

# Концентрационная зависимость плотности состояний в парамагнетиках Паули $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$

А. М. Гуревич<sup>1</sup>, В. М. Дмитриев<sup>1,2</sup>, А. С. Ермоленко<sup>3</sup>, В. Н. Еропкин<sup>1</sup>,  
А. Г. Кучин<sup>3</sup>, Н. Н. Пренцлау<sup>1</sup>, А. В. Терехов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: dmitriev@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup> International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures  
95 Gajowicka Str., 53-421 Wrocław, Poland

<sup>3</sup> Институт физики металлов, ул. Софьи Ковалевской, 18, г. Екатеринбург, 620219, Россия

Статья поступила в редакцию 12 апреля 2001 г.

Измерены температурная и концентрационная зависимости теплоемкости  $C$  и поверхностного сопротивления  $R_s$  соединения  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  ( $x = 0; 0,1; 0,2; 0,25; 0,6$  и  $1,25$ ). По измеренным значениям  $C(x)$  и  $R_s(x)$  определена концентрационная зависимость плотности состояний  $N(E, x)$ . При  $x = 0,2$  на зависимости  $N(E, x)$  наблюдается максимум. Приведенные результаты являются непосредственным экспериментальным подтверждением немонотонной зависимости  $N(E, x)$ , ранее предсказанной теоретически. Обнаружено, что при некоторых значениях  $x$  низкотемпературная теплоемкость соединений  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  увеличивается с понижением температуры, а на зависимости электросопротивления от температуры существует минимум при  $T = 10$  К. Ниже 10 К температурная зависимость электросопротивления подчиняется логарифмическому закону.

Виміряно температурну та концентраційну залежності теплоємності  $C$  та поверхневого опору  $R_s$  сполуки  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  ( $x = 0; 0,1; 0,2; 0,25; 0,6$  та  $1,25$ ). По вимірним значенням  $C(x)$  та  $R_s(x)$  визначено концентраційну залежність густини станів  $N(E, x)$ . При  $x = 0,2$  на залежності  $N(E, x)$  спостерігається максимум. Приведені результати являються безпосереднім експериментальним підтвердженням немонотонної залежності  $N(E, x)$ , що раніше була передбачена теоретично. Виявлено, що при деяких значеннях  $x$  низькотемпературна теплоємність сполук  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  збільшується із зменшенням температури, а на залежності електричного опору від температури існує мінімум при  $T = 10$  К. Нижче 10 К температурна залежність електричного опору підпорядковується логарифмічному закону.

PACS: 71.20.Fi, 65.40.Em, 72.15.Eb

## 1. Введение

Теоретически показано, что в псевдобинарном сплаве  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  — типичном парамагнетике Паули — с увеличением концентрации меди  $x$  плотность состояний  $N(E)$  на уровне Ферми изменяется монотонно и достигает максимума при  $x = 0,2$  [1,2].

Экспериментальное исследование  $N(E)$  часто проводится с помощью измерений электронной теплоемкости  $C_e$ , магнитной восприимчивости  $\chi$  и поверхностного электросопротивления  $R_s$ .

Экспериментальная зависимость  $\chi(x)$ , полученная в работе [3], качественно соответствует расчетным значениям магнитного момента  $M(x)$ , определенным из [1,2].

С целью получения более достоверных данных о зависимости плотности состояний  $N(E)$  от содержания меди в соединении  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  в настоящей работе экспериментально исследованы электронная теплоемкость  $C_e(x)$  и поверхностное сопротивление  $R_s(x)$  ряда образцов  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  при различных значениях  $x$ .

## Образцы и методика измерений

Исследованы поликристаллические образцы  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$ , где  $x$  принимает следующие значения: 0; 0,1; 0,2; 0,25; 0,6 и 1,25.

Температурную зависимость теплоемкости  $C$  измеряли методом абсолютной калориметрии в

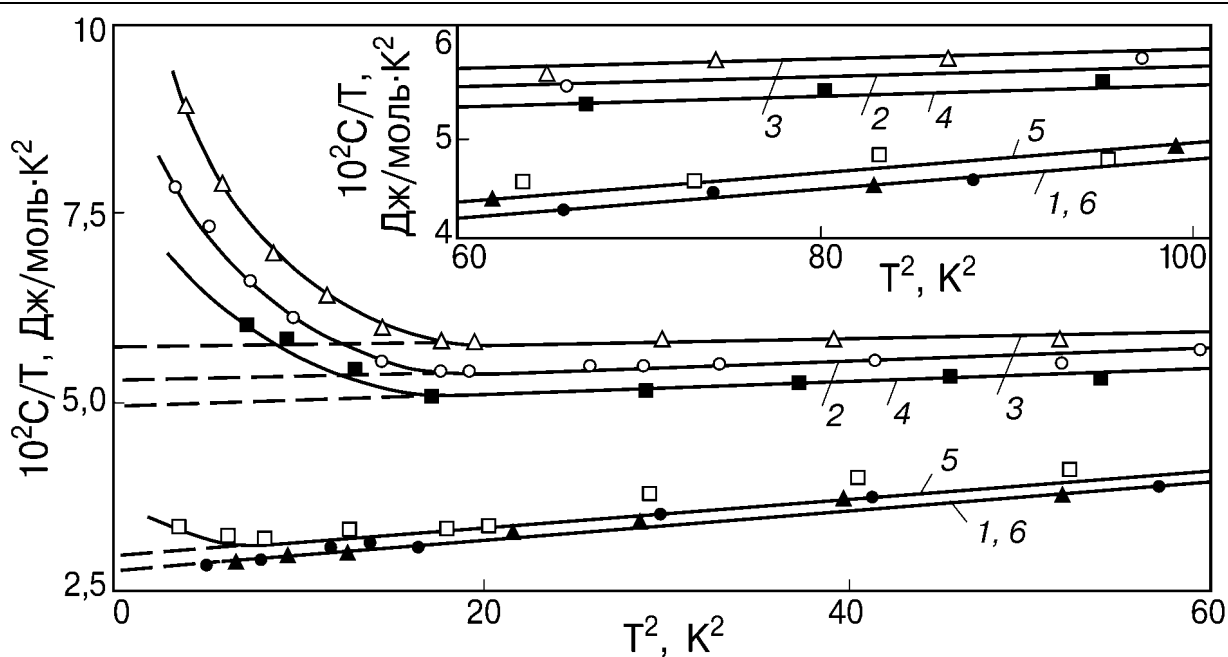


Рис. 1. Зависимость  $C/T$  от  $T^2$  соединения  $YNi_{5-x}Cu_x$  при различных значениях  $x$ : 0 (1); 0,1 (2); 0,2 (3); 0,25 (4); 0,6 (5) и 1,25 (6). На вставке — те же зависимости при  $T^2 \approx 60-100$  К.

интервале температур 1,5–20 К. Образец массой 2–3 г помещали в медный герметизируемый контейнер, снабженный германиевым термометром сопротивления и нагревателем. Нагрев осуществляли ступенчатым методом. Погрешность измерения не превышала 1%.

Исследуемые образцы имеют сложную геометрию поверхности с неодинаковой площадью поперечного сечения, притом различную для образцов с разной концентрацией  $x$ . Это затрудняет точное определение абсолютного значения их удельного электросопротивления  $\rho(x, T)$  по сопротивлению  $R$ , измеренному на постоянном токе. Поэтому для определения концентрационной зависимости  $N(E)$  по омическим потерям исследовали  $R_s$  на частоте 2 МГц, где в полной мере проявляется классический скин-эффект. В температурном интервале 4,2–300 К  $R_s$  измеряли резонаторным методом, в качестве эталона служил медный образец [4]. Для измерения был изготовлен колебательный контур, при этом оловянный припой не использовался, так как переход олова в сверхпроводящее состояние при  $T = 5-6$  К уменьшает точность измерений  $R_s$ , а также затрудняет определение влияния магнитного поля на омические потери соединения при гелиевых температурах. При этом мы учитывали, что  $R_s^n \propto \rho$  ( $n \approx 2$ ) как для диамагнетиков, так и для магнитных материалов [5].

### Экспериментальные результаты

На рис. 1 представлены экспериментальные зависимости теплоемкости в температурном интервале 1,5–10 К в координатах  $C/T$  от  $T^2$ . Экспериментально установлено, что при температурах выше 4 К температурная зависимость теплоемкости исследуемых соединений хорошо описывается выражением

$$C(T) = \gamma T + \beta T^3. \quad (1)$$

Первый член в правой части выражения представляет электронную  $C_e$ , а второй — решеточную теплоемкость. На рисунке видно, что при  $T < 4$  К, для всех образцов, кроме соединений с  $x = 0$  и  $x = 1,25$ , с понижением температуры наблюдается рост теплоемкости, различный для разных значений  $x$ . Поэтому при определении  $\gamma$  в (1) методом экстраполяции отношения  $C/T$  как функции  $T^2$  к  $T = 0$  использовали значения теплоемкости в диапазоне 4–10 К.

Температурная зависимость  $R_s$  соединения  $YNi_5$ , измеренная на частоте 2 МГц в интервале температур 4,2–300 К, приведена на рис. 2,а. Кривые  $R_s(T)$  сплавов  $YNi_{5-x}Cu_x$  подобны приведенной на рис. 2,а, поэтому здесь не показаны. Как видно на рис. 2,а, в интервале температур 50–300 К зависимость  $R_s(T)$  близка к линейной, а при  $T < 50$  К поверхностное сопротивление слабо зависит от температуры.

Укажем, что для всех исследованных образцов при  $T \approx (270 \pm 5)$  К наблюдается аномалия на зависимости  $R_s$  в виде небольшого отклонения от

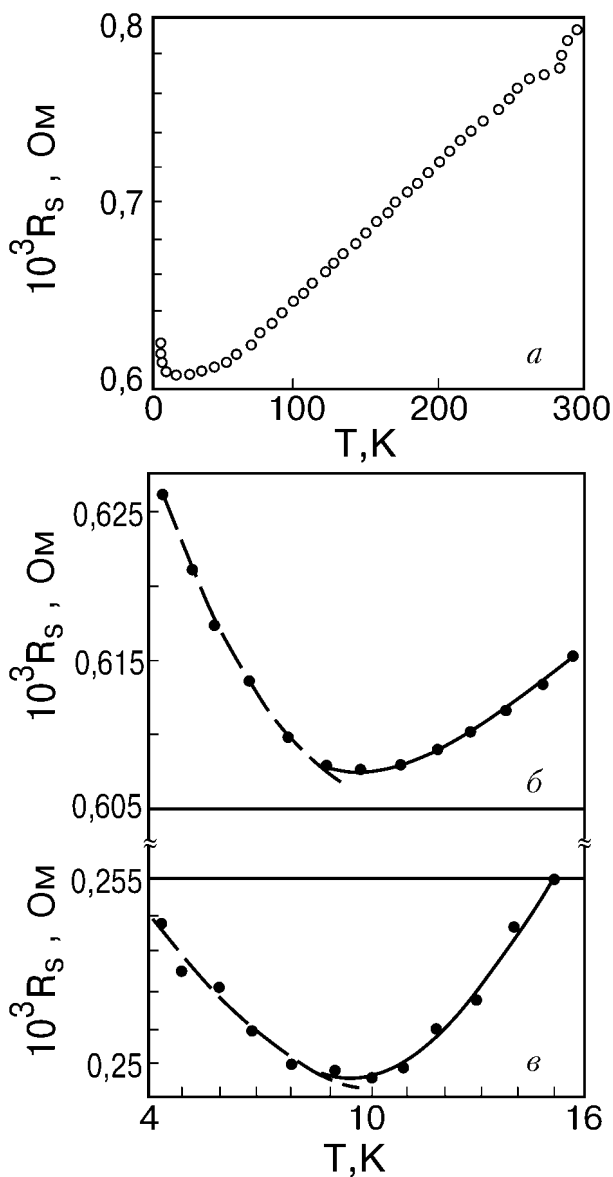


Рис. 2. Температурная зависимость  $R_s$   $\text{YNi}_5$  на частоте 2 МГц (а). Зависимость  $R_s(T)$  в интервале температур 4,2–16 К:  $\text{YNi}_5$  (б) и  $\text{YNi}_{4,8}\text{Cu}_{0,2}$  (в). Пунктир –  $R_s^2 \propto (\ln 1/T)$ .

прямолинейного хода. В образцах  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  с  $x = 0$  и  $x = 0,2$  также наблюдается незначительный минимум  $R_s$  в интервале температур 35–45 К (на рисунке не показан).

Экспериментально обнаружено, что в температурном интервале 4,2–300 К наблюдается небольшое ( $\sim 0,5$ –1%) отрицательное магнитосопротивление для образцов  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  с  $x = 0$  и  $x = 1,25$ . В соединениях с  $x = 0,1; 0,25$  и  $0,6$  влияние постоянного магнитного поля на омические потери весьма слабое ( $< 0,5\%$ ) и проявляется лишь при  $T < 100$  К, а в системах с  $x = 0,2$  оно вообще отсутствует.

Установлено, что для всех исследованных образцов при различных  $x$  на температурной за-

висимости  $R_s$  при  $T = 10$  К наблюдается минимум (см. рис. 2, б, в). Пунктиром на рис. 2, б, в показана рассчитанная температурная зависимость  $R_s \propto (\ln T^{-1})^{0,5}$ , которая подтверждает логарифмический рост измеренного удельного электросопротивления  $\rho$  с понижением температуры ниже 10 К по закону  $\rho(T) \propto R_s^2(T)$ .

По данным  $C(T)$  определены коэффициенты  $\gamma$  и  $\beta$  в выражении (1) для всех исследованных образцов. На рис. 1 видно, что коэффициент  $\beta$  (угол наклона прямых) мало отличается для образцов с различной концентрацией меди и, следовательно, температура Дебая, равная 389 К для образца с  $x = 0$ , с увеличением  $x$  изменяется незначительно (5%). В то же время коэффициент  $\gamma$  изменяется существенно и немонотонно. На рис. 3, а представлена полученная концентрационная зависимость  $\gamma$  (точки), из которой видно, что  $\gamma$  максимален при  $x = 0,2$ .

На этом же рисунке представлена относительная концентрационная зависимость разности теплоемкостей, измеренных при  $T = 2$  К и ее регулярной зависимости  $C_r$  (т.е. экстраполяция из высокотемпературной области) (на рис. 1 она показана пунктиром).

На рис. 3, б (кривая 1) приведена зависимость  $R_s(x)$  при 10 К. Видно, что при  $x = 0,2$  поверхностное сопротивление имеет минимальное значение. Здесь же показана концентрационная зависимость разности поверхностных сопротивлений, измеренных при температурах 4,2 и 10 К, приведенной к  $R_s(10)$  (кривая 2).

Из рис. 3, а, б следует, что зависимости  $\gamma(x)$  и  $[(C - C_r)/C_r](x)$  практически совпадают, а между кривыми  $[(R_s(4,2) - R_s(10))/R_s(10)](x)$  и  $R_s(x)$  наблюдается корреляционная связь.

### Обсуждение результатов

Высокие значения температуры Дебая всех исследованных соединений  $\text{YNi}_{5-x}\text{Cu}_x$  обуславливают продолжительность (вплоть до 10 К) линейного участка отношения  $C/T$  как функции  $T^2$ , что дает возможность достоверно определить  $\gamma(T)$ . Для  $\text{YNi}_5$  нами получено значение  $\gamma$  равное 28 мДж·К<sup>-2</sup>·моль<sup>-1</sup>. Расчетное значение  $\gamma = 20$  мДж·К<sup>-2</sup>·моль<sup>-1</sup> определено в [2]. В работе [6] экспериментально получено значение  $\gamma = 37$  мДж·К<sup>-2</sup>·моль<sup>-1</sup>, хотя величина решеточного вклада в теплоемкость совпадает с полученной нами. То, что экспериментальные значения  $\gamma$  больше расчетного, указывает на существенное влияние обменных и электрон-фононных взаимодействий, а также спиновых флуктуаций [7, 8]. Они определяют усиливающий фактор, который

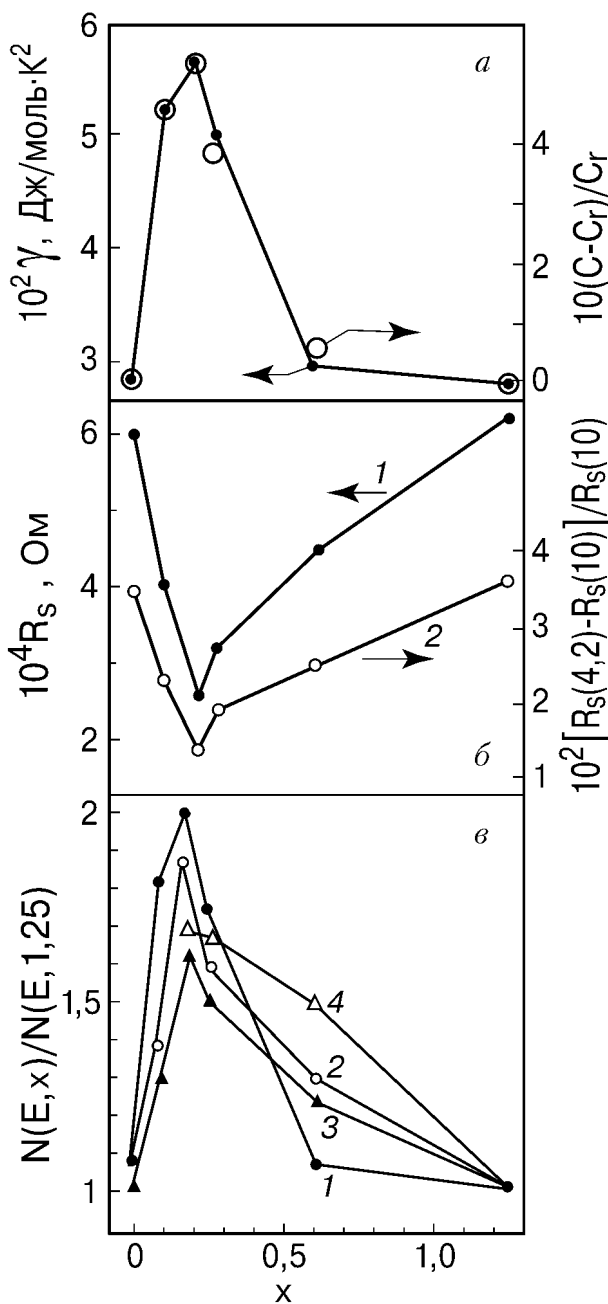


Рис. 3. Концентрационные зависимости  $\gamma$  (точки),  $(C - C_r)/C_r$  (кружки) (а);  $R_s(10)$  (1),  $(R_s(4,2) - R_s(10))/R_s(10)$  (2) (б);  $N(E, x)/N(E, 1,25)$ , определенные по теплоемкости (1), омическим потерям (2), магнитной восприимчивости (3) и теоретически из [1,2] (4) (в).

необходимо учитывать при вычислении  $N(E)$  по экспериментальным данным для  $\gamma$ ,  $\chi$  или  $\rho$  [7,8]. Поскольку нас интересует концентрационная зависимость  $N(E)$ , а не абсолютные значения  $N(E)$ , то на рис. 3,в приведены концентрационные зависимости относительной плотности состояний  $N(E, x)/N(E, 1,25)$ , вычисленные с учетом экспериментальных значений  $\gamma$  (кривая 1) и удельного электросопротивления  $\rho \propto R_s^2$  (кривая 2) по стандартным формулам, приведенным в [9,10]. Здесь же представлены концентрационные зависимости,

полученные из измерений магнитной восприимчивости [3] (кривая 3) и рассчитанные теоретически из [1,2] (кривая 4).

На рис. 3,в видно, что зависимость  $N(E, x)/N(E, 1,25)$  немонотонна и при  $x = 0,2$  наблюдается максимальное значение  $N(E)$  независимо от того, по какому из измеренных параметров вычислена плотность состояний — теплоемкости, электросопротивлению или магнитной восприимчивости. Именно это обстоятельство, а также подобие кривых 1–4 на рис. 3,в дает основание утверждать о соответствии приведенных в [1,2] теоретических результатов полученным экспериментально.

Зависимости на рис. 3,в построены в предположении, что указанные выше усиливающие факторы не зависят от  $x$ . Если же такая зависимость существует, то она, скорее, повлияет на остроту максимума, чем на его положение на оси  $x$ .

Немонотонная концентрационная зависимость  $N(E)$  может быть объяснена следующим образом. Для бинарного сплава  $YNi_5$  теоретическая кривая  $N(E)$  имеет небольшой локальный максимум несколько выше уровня Ферми [2]. По мере замещения Ni на Cu происходит заполнение  $3d$ -зоны, так как в меди  $3d$ -электронов больше, чем в Ni. В результате для системы  $YNi_{5-x}Cu_x$  уровень Ферми смещается в сторону больших энергий и проходит через максимум, что и обуславливает немонотонный характер изменения  $N(E)$  с изменением концентрации меди.

Полученные нами результаты для соединения  $YNi_{5-x}Cu_x$  практически совпадают с полученными в работе [7] для систем  $Lu(Co_{1-x}Ga_x)_2$  и  $Lu(Co_{1-x}Sn_x)_2$ . При  $x = 0$  никаких аномалий теплоемкости не наблюдается и для  $LuCo_2$   $\gamma = 24,6$  мДж·К<sup>-2</sup>·моль<sup>-1</sup>, что близко к значению  $\gamma$  для  $YNi_5$ , полученному нами. Но уже малые добавки Cu, Ga или Sn заметно влияют на параметры систем. В частности, растет значение  $\gamma$  и при температуре ниже 4 К наблюдается заметный рост отношения  $C/T$ . Вместе с тем значительное количество допирующего элемента практически не влияет на свойства соединения. При некоторых значениях  $x$  как в  $YNi_{5-x}Cu_x$ , так и в  $Lu(Co_{1-x}Sn_x)_2$ , значения  $\gamma$  и  $\chi$  проходят через максимумы, причем отношения  $\gamma(x)_{\max}/\gamma(0)$  и  $\chi(x)_{\max}/\chi(0)$  не совпадают.

Полученные нами результаты и анализ результатов, приведенных в работах [1–3,7], указывают на то, что немонотонные концентрационные зависимости  $\gamma$ ,  $\chi$  и  $\rho$  ряда парамагнитных псевдобинарных сплавов вызваны особенностями их электронной структуры. При этом существенными являются

два фактора: влияние допирования на ширину  $d$ -зоны и взаимное смещение уровня Ферми и локальной плотности состояний допируемого и допирующего элементов. Сопоставление зависимостей  $\gamma(x)$  и  $R(x)$  указывает на то, что именно фактическая плотность состояний на уровне Ферми является определяющей. Таким образом, мы полагаем, что увеличение  $\gamma$  при допировании связано с увеличением  $N(E_F)$ , происходящем на фоне сильных спиновых флуктуаций электрон-фононных и других взаимодействий.

Интересно отметить, что рост отношения  $C/T$  для различных  $x$  при  $T < 4$  К совпадает с концентрационной зависимостью  $\gamma(x)$ , как это видно на рис. 3,а. Это означает, что те взаимодействия в системе, которые обуславливают немонотонный характер концентрационной зависимости  $\gamma(x)$ , ответственны также за низкотемпературные аномалии теплоемкости. Однако при низких температурах электросопротивление образцов возрастает с понижением  $T$ . Таким образом, если при допировании рост  $\gamma$  сопровождался снижением электросопротивления (см. рис. 3,б, кривая 1), то увеличение отношения  $C/T$  с понижением температуры происходит на фоне возрастающего электросопротивления (рис. 1 и 2,б,в). Такое поведение системы может быть связано с утяжелением носителей заряда.

Интересным представляется обнаруженный минимум на температурной зависимости электросопротивления (рис. 2,б,в). Глубина минимума электросопротивления зависит от концентрации меди и достигает экстремального значения при  $x = 0,2$ . В то же время температура, при которой наблюдается минимум электросопротивления, не зависит от  $x$ . При уменьшении температуры ниже той, при которой наблюдается минимум омических потерь, сопротивление увеличивается по логарифмическому закону, что характерно для эффекта Кондо [11].

### Заключение

По экспериментально измеренным концентрационным зависимостям теплоемкости и поверхностного сопротивления соединения  $YNi_{5-x}Cu_x$  установлено, что его плотность состояний с повышением концентрации меди изменяется немонотонно и проходит через максимум при  $x = 0,2$ . Это является прямым экспериментальным подтверждением ранее предсказанной теоретически зависимости  $N(E, x)$  соединения  $YNi_{5-x}Cu_x$ .

Обнаружены и исследованы низкотемпературные аномалии теплоемкости (увеличение ее значения с понижением температуры).

Обнаружена особенность на температурной зависимости поверхностного сопротивления, которая наблюдается в виде минимума при  $T = 10$  К. При изменении содержания меди в соединении температура, при которой наблюдается минимум, остается неизменной, а глубина минимума оказывается наименьшей при  $x = 0,2$ .

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Украины, Договор № 2М/75-2000, а также Российского фонда фундаментальных исследований, проект Р2001 — Урал № 01-02-96420.

1. M. Simizu, J. Inoue, and S. Nagasava, *J. Phys.* **F14**, 2673 (1984).
2. M. Simizu, M. Miyaraki, and J. Inoue, *JMMM* **74**, 309 (1988).
3. A. G. Kuchin, A. S. Ermolenko, V. J. Khrabrov, G. M. Makarova, and E. J. Belozeroz, *JMMM* **159**, L309 (1996).
4. В. М. Дмитриев, М. Н. Офицеров, Н. Н. Пренцлау, *Межвед. Н-Т сб. Радиотехника*, вып. **97**, 91 (1993).
5. В. Л. Гуревич, *ЖТФ* **28**, В10, 2352 (1958).
6. F. Kayzel, *Magnetic and Thermodynamic Properties of RNi<sub>5</sub> Compounds*, Thesis, Amsterdam (1997).
7. K. Murata, K. Fukamichi, T. Sakakibara, T. Goto, and K. Suzuki, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 1525 (1993).
8. Lars Nordström, M. S. S. Brooks, and Börje Johansson, *Phys. Rev.* **B46**, 3459 (1992).
9. П. Де Жен, *Сверхпроводимость металлов и сплавов*, Мир, Москва (1968).
10. Б. Г. Лившиц, *Физические свойства металлов и сплавов*, Гос. Науч.-Техн. изд. машиностроительной литературы, Москва (1959).
11. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, Москва (1987).

### Concentration dependence of density of states in Pauli paramagnets $YNi_{5-x}Cu_x$

A. M. Gurevich, V. M. Dmitriev, A. S. Ermolenko, V. N. Eropkin, A. G. Kuchin, N. N. Prentslau, and A. V. Terekhov

The temperature and concentration dependences of heat capacity  $C$  and surface resistance  $R_s$  of the compound  $YNi_{5-x}Cu_x$  ( $x = 0; 0.1; 0.2; 0.25; 0.6; 1,25$ ) are measured. The concentration dependence of the density of states  $N(E, x)$  is estimated from the measured values of  $C(x)$  and  $R_s(x)$ . A maximum of  $N(E, x)$  is observed at  $x = 0.2$ . The results reported are direct experimental evidence of the nonmonotonic dependence  $N(E, x)$  predicted theoretically. It is found that at certain values of  $x$  the low temperature heat capacity of the compounds  $YNi_{5-x}Cu_x$  grows with decreasing temperature, while the dependence  $R_s(T)$  displays a minimum at  $T = 10$  К. Below 10 К the temperature dependence of the electric resistance follows the logarithmic law.