

磁场中的重电子金属*

陈 春 李正中 许 望

南京大学物理系, 南京 210008

1991年6月4日收到

本文应用 *slave-boson* 技巧, 在平均场近似下, 计算外加磁场作用下重电子金属的比热系数和磁化强度. 结果表明, 外加磁场对系统的重费密子特性具有压制作用. 此外, 还对重电子金属中反常磁致伸缩的实验结果给出理论解释.

PACC: 7128; 7520H; 7530M; 7580

一、引 言

重电子金属是一类稀土或锕系元素的金属间化合物, 通常含有未填满的 4f 或 5f 壳层电子, 被认为是一种周期性 Kondo 系统、即 Kondo 晶格. 其非磁、非超导的正常基态具有很大有效质量 (m^*/m 为 10^2 — 10^3) 的重费密液体的特征, 反映在 Fermi 面附近存在一个很窄的重电子能带结构, 而这种重电子能带的形成是由于局域 f 电子和导带 c 电子之间的相干共振散射的结果.

为了更多地获取重电子金属基态的信息, 近年来对这类材料在磁场中的性质的探讨成为研究的热点. 迄今为止, 对重电子材料特别是 Ce 化合物(如 CeAl_3 , CeCu_6 , 非超导 CeCu_2Si_2) 在磁场中的性质已有初步了解. 实验上, 人们发现磁场对系统的低温重费密子特性具有很强的压制作用, 表现为系统低温线性比热系数随磁场的增强而减小^[1-5]. 同时, 出现磁化强度随磁场反常变化的规律^[4,6,7]. 此外, 重电子金属的磁致伸缩实验表明, 系统的磁致伸缩比普通金属大 10^2 — 10^3 倍^[8]. 这些结果对于更好地理解重电子金属的基态性质是很有意义的.

对重电子金属的磁场反常特性的理论探讨一直是一个迫切而又棘手的问题. Wohlfarth 等人曾经建立一个理论模型, 并成功地解释了重电子金属若干磁场实验结果^[8,9], 但他们的模型是一种唯象的统计模型, 而且是建立在单格点近似框架内的. Spalek 和 Gopalan 用 Gutzwiller 方法研究了近局域强关联电子的磁场性质^[10], 然而在他们的理论框架内讨论输运性质及有限温度的影响将是困难的.

尽管重电子金属基态不同于金属中单个磁杂质的 Kondo 基态, 然而由单杂质 Anderson 模型推广而得的 Anderson 晶格哈密顿量仍被认为是描述这类材料基态性质的一个较好的模型. 由于在重电子金属中 f 电子间存在很强的关联, 因此不能用通常的微扰

* 国家自然科学基金资助的课题.

方法来处理这类问题。近年来, Barnes^[11] 和 Coleman^[12] 等人引入一种处理强关联系统的方法即 slave-boson 技巧。通过 slave-boson 平均场近似, 并进而引入 Gauss 涨落, 人们成功地解释了低温下重电子金属的各种重费密液体特性^[13-15]。本文试图在 slave-boson 理论的基础上, 讨论重费密子系统在磁场中的行为。首先, 从双导带周期 Anderson 模型出发, 通过 slave-boson 平均场近似, 对磁场中的重电子金属性质进行探讨。然后对系统在磁场中的各种反常特性作解释。

二、磁场中的双导带 Anderson 晶格模型

理论上, 重电子金属通常可用 f 电子关联 $U = \infty$ 的周期 Anderson 模型来描述。根据 Coleman^[12] 方法, 在各格点上引入 slave-boson 场 $b_i^\dagger(b_i)$, 用以表示 f-c 有效混合作用, 这一强关联的哈密顿量可以写成

$$\hat{H} = \sum_{i=1,2} \sum_{k\sigma} \epsilon_{ik\sigma} c_{ik\sigma}^\dagger c_{ik\sigma} + \sum_{l\sigma} E_{l\sigma} f_{l\sigma}^\dagger f_{l\sigma} + V \sum_{i=1,2} \sum_{l\sigma} (c_{il\sigma}^\dagger f_{l\sigma} b_i^\dagger + \text{H.c.}). \quad (1)$$

此外, 在各格点上需满足约束条件

$$\sum_{\sigma} f_{l\sigma}^\dagger f_{l\sigma} + b_i^\dagger b_i = 1. \quad (2)$$

这里假定有两支导带, $\epsilon_{ik\sigma} = \epsilon_{k\sigma} \pm \epsilon_0$, ($i = 1, 2$), 双导带的引入能保证系统在半满导带的情况下具有金属性^[16,17]。 $\sigma = \pm 1$ 为电子自旋指标, $c_{ik\sigma}$ 为 i 导带电子的 Bloch 表象算符, 而 $f_{l\sigma}$ 则代表 f 电子的 Wannier 表象算符。为方便起见, 假定未微扰的导带电子态密度为

$$\rho(\omega) = \frac{1}{N} \sum_k \delta(\omega - \omega(k)) = \begin{cases} 1/2D & |\omega| \leq D; \\ 0 & |\omega| > D. \end{cases} \quad (3)$$

考虑到 z 轴方向的外加磁场 B 的作用, 导带电子和 f 电子能量为

$$\epsilon_{ik\sigma} = \epsilon_{ik} + \sigma g_c \mu_B B, \quad (4)$$

$$E_{l\sigma} = E_l + \sigma g_f \mu_B B. \quad (5)$$

为简单起见, 假定 $g_f = g_c = g$, 这样(4)和(5)式可以写成

$$\epsilon_{ik\sigma} = \epsilon_{ik} + \sigma H, \quad (6)$$

$$E_{l\sigma} = E_l + \sigma H. \quad (7)$$

这里定义约化磁场为

$$H \equiv g \mu_B B. \quad (8)$$

在平均场近似下, 算符 $b_i, b_i^\dagger$ 可以用 c 数 r 代替, 并引入拉氏因子 λ 以满足约束条件(2)式, 这样磁场中的 slave-boson 平均场有效哈密顿量可以写成

$$\hat{H} = \sum_{i\sigma} \epsilon_{ik\sigma} c_{ik\sigma}^\dagger c_{ik\sigma} + \sum_{l\sigma} \tilde{E}_{l\sigma} f_{l\sigma}^\dagger f_{l\sigma} + rV \sum_{i\sigma} (c_{il\sigma}^\dagger f_{l\sigma} + \text{H.c.}) + \lambda(r^2 - 1), \quad (9)$$

其中

$$\tilde{E}_{l\sigma} = E_{l\sigma} + \lambda, \quad (10)$$

而 r, λ 可由自由能极小条件决定,

$$\sum_{\sigma} \langle f_{i\sigma}^{\dagger} f_{i\sigma} \rangle + r^2 = 1, \quad (11)$$

$$2\lambda r + V \sum_{i, l, \sigma} \langle c_{il\sigma}^{\dagger} f_{l\sigma} + \text{H.c.} \rangle = 0 \quad (12)$$

(9)式中的有效哈密顿量所对应的系统电子格林函数为

$$\begin{aligned} G_{11}^{\sigma}(\omega, k) &= [(\omega - \tilde{E}_{f\sigma})(\omega - \epsilon_{2k\sigma}) - (rV)^2] / A_{\sigma}, \\ G_{22}^{\sigma}(\omega, k) &= [(\omega - \tilde{E}_{f\sigma})(\omega - \epsilon_{1k\sigma}) - (rV)^2] / A_{\sigma}, \\ G_{11}^{\sigma}(\omega, k) &= [(\omega - \epsilon_{1k\sigma})(\omega - \epsilon_{2k\sigma})] / A_{\sigma}, \\ G_{11}^{\sigma}(\omega, k) &= G_{11}^{\sigma}(\omega, k) = rV(\omega - \epsilon_{2k\sigma}) / A_{\sigma}, \\ G_{22}^{\sigma}(\omega, k) &= G_{22}^{\sigma}(\omega, k) = rV(\omega - \epsilon_{1k\sigma}) / A_{\sigma}, \end{aligned} \quad (13)$$

其中

$$A_{\sigma} = (\omega - \tilde{E}_{f\sigma})(\omega - \epsilon_{1k\sigma})(\omega - \epsilon_{2k\sigma}) - 2(rV)^2(\omega - \epsilon_k). \quad (14)$$

准粒子激发谱由

$$A_{\sigma} = 0 \quad (15)$$

决定。由(15)式不难看出,当 $B = 0$ 时,出现三条准粒子激发谱, $\omega_i = \omega_i(k)$, $i = 1, 2, 3$ 。其反函数可以写成

$$\begin{aligned} \epsilon_{1k}(\omega) &= \omega - \frac{1}{\omega - \tilde{E}_f} [(rV)^2 + \sqrt{(rV)^4 + \epsilon_0^2(\omega - \tilde{E}_f)^2}] & \omega \in \omega_1; \\ \epsilon_{2k}(\omega) &= \omega - \frac{1}{\omega - \tilde{E}_f} [(rV)^2 + \sqrt{(rV)^4 + \epsilon_0^2(\omega - \tilde{E}_f)^2}] & \omega \in \omega_2; \\ \epsilon_{3k}(\omega) &= \omega - \frac{1}{\omega - \tilde{E}_f} [(rV)^2 + \sqrt{(rV)^4 + \epsilon_0^2(\omega - \tilde{E}_f)^2}] & \omega \in \omega_3. \end{aligned} \quad (16)$$

在磁场作用下,塞曼能使每条能带按自旋分裂

$$\omega_{i\sigma} = \omega_i + \sigma H, \quad (17)$$

单个自旋的电子态密度为

$$\begin{aligned} \rho_{f\sigma}(\omega) &= \sum_{i=1,3} \rho_{if\sigma}(\omega), \\ \rho_{c\sigma}(\omega) &= \sum_{i=1,2} \rho_{ic\sigma}(\omega), \end{aligned}$$

而

$$\rho_{if\sigma}(\omega) = \frac{(rV)^2}{2D(\omega - \tilde{E}_{f\sigma})^2} \left[1 \pm \frac{(rV)^2}{\sqrt{(rV)^4 + \epsilon_0^2(\omega - \tilde{E}_{f\sigma})^2}} \right] \quad \omega \in \omega_{i\sigma}, \quad (18)$$

$$\rho_{ic\sigma}(\omega) = 1/2D \quad \omega \in \omega_{i\sigma}. \quad (19)$$

(18)式中 $i = 1, 2$ 时取“+”号, 而 $i = 3$ 时取“-”号。在本模型中,假定每个格点提供一个 f 电子和两个 c 电子。因而,系统的化学势由方程

$$n_c + n_f = 3 \quad (20)$$

决定。

对方程(11),(12)和(20)自洽求解可以得到重整化的 f 电子能级 $\tilde{E}_f$, 化学势 μ 和平均场参数 r 在一定温度下随磁场的变化情况. 数值计算中, 取 $e_0 = 0.9D$, $V^2/D^2 = 0.2$, $E_f = 2.2D$, 并取 $D = 5000K$. 图 1 和图 2 是零温下对 r^2 和 $\tilde{E}_f - \mu$ 随磁场变化的数值计算结果. 由图中可以看出 $T = 0K$ 时, r^2 随磁场的增大而减小, 而 $\tilde{E}_f - \mu$ 随磁场增大而增大. 在弱磁场下, 它们的变化均正比于 B^2 , 这与 Goltsov 和 Belitsky^[18] 的研究相符.

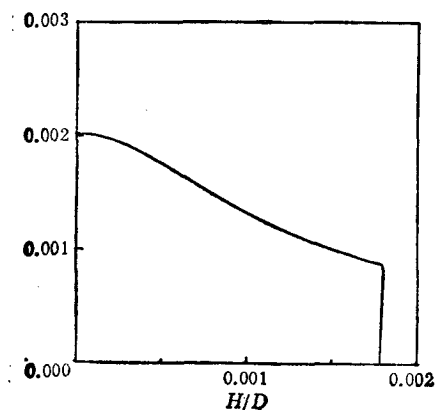


图 1 平均场参数 r^2 随约化磁场 H 的变化曲线

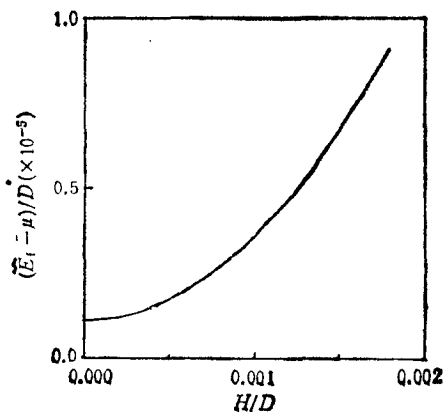


图 2 $\tilde{E}_f - \mu$ 随约化磁场 H 的变化曲线

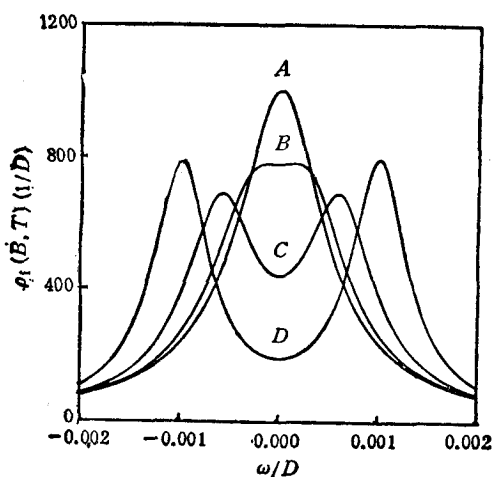


图 3 不同约化磁场 H 下的 f 电子态密度曲线 曲线 A 为 $H/D = 0.0$; 曲线 B 为 $H/D = 0.0003$; 曲线 C 为 $H/D = 0.0006$; 曲线 D 为 $H/D = 0.0010$

图 3 是由方程(18)决定的零温下磁场中费密面附近 f 电子的态密度示意图. 图 3 中取费密面为能量零点. 可以看出, 没有外磁场时, f 电子态密度在费密面附近为单峰结构, 峰值为 $e_0^2/2(rV)^2$. 加外磁场后, 一方面 r^2 随磁场增大而减小, 使单个自旋 f 电子态密度的峰值变大, 单峰有效密度变小; 另一方面, 外加磁场使不同自旋 f 电子态密度峰错开, 化学势从态密度峰的顶点偏离到一侧, 最后的效果是磁场使得费密面上的 f 电子总态

密度值下降。

三、低温热力学性质

1. 低温线性比热系数 $\gamma(B, T)$

在外加磁场作用下重电子金属低温线性比热系数可以写成

$$\gamma(B, T) = \frac{1}{2} k_B^2 \rho^3 \int_{-\infty}^{\infty} \omega^2 [\rho_f(B, \omega) + \rho_c(B, \omega)] \operatorname{sech}^2 \left[\frac{\beta(\omega - \mu)}{2} \right] d\omega. \quad (21)$$

由于费密面附近 $\rho_f(B, \omega) \gg \rho_c(B, \omega)$, 可以主要考虑 f 电子的贡献。令 $\bar{\omega} = \beta(\omega - \mu)$, 这里 $\beta = 1/k_B T$, 则(21)式可以重新写成

$$\gamma(B, T) = \frac{1}{2} k_B^2 \int_{-\infty}^{\infty} \bar{\omega}^2 \rho_f(B, \bar{\omega} k T + \mu) \operatorname{sech}^2(\bar{\omega}/2) d\bar{\omega}. \quad (22)$$

从(22)式可以看出, $\gamma(B, T)-T$ 的关系完全由 f 电子态密度形状决定。 $\rho_f(B, \mu)$ 随外加磁场的增加而减小, 决定了 $\gamma(B, T=0)$ 值也将随外加磁场的增加而下降, 显示出外加磁场压制重费密子效应的特征。而强磁场的劈裂作用使 f 电子态密度在费密面两侧出现极大值, 决定了强磁场下 $\gamma(B, T)$ 在有限温度处将出现极大值。数值计算结果如图 4 所示。图 4 表明, 在各个外加磁场下, $\gamma(B, T)$ 与 $\gamma(B=0, T)$ 存在一个交点, 交点温度为 T_{cr} 。当 $T < T_{cr}$ 时, $\gamma(B, T) < \gamma(B=0, T)$, 外加磁场使线性比热系数减小, $T > T_{cr}$ 时, $\gamma(B, T) > \gamma(B=0, T)$, 外加磁场使线性比热系数增大。 T_{cr} 值随外加磁场的增加而向有限温度作缓慢移动。上述现象均已在实验上得到证实^[1-3, 7]。

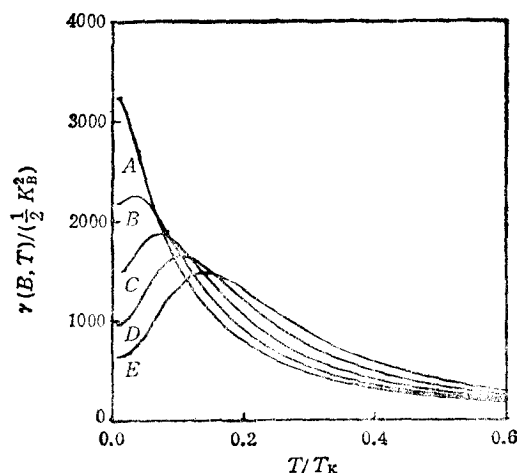


图 4 不同约化磁场 H 下的线性比热系数曲线
曲线 A 为 $H/D = 0$; 曲线 B 为 $H/D = 0.0004$; 曲线 C 为 $H/D = 0.0006$; 曲线 D 为 $H/D = 0.0008$;
曲线 E 为 $H/D = 0.0010$

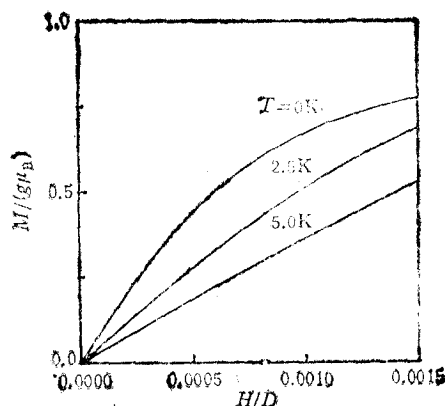


图 5 不同温度下的磁化曲线

2. 低温磁化强度

在外加磁场作用下, 系统的磁化强度为

$$M = g\mu_B(n_i - n_r). \quad (23)$$

磁化方向与外加磁场方向相同。基于与上节同样的理由, 这里主要考虑 f 电子的贡献。于是方程(23)写成

$$M = g\mu_B \int_{-\infty}^{\infty} d\omega f(\omega - \mu) [\rho_{f\uparrow}(B, T, \omega) - \rho_{f\downarrow}(B, T, \omega)], \quad (24)$$

其中 $\rho_{f\sigma}(B, T, \omega)$ 由方程(11), (12), (18), (20)决定。

在一定外加磁场作用下, 有限温度的热涨落效应将使磁化强度呈减小趋势, 同时, 温度提高时重电子能带变窄, 又使磁化强度有增大的趋势。但是当外加磁场造成的塞曼能只有几 K 量级时, 前者的贡献将是主要的, 即磁化强度将随温度的提高而减小。

图 5 是方程(24)的数值计算结果。本文计算了 $T = 0, 2.5$ 和 5K 时 $M(B, T)$ 随约化磁场 H 变化的曲线。图 5 表示出外加磁场对重电子金属磁化率的压制效应, 表现为 $M-H$ 曲线的斜率随 H 的增大而减小。这一结果与 Stewart 等人^[2]以及 Onuki 等人^[6]的实验结果定性一致。

3. 低温反常磁致伸缩

在 slave-boson 场理论中, $b_i^\dagger$ 表示 i 格点产生一个 f 轨道空占据, b_i 表示 i 格点, 湮没一个 f 轨道空占据。因此, $\langle b_i^\dagger b_i \rangle$ 应表示 i 格点上 f 轨道空占据的概率。在平均场近似下, $\langle b_i^\dagger b_i \rangle$ 以 r^2 代替, 这时任一格点为 f^0 占据的概率为 r^2 , 为 f^1 占据的概率为 $1 - r^2$ 。

Zieglowski 等人指出^[8], 具有 f^0 和 f^1 (或 f^3 和 f^4 或 f^6 和 f^7) 组态的稀土离子具有不同的离子半径。如果以 V_0 表示含 f^0 离子的元胞体积, 而 V_1 表示含 f^1 离子的元胞体积, 则对于 CeAl_3 , CeCu_6 , CeCu_2Si_2 , $(V_1 - V_0)/V_0$ 均在 0.05 左右。这样, 平均每个晶胞的体积为 $V = r^2 V_0 + (1 - r^2) V_1$ 。外加磁场改变整个系统中具有 f^0 和 f^1 离子的晶胞比例, 从而导致较大的体积变化,

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta V}{V}\right)_B &= \frac{V_1 - V_0}{V} (\Delta r^2)_B \\ &\approx \frac{V_1 - V_0}{V_0} (\Delta r^2)_B. \end{aligned} \quad (25)$$

取 $(V_1 - V_0)/V_0$ 为 0.05 后, 图 6 示出 $T = 0, 2.5$ 和 5K 时磁致伸缩与磁场的关系。低场下, $\Delta V/V$ 与磁场强度近似为一抛物线型关系, 而随着磁场的加强, 体积变化的速度逐渐减慢。由于在有限温度下, 热涨落效应削弱磁场的作用, 因而在相同外加磁场作用下, 温度越高, 磁致伸缩越小。本文计算结果与

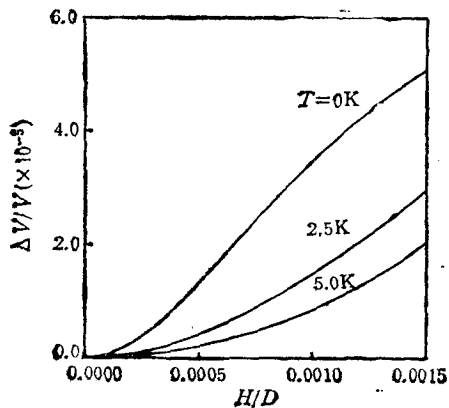


图 6 不同温度下的磁致伸缩曲线

Zieglowski 等人^[8]的低场实验结果很好地符合。

四、结论与讨论

本文运用双导带周期性 Anderson 模型, 讨论了重电子金属在磁场中的特性, 计算了磁场中的各种热力学性质. 理论表明: 由于磁场对不同自旋取向的重电子能带的劈裂作用, 使费密面上电子态密度随磁场的增大而减小, 从而出现外加磁场对重电子金属中重费密子效应的压制现象, 表现为系统的零温线性比热系数随磁场的增大而减小, 同时低温磁化率也由于外加磁场的作用而降低. 又由于磁场能改变重电子金属中处于不同组态 (如 f^0, f^1) 的稀土离子的比例, 从而能产生较大的磁致伸缩. 本文对磁致伸缩的讨论可以推广到含稀土元素 Yb 的重费密子材料, 在这类材料中, Yb 离子具有 f^3 和 f^4 两种组态. 利用电子-空穴对称性, 这两种组态可分别与 f^1 和 f^0 相对应, 但由于 f^3 离子具有的体积比 f^4 离子小, 因此, 应得到负的磁致伸缩^[8].

应当指出, 在 slave-boson 平均场理论中, 存在一个临界磁场 $B_c(T)$, 系统在临界磁场附近出现一个非物理的相变, 表现为 r^2 由有限值突然降为零, 如图 1 所示. 这使得理论只能适用于 $B < B_c(T)$ 的情况. 尽管如此, 本文的结果与重费密子系统磁场行为的实验^[1-8]符合良好. 进一步的工作是探讨 Gauss 涨落对各种磁场效应的影响, 这方面的工作正在进行之中.

- [1] G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.*, **56**(1984), 755.
- [2] G. R. Stewart, B. Andraka, C. Quitmann, B. Treadway, Y. Shapira and E. J. McNiff, Jr., *Phys. Rev.*, **B37**(1988), 3344.
- [3] B. Andraka, G. Fraunberger, J. S. Kim, C. Quitmann and G. R. Stewart, *Phys. Rev.*, **B39**(1989), 6420.
- [4] T. Fujita, K. Satoh, Y. Onuki and T. Komatsubara, *J. Magn. Magn. Mat.*, **47-48**(1985), 66.
- [5] K. Satoh, T. Fujita, Y. Maeno, Y. Onuki and T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jap.*, **58**(1989), 1012.
- [6] Y. Onuki, Y. Shimizu, M. Nishihara, Y. Machii and T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jap.*, **54**(1985), 1964.
- [7] F. R. de Boer *et al.*, *J. Magn. Magn. Mat.*, **47-48**(1985), 60.
- [8] J. Ziegłowski, H. U. Hafner and D. Wohlleben, *Phys. Rev. Lett.*, **56**(1986), 193.
- [9] D. Wohlleben, in 'Theoretical and Experimental Aspects of Valence Fluctuations', edited by L. C. Gupta and S. K. Malik, Plenum, New York, (1987), p. 707.
- [10] J. Spalek and P. Gopalan, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 2823.
- [11] S. E. Barnes, *J. Phys. F*, **6**(1976), 1375.
- [12] P. Coleman, *Phys. Rev.*, **B29**(1984), 3035.
- [13] A. J. Mills and P. A. Lee, *Phys. Rev.*, **B35**(1987), 3394.
- [14] Z. Tesařovic and O. T. Valls, *Phys. Rev.*, **B34**(1986), 1918.
- [15] D. M. Newns and N. Read, *Adv. Phys.*, **36**(1987), 799.
- [16] F. J. Ohkawa, *J. Phys. Soc. Jap.*, **53**(1984), 598.
- [17] 许望、李正中, *物理学报*, **37**(1988), 598.
- [18] A. V. Goltsev and V. I. Belitsky, *Solid State Commun.*, to be published.

HEAVY ELECTRON METALS IN A NONZERO MAGNETIC FIELD

CHEN CHUN LI ZHENG-ZHONG XU WANG

Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210008

(Received 4 June 1991)

ABSTRACT

The specific heat coefficient and magnetization of the heavy electron metals in a nonzero magnetic field are calculated by using the slave boson mean field theory. The results indicate that the heavy fermion feature of the system is depressed in the magnetic field. A theoretical explanation for anomalous volume magnetostriction of the heavy electron metals is also given in this paper.

PACC: 7128; 7520H; 7530M; 7580