

Nuevo Tratamiento para el Modelo RFK

NELSON PORRAS MONTENEGRO*, I. AVELINE y J.R. IGLESIAS

Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 90.000, RS, Brasil

Recebido em 12 de julho de 1982

Abstract The Coulomb repulsion G between localized and conduction electrons, introduced by the Ramirez-Falicov and Kimball' theory for intermediate valence systems has been treated in a new approximation. A discontinuous transition was found, but no fractional occupation of the localized states, although an hybridization term was included.

Quando en el modelo de Ramírez-Falicov y Kimball^{1,2} la interacción Coulombiana G entre los electrones f y de conducción, se trata en la aproximación de Hartree-Fock se consiguen variaciones discontinuas en el número medio de electrones f , $\langle n_f \rangle$.

Algunos autores^{3,4} tem sugerido que este comportamiento es más un efecto de la aproximación de Hartree-Fock que de la misma repulsión electrónica.

Presentamos aquí un cálculo de la densidad de estados y de la ocupación media del nivel f dentro de un modelo que incluye: a) una banda de conducción de anchura ZW , b) una repulsión Coulombiana intra-atómica U entre los electrones f y c) una hibridización V y una interacción Coulombiana G entre los electrones f y de conducción.

El Hamiltoniano del modelo es

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_{i\sigma} E_0 f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} + \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i,-\sigma} + \sum_{\tilde{k}\sigma} \epsilon_{\tilde{k}} a_{\tilde{k}\sigma}^\dagger a_{\tilde{k}\sigma} + \\
 & N^{-1/2} \sum_{i\tilde{k}\sigma} \left[V e^{i\tilde{k}\cdot R_i} a_{\tilde{k}\sigma}^\dagger f_{i\sigma} + V^* e^{-i\tilde{k}\cdot R_i} f_{i\sigma} a_{\tilde{k}\sigma} \right] \\
 & + G \sum_{\tilde{k}\tilde{k}'\sigma} e^{i(\tilde{k}-\tilde{k}')\cdot R_i} a_{\tilde{k}\sigma}^\dagger a_{\tilde{k}'\sigma} n_{i,-\sigma} \quad (1)
 \end{aligned}$$

** Dirección permanente: Departamento de Física, Universidad del Valle - Cali, Colombia, Apartado Aéreo 2188

donde:

$f_i^+ (a_{k\sigma}^+)$ crea un electrón de spin σ en el sitio i (estadok) de la banda $f(s)_j$

E_f es la energía del nivel atómico f .

ϵ_k es la energía de la banda de conducción.

Usualmente algunos autores no consideran la interacción de intercambio J en el hamiltoniano¹⁻⁴. Nosotros aquí tomamos el límite opuesto, esto es $J = G$ y por tanto no incluimos en el Hamiltoniano el término

$$(G-J) \sum_{i\tilde{k}\tilde{k}'\sigma} e^{i(k-k') \cdot R_i} a_{k\sigma}^+ a_{k'\sigma} n_{i\sigma}$$

Suponemos además que el término en J que incluye el proceso de inversión de spin⁵ no altera las fluctuaciones de carga. Claramente esta aproximación modificará el comportamiento magnético de las soluciones, y se debe tener en cuenta en la discusión de los resultados.

Hemos calculado las ecuaciones de movimiento tanto para las funciones de Green de un electrón como para las funciones de Green de más alto orden que aparecen en estas ecuaciones. Estas últimas se desacoplaron en un esquema análogo al de Hubbard⁶.

Los cálculos completos han sido publicados⁸ y el resultado final es:

$$G_{k\sigma}^s(z) = \frac{1}{2} \left[\epsilon(z) - \epsilon_k \right]^{-1} \quad (2)$$

Y

$$G_k^f(z) = \frac{A}{2(z-E_0)} \left\{ \frac{z - G \langle \eta^f, -\sigma \rangle - \epsilon_k}{\epsilon(z) - \epsilon_k} \right\} \quad (3)$$

con

$$\epsilon(z) = z - \left[G \langle \eta^f, -\sigma \rangle + \frac{V^2 A}{z - E_0} \right] \quad (4)$$

y

$$A = 1 + \frac{U \langle \eta_s^f - \sigma \rangle}{z - E_0 - G \langle \eta_s^s - \sigma \rangle - U} + \frac{G \langle \eta_s^s - \sigma \rangle}{z - E_0 - G - U \langle \eta_s^f - \sigma \rangle} \quad (5)$$

De la ecuación (5) se ve que, en el límite $U \rightarrow \infty$

$$A = 1 - \langle \eta_s^f - \sigma \rangle \quad (6)$$

Las ecuaciones (2) y (3) se integraron autoconsistentemente hasta el nivel de Fermi el cual a su vez es determinado por el número total de electrones. Las densidades de estado para los electrones f y de conducción también han sido calculados.

La densidad de estados usada en los cálculos para la banda de conducción es⁷

$$\delta(E) = \begin{cases} \frac{3}{4W} \left[1 - \frac{E^2}{W^2} \right] & \text{para } |E| < W \\ 0 & \text{para otras energías.} \end{cases}$$

Consideremos dos casos: a) El límite de correlaciones fuertes, esto es el límite $U \rightarrow \infty$ y b) U finito.

Para el primer caso suponemos que para E , bien por debajo de la banda de conducción el sistema es un semiconductor con un electrón en el nivel f y con una banda de conducción vacía. Para $V/W = 0.2$ y G/V desde 0 hasta 10 siempre encontramos transiciones continuas desde el estado inicialmente semiconductor hasta un estado final metálico cuando el valor de E_0 es incrementado. El número de electrones f varía continuamente desde 1 hasta 0.

Para el caso b) suponemos que los dos estados f están bien por debajo de la banda de conducción cuando el sistema es un semiconductor, entonces el número total de electrones es dos. Las ecuaciones (2) y (3) las integramos autoconsistentemente para los valores $U/V = 4$ y $U/V = 15$ manteniendo $V/W = 0.2$.

Para $U/V = 4$ y para todos los valores de G compatibles con

él: $G/V = 0, 1, 2$ y 3 , no encontramos transiciones discontinuas, siendo los resultados análogos con aquellos del caso a).

De otro lado la Figura 1 muestra la ocupación media del nivel f , $\langle \eta_f \rangle$, para $U/V = 15$. La transición es continua para $G/V = 0$ y 5 y abrupta para $G/V = 10$. En todos los casos $\langle \eta_f \rangle$ va de 2 a 1 .

En la Figura 2 (a) hemos dibujado la densidad de estados del sistema antes de la transición $|E_0 = -4.0|$ la cual muestra el carácter típico semiconductor del sistema. En la Figura 2 (b) se puede ver la situación después de la transición ($E_0 = -3,5|$). El sistema es fuertemente magnético y tiene un carácter semimetálico muy próximo a semiconductor.

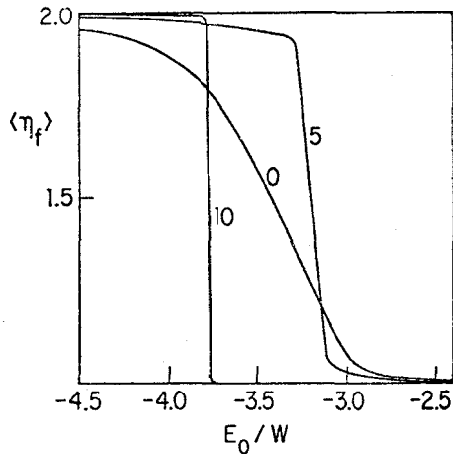


Fig. 1 - Valor medio del número de ocupación del nivel localizado f , $\langle \eta_f \rangle$, en función de E_0/W para $G/V=0,5,10$ y $UW = 3$.

Cuando U es finito encontramos que el momento magnético aumenta cuando U se incrementa tal como debía ser, pero también cuando G crece. Esto puede estar en correspondencia con el hecho que hemos supuesto que la interacción G entre electrones de spin opuesto es mayor que la interacción $(G-J)$ entre electrones de spin paralelo. Sin embargo, si se incluye el término de intercambio en los cálculos se espera que el momento magnético decrezca, aunque de otro lado la separación

entre las bandas de spin opuesto sería menor y entonces probablemente la transición sería continua. Un trabajo en este sentido se está adelantando.

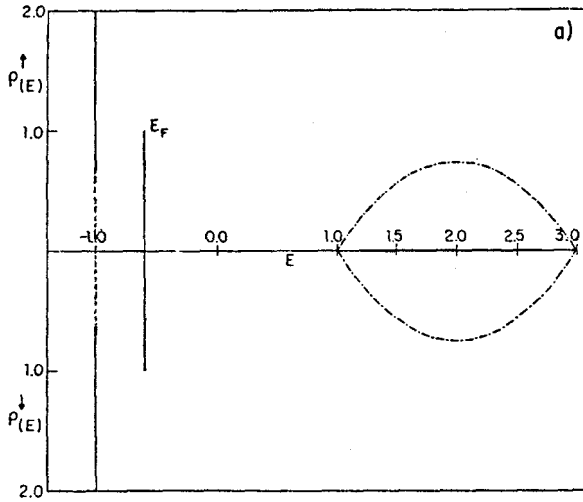


Fig. 2a - Densidad de estados f (línea llena) y S (línea a trazos) con spin para arriba y para abajo en función de la energía, con $G/V = 10$, $U/W = 3$ y $E_0 = -4.0$.

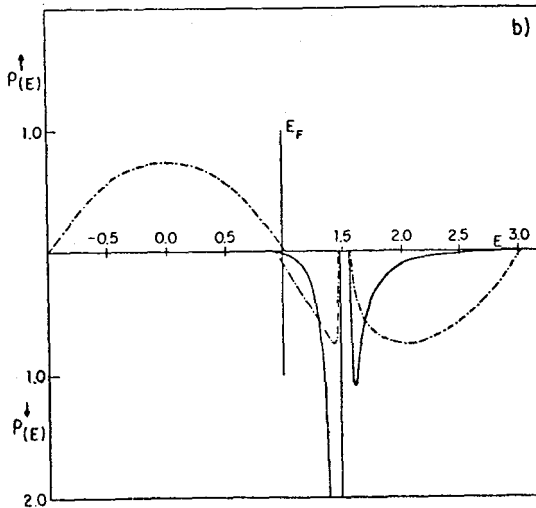


Fig.2b - Densidad de estados f (línea llena) y S (línea a trazos) con spin para arriba y para abajo en función de la energía con $G/V = 10$, $U/W = 3$. y $E_0 = -3.5$.

Cuando se trata de aplicar la teoría al problema de valencia intermediaría parece que el tratamiento en el límite $U \rightarrow \infty$ sería el más apropiado para explicar la transición γ - α del Ce^1 metálico ya que el estado del sistema es magnético antes de la transición. mientras que el tratamiento con U finito podría aplicarse al problema de los monocalcogenetos de Sm.

Sin embargo, del cálculo que hemos adelantado y dentro de los límites de la aproximación usada, concluimos que aunque no se considere el carácter magnético de los estados, el modelo parece inadecuado para explicar el mecanismo de la transición de valencia en el sistema considerado. El cambio de valencia encontrado es continuo o discontinuo. Cuando es discontinuo el estado final es semimetálico con un fuerte momento magnético local. Tampoco encontramos un valor fraccionario de $\langle n_f \rangle$, excepto en la región de transición. Al igual que en la referencia 7 encontramos que un número no entero de portadores se puede obtener cuando la banda de conducción es separada por un gap de energía.

REFERÊNCIAS

1. Ramírez, R.; Falicov, L.M. and Kimball, J.C.; Phys. Rev. B 2, 3383 (1970); and Ramírez, R. and Falicov, L.M. Phys. Rev. B 3, 2425 (1971).
2. Para una revisión véase: Robinson, J.M.; Phys. Reports 51, 1 (1979).
3. Mazzaferro, J. and Ceva; Solid State Comm. 29, 137 (1979); y referencias allí citadas.
4. Sproken, G.; Ph.D. Thesis (no publicada), Grenoble (1980).
5. Iglesias-Sicardi, J.R.; Gómez, A.A., Jullien, R. and Cogblin, B.; J. of Low Temp. Phys. 25, 47 (1976).
6. Hubbard, J.; Proc. Royal Soc. A276, 238 (1963).
7. Iglesias-Sicardi, J.R. and Aveline, I.; Solid State Comm. 36, 19 (1980).
8. Porras Montenegro, N.; Ms.C. Thesis, UFRGS, Porto Alegre (1981).

RESUMO

A repulsão Coulombiana G entre os elétrons localizados e itinerantes, introduzida pela teoria de Ramírez-Falicov e Kimball¹ para sistemas de Valência intermediária é tratada numa nova aproximação. Encontramos transições descontínuas, mas não a ocupação fracionária dos estados localizados, embora um termo de hibridização seja incluído.