

МИКРОКОНТАКТНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКОГО СОЕДИНЕНИЯ С ПЕРЕМЕННОЙ ВАЛЕНТНОСТЬЮ $CeNi_5$ В БАЛЛИСТИЧЕСКОМ РЕЖИМЕ

А.И.Акименко, Н.М.Пономаренко, И.К.Янсон

Впервые получены микроконтактные спектры соединения с переменной валентностью в баллистическом и диффузионном режимах пролета электронов. На примере $CeNi_5$ показаны возможности и особенности микроконтактной спектроскопии для такого рода соединений.

В последнее время интенсивно изучаются соединения с переменной валентностью¹. К настоящему времени имеется значительное число публикаций (см., например,²), в которых исследуются микроконтакты таких соединений, но только в тепловом режиме пролета электронов, в котором преобладает джоулев нагрев области контакта. В этом режиме нельзя определить непосредственно из измерений энергии возбуждений так, как это возможно в баллистическом и диффузионном режимах³.

На рис. 1 и рис. 2 показаны некоторые микроконтактные (МК) спектры, полученные нами на микроконтактах $CeNi_5 - \bar{C}eNi_5$ (кривые 1). Здесь же для сравнения приведены, изученные нами ранее⁴, МК спектры микроконтактов изоструктурного соединения $PrNi_5 - PrNi_5$ в баллистическом ($l_i, l_g > d$) и диффузионном ($l_i < d < \sqrt{l_i l_g}$) режимах (кривые 2; l_i, l_g — импульсная и энергетическая длины свободного пробега электронов в области контакта, d — диаметр контакта), а на рис. 1 показана также зависимость H (eV), подобная плотности фононных состояний в $LaNi_5$, полученная методом неупругого рассеяния нейтронов в⁵ (кривая 3).

Из сравнения относительных интенсивностей фононных пиков в интервале энергий $7 \div 22$ мэВ в МК спектрах $PrNi_5$ и $CeNi_5$ можно сделать вывод, что МК спектры $CeNi_5$ также соответствуют баллистическому (так как имеются интенсивные фононные пики на кривой 1 рис. 1) и диффузионному (интенсивность фононных пиков относительно фона уменьшилась на рис. 2) режимам. В тепловом режиме фононные пики вообще не наблюдаются.

На МК спектрах $CeNi_5$ кроме фононной структуры, хорошо совпадающей с фононной частью МК спектра $PrNi_5$ и плотностью фононных состояний $LaNi_5$, имеются также два пика при энергиях $1,8 \div 2$ и $4 \div 5$ мэВ.

Наблюдаемые низкоэнергетические пики не могут относиться к возбужденным состояниям иона Ce^{3+} , возникающим из-за влияния внутрискристаллического поля так, как это имеет место для Pr^{3+} в $PrNi_5$ (пики с энергией 4,5; 13,6 и 30 мэВ на кривых 2 на рис. 1 и рис. 2). Эти пики должны быть расположены согласно расчета⁶ при энергиях 17 и 41 мэВ и не зависеть от полярности $CeNi_5$ электрода в гетероконтактах. Мы же зарегистрировали разную относительную интенсивность этих пиков в гетероконтактах $CeNi_5 - Cu$ в зависимости от знака потенциала на $CeNi_5$ электроде (см. вставку на рис. 1).

С другой стороны из ряда измерений следует, что $CeNi_5$ — это соединение с переменной валентностью (ПВ), в котором предполагается, что энергии ионов Ce^{3+} с одним электроном на 4f-оболочке и ионов Ce^{4+} без 4f-электрона, который перешел в зону проводимости, близки друг к другу и энергии Ферми¹.

Необходимо отметить, что метод МК спектроскопии можно отнести к так называемым быстрым методам исследования соединений с ПВ, так как время взаимодействия электрона с ионами в области контакта $10^{-13} \div 10^{-15}$ с. Флуктуации заряда происходят, как правило, за меньшее время (ниже будет показано, что для $CeNi_5$ это времена $10^{-12} \div 10^{-13}$ с).

На рис. 3 показана функция распределения электронов по энергии (a) и в импульсном пространстве (b) в центральной части микроконтакта, вносящей наибольший вклад в сопротивление контакта. Интересно отметить, что прикладывая напряжение V к электродам, мы

можем сдвигать части поверхности Ферми относительно невозмущенной поверхности (показана штриховой линией на рис. 3, в) — в центре контакта на $eV/2v_F$, а на периферии $\sim eV/v_F$, однако вклад периферии в сопротивление контакта падает пропорционально $1/r^2$, где r — расстояние от центра. Очевидно, что электроны проводимости с избыточной энергией eV могут захватываться ионами Ce^{4+} на $4f$ -оболочку и выбывать из числа электронов проводимости, что даст дополнительный вклад в сопротивление микроконтакта. Дырки же могут захватываться ионами Ce^{3+} и этот процесс также вносит вклад в сопротивление контакта, так как с $4f$ -оболочки излучается электрон с импульсом, преимущественно направленным против направления потока электронов в контакте.

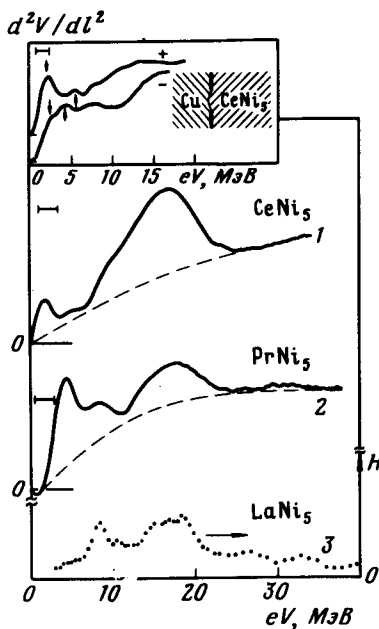


Рис. 1

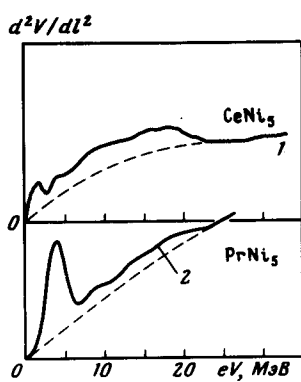


Рис. 2

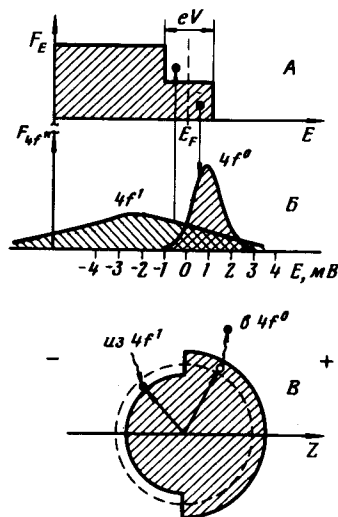


Рис. 3

Рис. 1. Сопротивление микроконтактов R для спектров 1 и 2 соответственно 12 и 11,5 Ом, $T=4,2$ К. На вставке указана полярность $CeNi_5$ электрода, $R = 11$ Ом, $T = 1,7$ К, стрелками показаны нефоновые пики. Горизонтальные отрезки соответствуют разрешению по энергии. Пунктирные линии — предполагаемый вид фона

Рис. 2. Для спектров 1 и 2 R соответственно 6,4 и 7,6 Ом, $T=1,7$ К

Рис. 3. Процессы захвата электронов и дырок $4f$ -уровнями в $CeNi_5$

Таким образом, в гетероконтактах должна наблюдаться разная интенсивность и форма пиков в зависимости от потенциала, прикладываемого к $CeNi_5$ электроду. Все это наблюдается в наших экспериментах и поэтому два низкоэнергетических пика мы относим к вышеописанным процессам. Если учесть имеющееся в эксперименте температурное и модуляционное уширение пиков и считать, что неуширенные пики имеют лоренцовскую форму, то для пиков на МК спектрах с энергией $1,8 \div 2$ и $4 \div 5$ мэВ соответствующие ширины будут $1,5 \div 2$ мэВ и $6 \div 8$ мэВ, а времена жизни ионов соответственно $3,3 \div 4,3 \cdot 10^{-13}$ с и $0,8 \div 1,0 \cdot 10^{-13}$ с. Полученная нами схема уровней показана на рис. 3, б. Так как узкий пик расположен над поверхностью Ферми, то логично приписать его иону Ce^{4+} . В таком случае определенная нами по ширине пиков средняя валентность ионов Ce в $CeNi_5$ $3,77 \div 3,84$ (заметим, что мы не учитывали размытие пиков на МК спектрах из-за разного сдвига поверхности Ферми вдали от контакта).

Авторы выражают благодарность Ш. Яношу и М. Райфферсу за предоставление образцов $CeNi_5$.

Литература

1. Хомский Д.И. УФН, 1979, 129, 443.
2. Bassian B., Frankowski I., Wohlleben D. Phys. Rev. Lett., 1982, 49, 1062.
3. Янсон И.К. ФНТ, 1983, 9, 676.
4. Акименко А.И., Пономаренко Н.М., Янсон И.К., Янош Ш., Райффберс М. ФТТ, 1984, 26, 2264.
5. Bühner W., Furrer A., Hälg W., Schlapbach L. J. Phys. F: Met. Phys., 1979, 9, L141.
6. Nasu S., Neumann H.H., Marzouk N., Craig R.S., Wallece W.E. J. Phys. Chem. Solids, 1971, 32, 2779.

Физико-технический институт низких температур
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
16 января 1985 г.