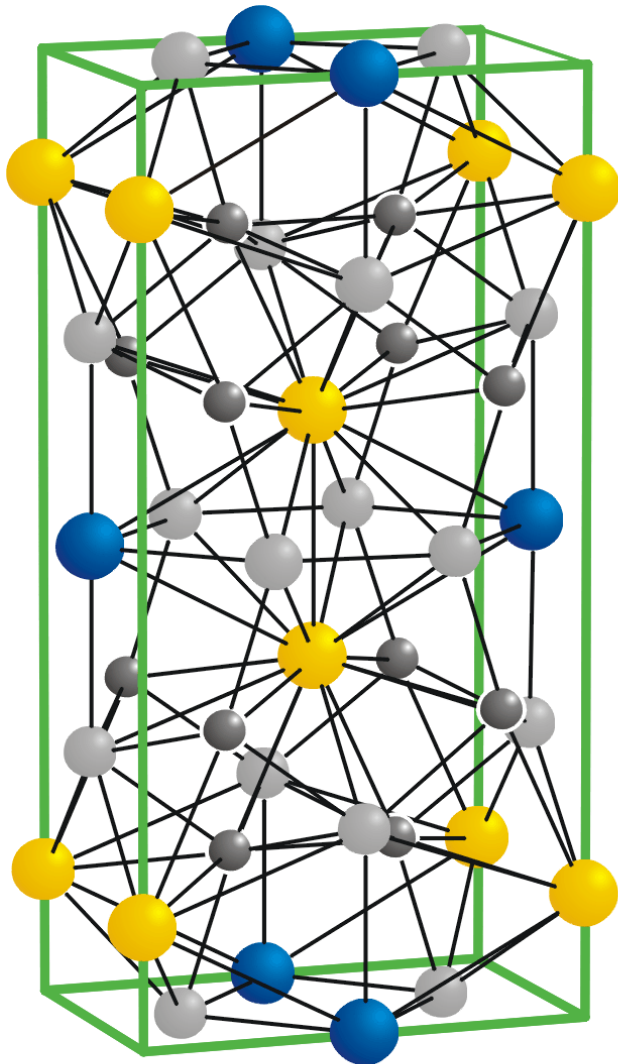


Wybrane wyniki - RPdIn



Wybrane wyniki - RPdIn



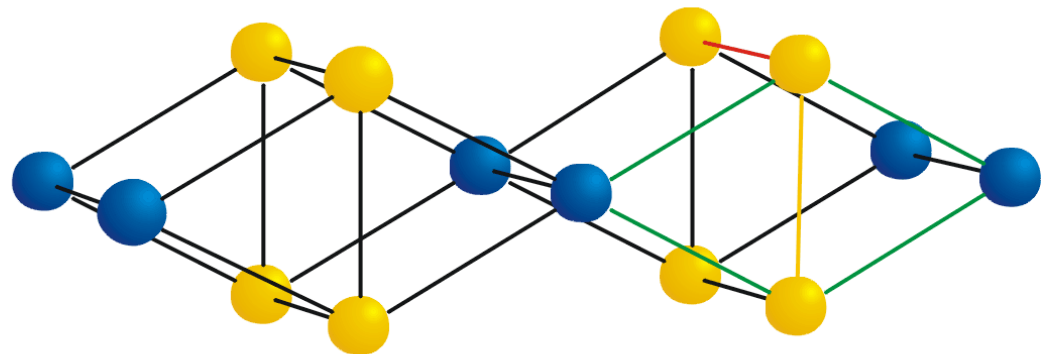


Grupa przestrzenna: $Immm$

$$R_{R4e-R4e} : \sim 3.8 \text{ \AA}$$

$$R_{R2d-R2d} : \sim 4.4 \text{ \AA}$$

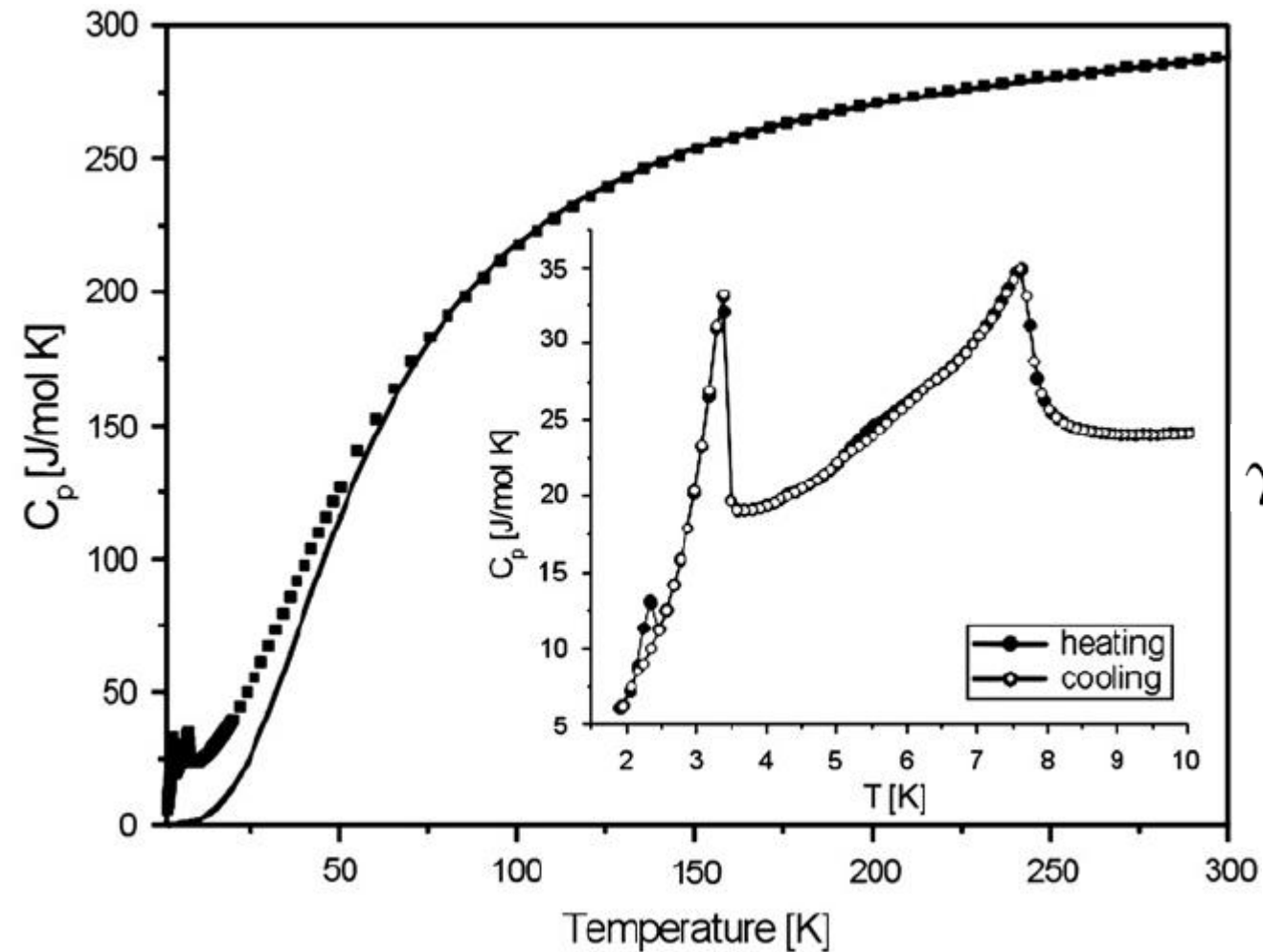
$$R_{R2d-R4e} : \sim 3.9 \text{ \AA}$$





AGH

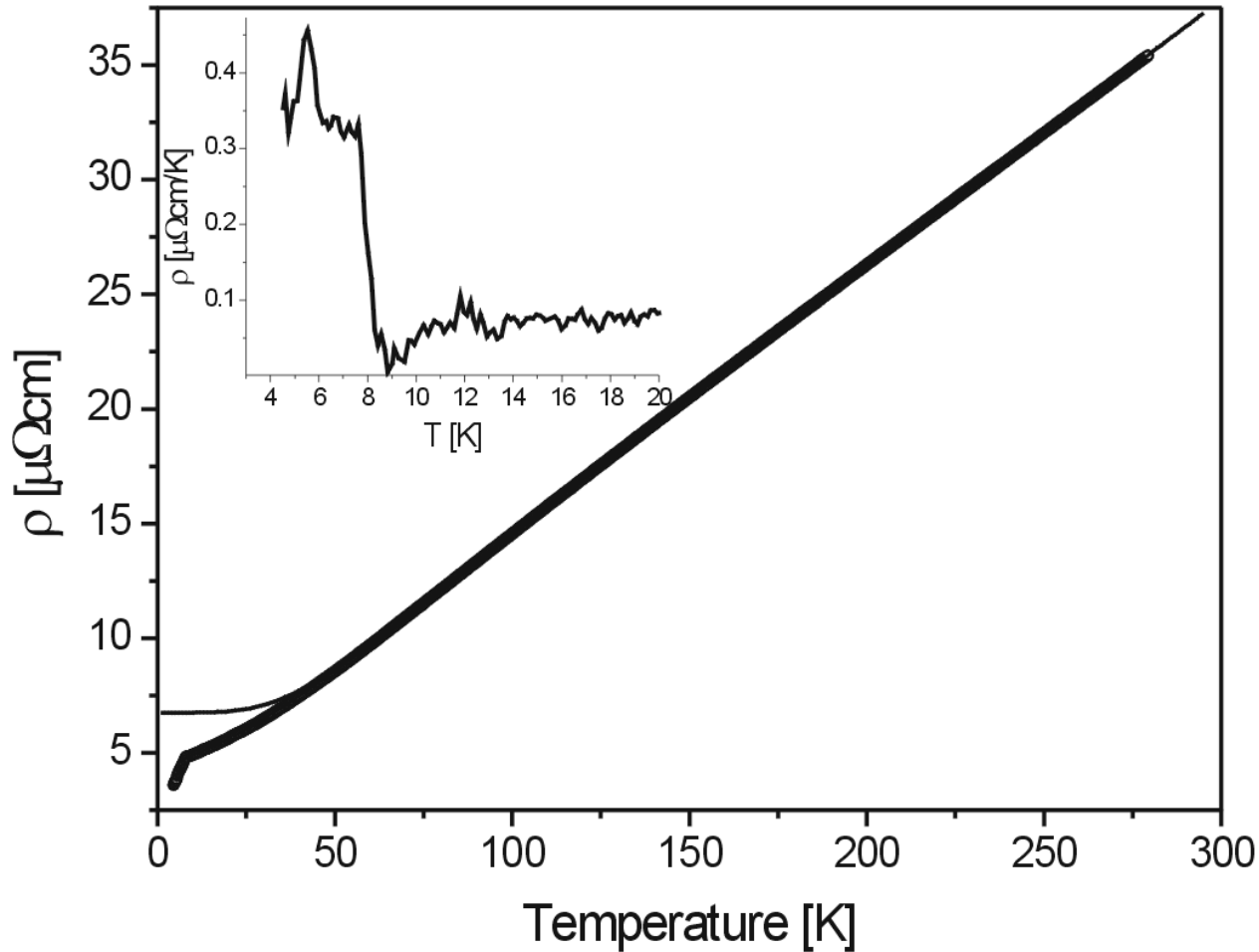
Wybrane wyniki - $\text{Ho}_3\text{Cu}_4\text{Sn}_4$



$$\Theta_D = 230(5) \text{ K}$$

$$\gamma = 15(2) \text{ mJ/mol K}^2$$

$$C_{\text{ph+el}} = \frac{9nR}{1 - \alpha_D T} \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx + \gamma T$$

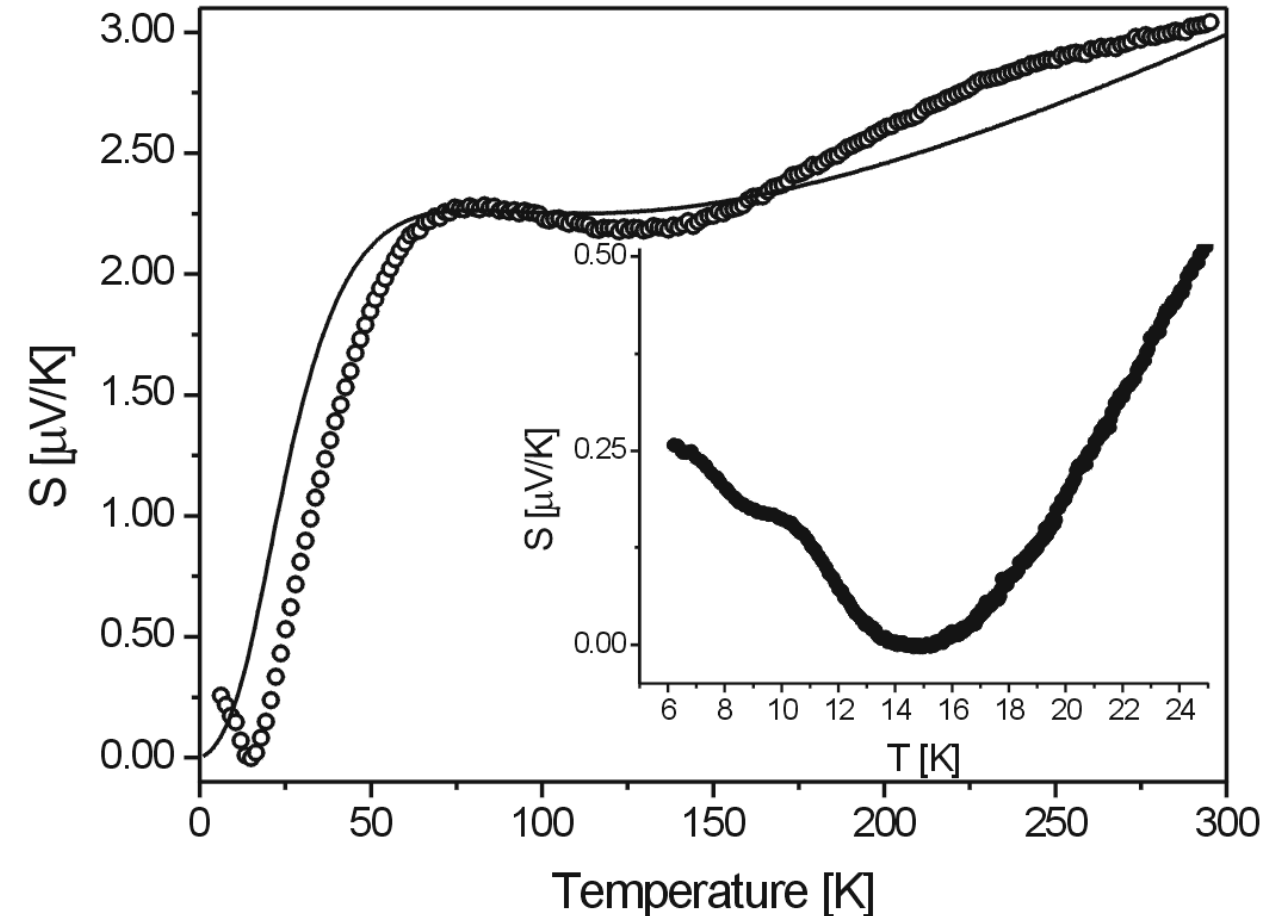


$$\rho_0 + \rho_0^\infty = 6.7(2) \mu\Omega \text{ cm}$$

$$R = 0.104 (5) \mu\Omega \text{ cm/K}$$

$$\Theta_D = 234(4) \text{ K}$$

$$\rho(T) = (\rho_0 + \rho_0^\infty) + 4RT \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^4 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})}$$

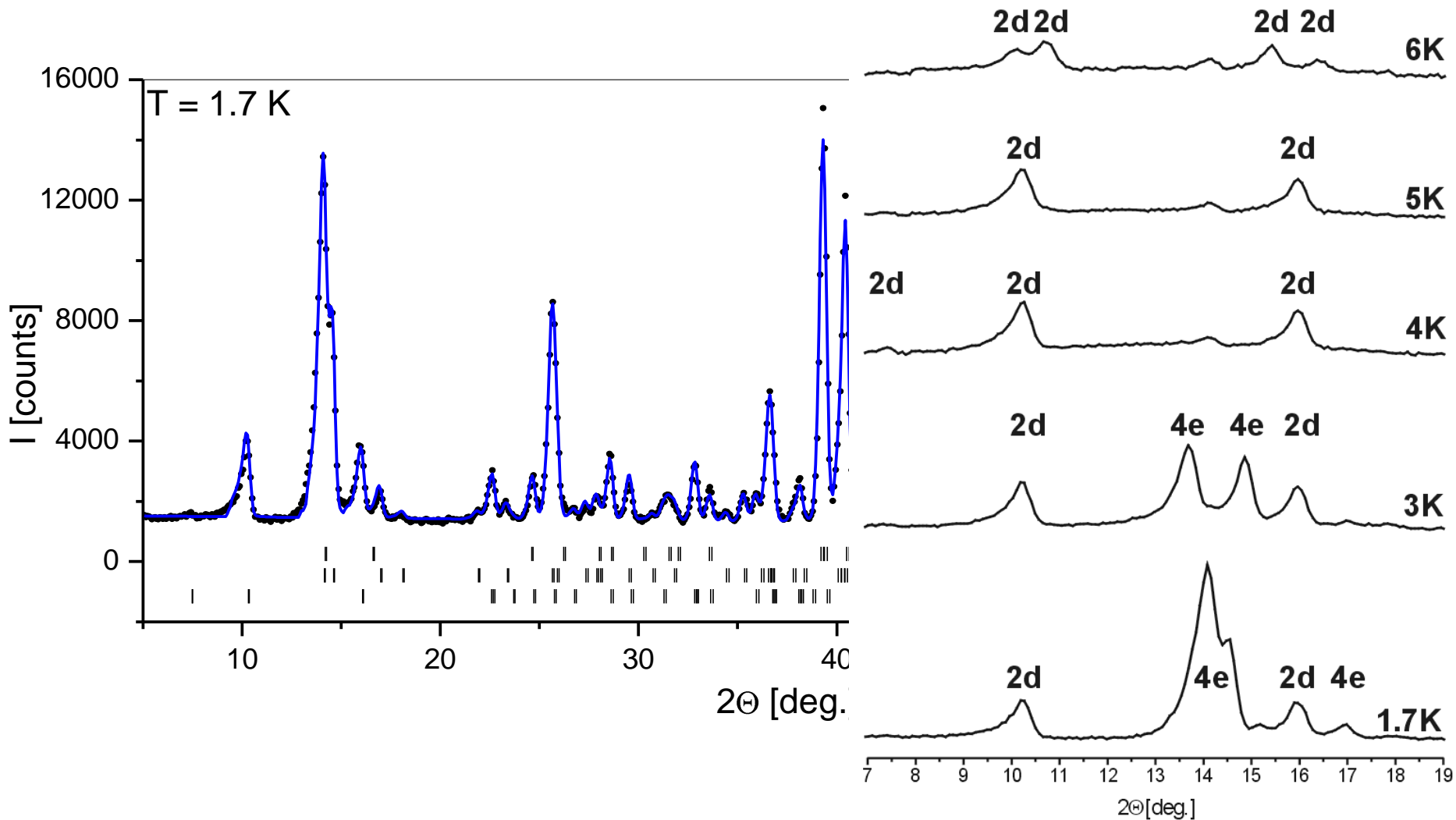


$$\Theta_D = 195(9) \text{ K}$$

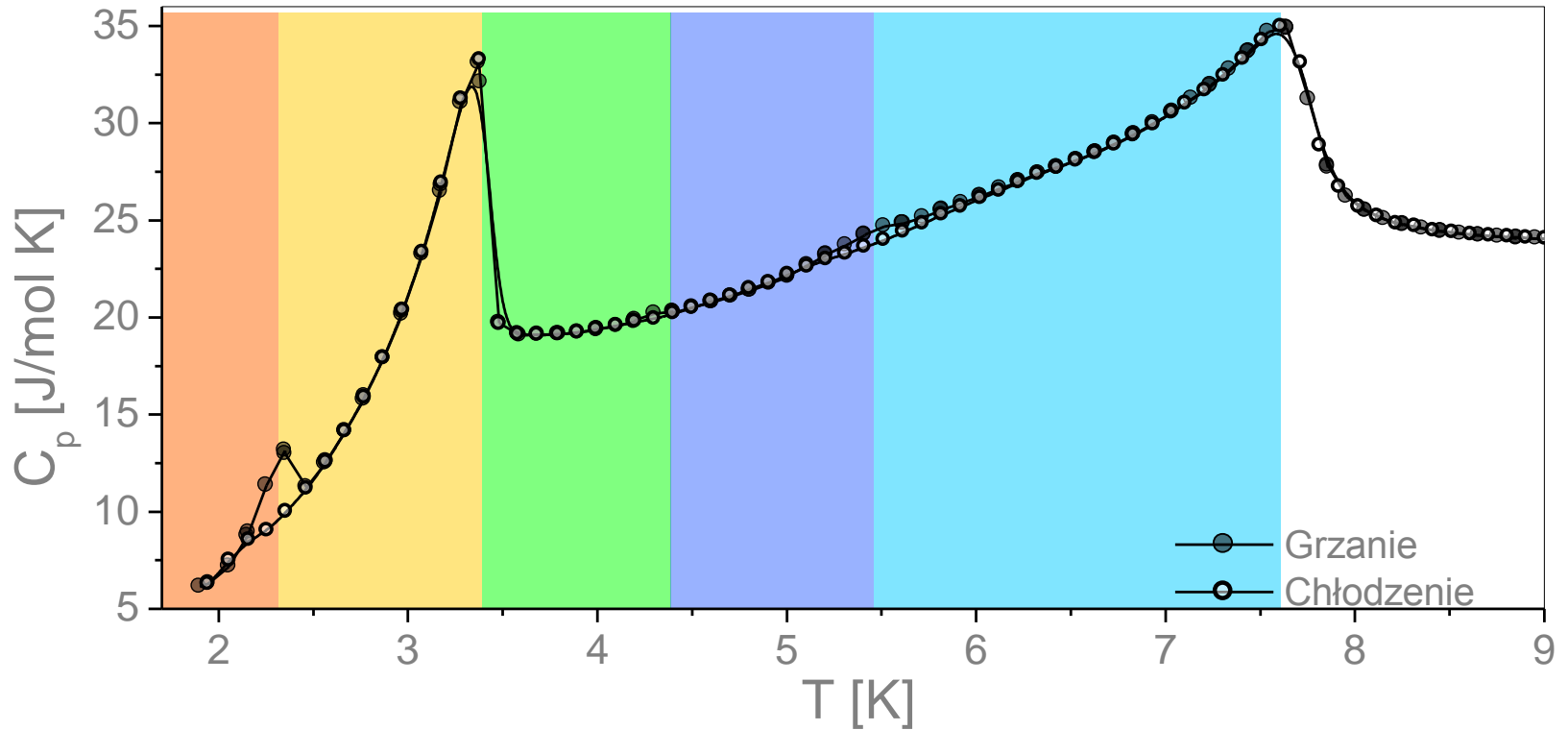
linia ciągła - model Durczewskiego-Ausloosa

K. Durczewski, M. Ausloos, Phys. Rev. B 49 (1994) 13215

Wybrane wyniki – $\text{Ho}_3\text{Cu}_4\text{Sn}_4$



Wybrane wyniki - $\text{Ho}_3\text{Cu}_4\text{Sn}_4$



T [K]	μ_{2d} [μ_B] μ_{4e} [μ_B]	$2d: \theta$ [$^\circ$] & φ [$^\circ$] $4e: \theta$ [$^\circ$] & φ [$^\circ$]	k_{2d} k_{4e}
1.7	8.3(1)	90 & 90	0;0.5;0
	9.9(1)	90 & 0	0.3712(7);0.5;0.5
3	8.6(1)	90 & 90	0;0.5;0
	8.0(1)	90 & 0	0.5;0.5;0.4694(1)

T [K]	μ_{2d} [μ_B]	$2d: \theta$ [$^\circ$] & φ [$^\circ$]	k_{2d}
4	8.6(1)	80(1) & 90	0;0.5;0
5	8.5(1)	90 & 90	0;0.5;0
6	9.1(1)	90 & 77(2)	0.0695(9);0.4821(8);0
7	9.0(1)	90 & 76(2)	0.067(1);0.480(1);0

- Frustracja topologiczna oddziaływań wymiennych umożliwia tworzenie się modulowanych struktur magnetycznych, zarówno dla modeli z oddziaływaniem krótko, jak i dalekozasięgowym.
- W układach sfrustrowanych oddziaływania pomiędzy dalszymi sąsiadami oraz/lub pole krystaliczne mogą mieć decydujący wpływ na stabilizowanie struktur magnetycznych. Możliwość wystąpienia stanów szklistych.
- Brak sprzężenia nierównoważnych podsięci magnetycznych ziem rzadkich może być efektem wynikającym z wpływu pola krystalicznego (przy założeniu stosowalności modelu RKKY).
- Dla związków z singletowym stanem podstawowym CEF (np. Pr) niemagnetyczność może być wynikiem hybrydyzacji f-d.

- Dla związków gdzie stany $4f$ są bliskie energii Fermiego za właściwości magnetyczne odpowiada sprzężenie typu Kondo (hybrydyzacja $f-c$) lub hybrydyzacja $f-d$. O ile hybrydyzacja $f-c$ jest łatwa do osłabienia (wodorowanie, podstawniki), to hybrydyzacja $f-d$ skutecznie może blokować możliwość uporządkowania magnetycznego.
- Sprzężenie własności magnetycznych z pewnymi aspektami struktury krystalicznej i elektronowej są często nieoczywiste. Co więcej nie mogą być rozpatrywane osobno.
- Należy podkreślić wagę komplementarności badań oraz korelowanie ich wyników z obliczeniami teoretycznymi.

IF UJ - Kraków: Prof. A. Szytuła, Prof. K. Tomala, dr S. Baran, dr B. Penc

WFiIS AGH - Kraków: dr J. Żukrowski, doc. J. Przewoźnik, dr J. Czub

IFJ PAN - Kraków: doc. M. Bałanda

INTiBS - Wrocław: Prof. D Kaczorowski, dr K. Nenkov

IF PAN - Warszawa: doc. A. Szewczyk, dr M. Gutowska

HMI - Berlin: dr N. Stuesser, dr O. Prokhnenko, dr J.H. Velasco, dr A . Arurlaj

ILL - Grenoble: dr M. Guillot

TATA IFR - Bombaj: Prof. E.V. Sampathkumaran