



UvA-DARE (Digital Academic Repository)

Magnetic and Thermodynamic properties of RNi5 compounds

Kayzel, F.E.

Publication date
1997

[Link to publication](#)

Citation for published version (APA):

Kayzel, F. E. (1997). *Magnetic and Thermodynamic properties of RNi5 compounds*. [Thesis, fully internal, Universiteit van Amsterdam]. UvA.

General rights

It is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), other than for strictly personal, individual use, unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

Disclaimer/Complaints regulations

If you believe that digital publication of certain material infringes any of your rights or (privacy) interests, please let the Library know, stating your reasons. In case of a legitimate complaint, the Library will make the material inaccessible and/or remove it from the website. Please Ask the Library: <https://uba.uva.nl/en/contact>, or a letter to: Library of the University of Amsterdam, Secretariat, Singel 425, 1012 WP Amsterdam, The Netherlands. You will be contacted as soon as possible.

Samenvatting

In dit proefschrift worden de resultaten beschreven van een experimenteel onderzoek naar de intrinsieke magnetische eigenschappen van de inter-metallische zeldzame-aarden en nikkel verbinding, RNi_5 ($R = Y, La, Pr, Nd, Gd, Tb, Dy, Ho, Er$ en Tm). Bijna all RNi_5 verbinding kunnen gemaakt worden en deze verbinding en zijn dus zeer geschikt om de eigenschappen van zeldzame-aarden te bestuderen. De bijdrage van de nikkel atomen aan het systeem zijn relatief klein en bijna constant in de hele RNi_5 serie. Met deze kleine nikkel invloed kan goed de eigenschappen van de zeldzame aard atomen in een gelijkwaardige omgeving bestudeerd worden. Om het magnetische gedrag te bestuderen zijn magnetisatie metingen uitgevoerd. Met behulp van warmte capaciteit metingen kunnen de thermodynamische eigenschappen bepaald worden.

De verbinding wordt gemaakt door het samensmelten van de zuivere uitgangsmaterialen, in een verhouding van één zeldzame aard atoom (R) en vijf Ni atomen. Gedurende het afkoelen vormt zich een hexagonale structuur ($CaCu_5$). Al deze verbindingen smelten congruent en daarom is het eenvoudig met deze materialen grote éénkristallen te groeien. De kristallen zijn gemaakt met de Czochralski methode in een drie-boog kristal groei apparatuur in de FOM-ALMOS faciliteit van het Van der Waals-Zeeman Instituut. Grote éénkristallen van RNi_5 zijn nodig voor bijna alle door ons uitgevoerde experimenten. Bolletjes van 3 mm diameter waren nodig voor de magnetisatie metingen met preparaten georiënteerd langs verschillende kristal richtingen. De μ SR experimenten vragen om grote éénkristallen.

De meeste van de eigenschappen van de bestudeerde materialen konden goed beschreven worden met het door ons gebruikte model. Dit model maakt gebruik van een quantum mechanische beschrijving van de zeldzame aard atomen en een meer fenomenologische benadering om de interactie tussen de magnetische momenten te beschrijven. De laatste benadering in dit model beschrijft de exchange interactie tussen de nikkel atomen en tussen de exchange interactie tussen de nikkel atomen en de zeldzame aard atomen in de moleculair veld benadering. Daarin splitsen we het systeem in twee aparte roosters; een alleen met de nikkel atomen en het ander met de zeldzame aard atomen. De exchange interactie binnen het zeldzame aard sub-rooster en de exchange interactie tussen het zeldzame aard sub-rooster en het nikkel sub-rooster zijn parameters die in experimenten bepaald worden. Bij het aanleggen van een magnetisch veld, zullen de tegengestelde gerichte magnetische nikkel momenten afnemen. In hoge-magnetische velden kan deze susceptibiliteit waargenomen worden.

De bijdrage van de zeldzame aard atomen kan gesplitst worden in verschillende bijdragen. Deze vormen samen de totale hamiltoniaan. De, voor ons, belangrijkste bijdrage tot de totale hamiltoniaan is de interactie tussen het atoom met de in zijn omgeving bevindende atomen, de kristal-veld hamiltoniaan. De één-ion zeldzame aard hamiltoniaan wordt expliciet afgeleid. Door deze kristal-veld hamiltoniaan op een juiste manier met de moleculair veld benadering te combineren, krijgen we een wiskundige beschrijving van het hele systeem.

In de hexagonale symmetrie blijven slechts vier kristal veld parameters over, B_2^0 , B_4^0 , B_6^0 and B_6^6 , deze zijn nodig om de kristal veld bijdrage te bepalen. Samen met de drie parameters gebruikt in voor de moleculair veld benadering, n_{RR} , n_{RNi} and χ_{Ni} , krijgen we zeven variabelen.

De interessante eigenschappen van ons materiaal worden eminent bij lage temperaturen. De RNi_5 verbindingen ordenen magnetisch bij lage temperaturen (behalve $PrNi_5$), met Curie temperaturen tussen 4 K en 33 K. Beneden deze temperaturen zullen de magnetische momenten in het materiaal zich in een bepaalde richtingen ordenen. Om deze verschijnselen

te bestuderen hebben we bij 1.5 K de magnetisatie langs de drie kristal-richtingen gemeten. De magnetisatie is gemeten in de Hoge-velden Installatie van de Universiteit van Amsterdam in magneet velden tot 38 T.

Met soortelijke warmte metingen kunnen goed de overgangs temperaturen onderscheiden worden. De soortelijke warmte van alle RNi_5 verbindingen van 1.5 K tot 200 K zijn metingen. Van een $ErNi_5$ éénkristal is de soortelijke warmte gemeten, met een magneet veld van 5 T langs de [001] richting. Aan verschillende preparaten zijn μ SR metingen uitgevoerd. Dit is een microscopische meet methode. Deeltjes met een korte levensduur, muonen (afkorting μ), worden in het preparaat gebracht. De deeltjes vervallen in een richting die van het lokale magneet veld afhangt. Op deze manier kan het magnetisch gedrag van ons materiaal bij verschillende temperaturen bepaald worden.

Met gebruikmaking van alle experimenten, hebben we naar de beste set parameters gezocht om het gedrag te beschrijven. Het theoretische gedrag van de magnetisatie, soortelijke warmte en susceptibiliteit kon berekend worden en vergeleken met de experimenten. Alhoewel we soms oplossingen konden vinden die één enkel experiment excellent beschreven, is telkens gekozen voor een set parameters die *alle* experimenten tegelijk zo goed mogelijk beschrijven.

Soortelijke warmte metingen waren bepalend voor het nauwkeurige vaststellen van de magnetische overgangstemperaturen van de meeste materialen. We waren in staat de gemeten soortelijke warmte zeer goed te beschrijven met ons theoretisch model. De magnetisatie experimenten gaven ons inzicht in het teken en de grootte van verschillende kristal-veld parameters. Bijvoorbeeld de magnetisatie van $ErNi_5$ verplichte ons, door een meta-magnetische overgang rond de 20 T langs de [120] richting, om de kristal-veld parameters aan te passen. Door vergelijking van onze parameters met die in de literatuur was het duidelijk dat deze parameters beter aan onze metingen voldoen. Doordat niet altijd alle parameters in literatuur gegeven worden is het moeilijk om verschillende parameter sets te vergelijken (vaak worden de exchange interactie parameters niet gepubliceerd).

Ons theoretisch model geeft ons de mogelijkheid om verscheidene experimenten in detail te beschrijven. De belangrijkste bijdrage aan het magnetisch gedrag wordt veroorzaakt door de $4f$ -elektronen van de zeldzame aard atomen. Een kleinere, maar niet te verwaarlozen bijdrage aan het magnetische gedrag wordt veroorzaakt door de $3d$ -elektronen van het nikkel. De nikkel bijdrage wordt hoofdzakelijk geïnduceerd door een aangelegd magnetisch veld en de exchange interactie tussen de nikkel en de zeldzame aarde spins. Kristal veld effecten spelen een belangrijke rol door de invloed van de $4f$ -elektronen op de magnetische eigenschappen in deze verbindingen. De eigenschappen hangen sterk af van het opheffen van de ontarding van de laagste multipletten welke verschillen tussen de verschillende zeldzame aard verbinding. De kristal veld coëfficiënt, A_n^m , heeft eenzelfde teken en is van de zelfde grootte orde in alle verbindingen. De nikkel susceptibiliteit is bijna constant voor de hele serie verbindingen.

Muon Knight shift waarnemingen in $ErNi_5$ konden goed verklaard worden door directe dipool-veld berekeningen. We hebben bepaald dat de $3f$ positie stop-plaats van de muon in $ErNi_5$ is. De muonen metingen zonder magneet veld ontberen nog een goede theoretische beschrijving.