

Теплоемкость и скорость звука „умеренной“ тяжелофермионной системы YbZnCu_4

© А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, D. Wlosewicz*, H. Misiorek*, J. Mucha*, A. Jezowski*, A.I. Krivchikov**, G.A. Zvyagina**

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

* Trzebiatowski Institute of Low Temperature and Structure Research, Polish Academy of Sciences, 50-950 Wroclaw, Poland

** B. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of the National Academy of Sciences of Ukraine, 61103 Kharkov, Ukraine

E-mail: igor.smirnov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 10 мая 2006 г.)

В интервале температур 3.5–250 К измерена теплоемкость при постоянном давлении (C_p), а при 77 К — скорость звука (v) в „умеренном“ тяжелофермионном соединении YbZnCu_4 . С помощью полученных экспериментальных данных для C_p , v и измеренной нами ранее в интервале 5–300 К фононной теплопроводности YbZnCu_4 рассчитана длина свободного пробега (l) фононов в этом соединении. Вид полученной температурной зависимости l характерен для классических аморфных материалов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 05-02-17775) и в рамках двустороннего научного соглашения между Польской и Российской академиями наук.

PACS: 61.82.Bg, 61.43.Dg, 63.20.Dj.

При исследовании фононной (решеточной) теплопроводности (κ_{ph}) соединений $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$ (в области гомогенности YbInCu_4) [1–3], YbAgCu_4 [4], $\text{YbIn}_{0.7}\text{Ag}_{0.3}\text{Cu}_4$ [5], $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$ [6] и YbZnCu_4 [7], в которых в качестве одной из компонент материала был редкоземельный ион Yb с переменной гомогенной валентностью (ПВ),¹ обнаружен интересный эффект. Фононная теплопроводность у этих материалов при $T \geq 30$ –100 К не уменьшалась с ростом температуры, как это имело место у стандартных твердых тел, а, наоборот, возрастала по закону $\kappa_{\text{ph}} \sim T^n$ (где n изменялось в пределах от 0.13 до 0.8), т.е. у этих кристаллических материалов наблюдалось „аморфноподобное“ поведение $\kappa_{\text{ph}}(T)$. Такое же поведение $\kappa_{\text{ph}}(T)$ было отмечено ранее у $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{S}$ (при $x > 0.16$) [8], YbUCu_5 [9] и CeAl_3 [10], в состав которых также входили ионы с ПВ: Sm, U, Ce.

Все рассмотренные выше материалы относились к классу тяжелофермионных соединений (ТФС): „легких“, „умеренных“ и „классических“, у которых параметр γ — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости — был равен соответственно 50–60, 100–400 и превышал $400 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$. Параметр γ пропорционален эффективной массе носителей тока.

В [1–7] вполне обосновано высказано предположение, что за „аморфноподобное“ поведение $\kappa_{\text{ph}}(T)$ рассмотренных в этих работах материалов ответственны входящие в них ионы с ПВ. Ответ на вопрос о том,

оправдано или нет это предположение, можно получить, вероятно, лишь после проведения теоретических расчетов. Для построения такой теории необходимо иметь экспериментальные данные для $\kappa_{\text{ph}}(T)$ тяжелофермионных материалов с различными величинами γ , температур Кондо (T_K) и значений валентности ионов с ПВ. Важными параметрами для построения такой теории являются величина и температурная зависимость длины свободного пробега фононов (l) в материалах с „аморфноподобным“ поведением κ_{ph} . Величину $l(T)$ можно рассчитать с помощью простой формулы (1)

$$\kappa_{\text{ph}} = 1/3C\bar{v}l, \quad (1)$$

C и \bar{v} — соответственно теплоемкость и средняя скорость звука, которая определяется из соотношения $\bar{v} = (v_l + 2v_t)$, где v_l и v_t — продольная и поперечная скорости звука.

Наиболее ярко эффект аморфизации фононной теплопроводности проявился при исследовании YbZnCu_4 [7], который поэтому был выбран в качестве материала для оценки поведения в нем $l(T)$.

YbZnCu_4 относится к „умеренным“ ТФС, с $\gamma \sim 230 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ [11], $T_K \sim 30$ –97 К [11–13], валентностью иона Yb ~ 2.84 (при 4.2 К) и ~ 2.88 (при 300 К) [11,12], постоянной Холла (R_H , m^3/C) $\sim -20 \cdot 10^{-10}$ (при 4.2 К) и $\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$ (при 300 К) и величиной термоэдс в минимуме при 50 К $-55 \mu\text{V/K}$ [13].

YbZnCu_4 кристаллизуется в гранцентрированной кубической решетке типа AuBe_5 (структура $C15b$, пространственная группа $F\bar{4}3m$ (T_d^2)) и имеет параметр решетки 7.046 \AA [11].

¹ В англоязычной литературе такие материалы называют mixed-valence compounds или intermediate valence compounds.

Для определения $l(T)$ в YbZnCu_4 мы располагали полученными ранее экспериментальными значениями $\chi_{\text{ph}}(T)$ для интервала температур 5–300 К [7]. В литературе имелись данные о теплоемкости этого материала лишь для области низких температур (до ~ 20 К) [11]. Необходимые для расчета $l(T)$ данные для $C(T)$ для области более высоких температур (до 300 К) в литературе отсутствовали. Отсутствовали данные и о скорости звука в YbZnCu_4 .

Основной целью настоящей работы было определение величины и температурной зависимости длины свободного пробега фононов в кристаллическом YbZnCu_4 , имеющем „аморфоподобную“ температурную зависимость $\chi_{\text{ph}}(T)$. Было интересно исследовать, будет ли вид температурной зависимости $l(T)$ соответствовать классическим аморфным или кристаллическим твердым телам.

Для осуществления поставленной цели было необходимо провести измерение теплоемкости YbZnCu_4 в широком интервале температур (5–250 К) и определить в этом интервале величину скорости звука.

1. Подготовка образцов, методики исследования

Исследовались литые поликристаллические образцы YbZnCu_4 , которые уже использовались нами ранее при измерении их термоэдс [13] и теплопроводности [7]. Измеренная в [7,13] постоянная кристаллической решетки для этих образцов была равна $7.043(2)$ Å, что достаточно хорошо совпало с литературными данными (7.046 Å [11]).

Измерение теплоемкости при постоянном давлении $C_p(T)$ проводилось в интервале 3.5–65 К с помощью импульсного квазиadiaбатического метода [14], а при 80–250 К — на автоматическом адиабатическом калориметре [15].

Для ультразвуковых измерений использовалась установка, представляющая собой компенсационную схему, работающую в импульсном режиме, что позволило надежно разделить различные звуковые моды [16]. Скорость звука измерялась при 77 К.

2. Полученные результаты и их обсуждение

На рис. 1 и 2 приведены полученные экспериментальные значения теплоемкости при постоянном давлении $C_p(T)$ для YbZnCu_4 .

На рис. 3 в координатах $C_p/T = f(T^2)$ представлены низкотемпературные данные (3.5–18 К) для измеренного и исследованного в [11] образцов YbZnCu_4 . Как видно из рисунка, наши и литературные данные практически совпали. Из зависимости $C_p/T = \gamma + \beta T^2$ (рис. 3) был определен параметр γ для YbZnCu_4 . Согласно нашим

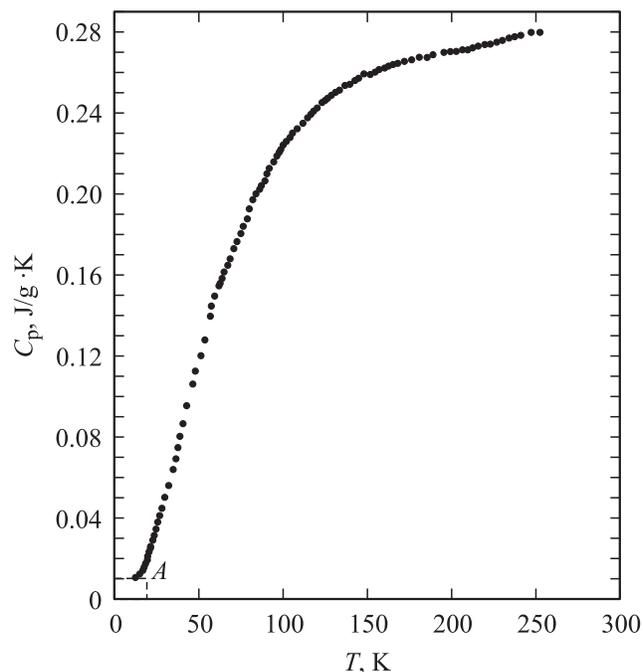


Рис. 1. Температурная зависимость C_p для YbZnCu_4 .

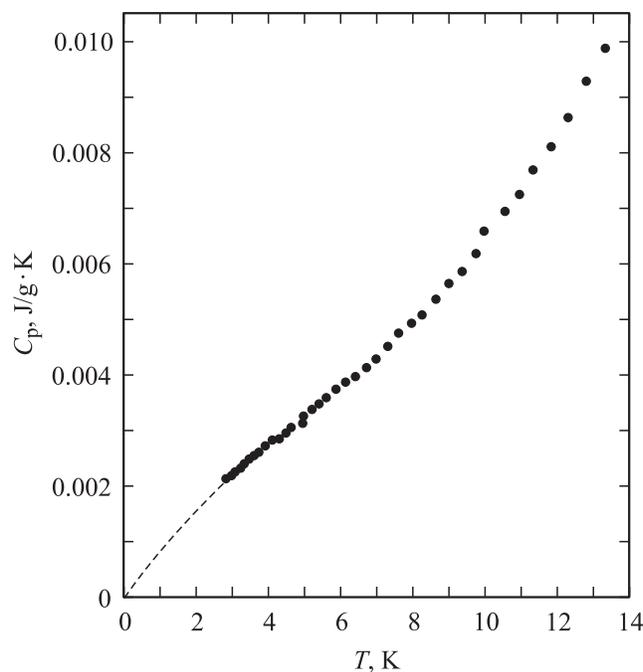


Рис. 2. Низкотемпературный участок зависимости $C_p(T)$ YbZnCu_4 (участок А на рис. 1).

и литературным данным [11], для YbZnCu_4 он составил ~ 230 мДж/моль \cdot К².

При 77 К нами были измерены в YbZnCu_4 поперечная (v_t) и продольная (v_l) скорости звука, которые оказались равными соответственно $2.2 \cdot 10^5$ и $4.15 \cdot 10^5$ см/с. Средняя величина \bar{v} , входящая в формулу (1), составила $2.85 \cdot 10^5$ см/с.

С помощью полученных экспериментальных данных для $C_p(T)$, \bar{v} , заимствованных из нашей работы [7] значений для $\kappa_{ph}(T)$ (рис. 4) и с учетом рентгеновской плотности (9.41 g/cm^3) по формуле (1) была рассчитана длина свободного пробега фононов в YbZnCu_4 (рис. 5).

На рис. 5 кривые 1 и 2 соответствуют расчету $l(T)$ по формуле (1) с использованием данных для различных участков температурной зависимости $\kappa_{ph}(T)$ рис. 4. Сплошная кривая 1 получена с помощью значений κ_{ph}

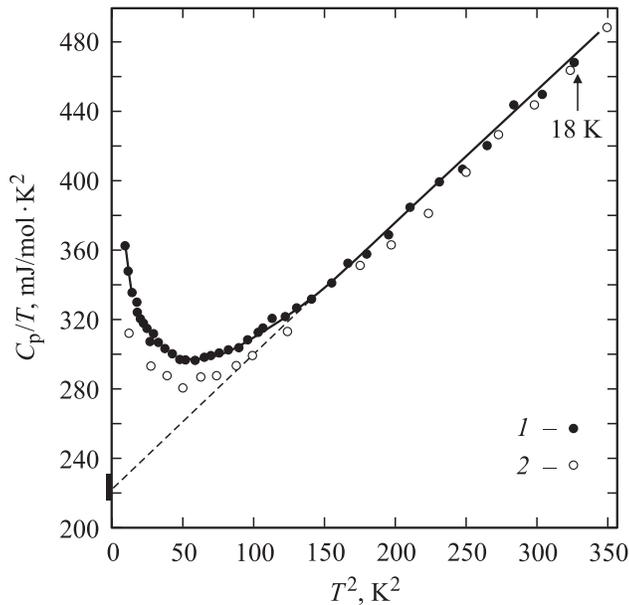


Рис. 3. Зависимость C_p/T от T^2 для YbZnCu_4 . 1 — результаты настоящего эксперимента, 2 — данные с усредненной кривой работы [11].

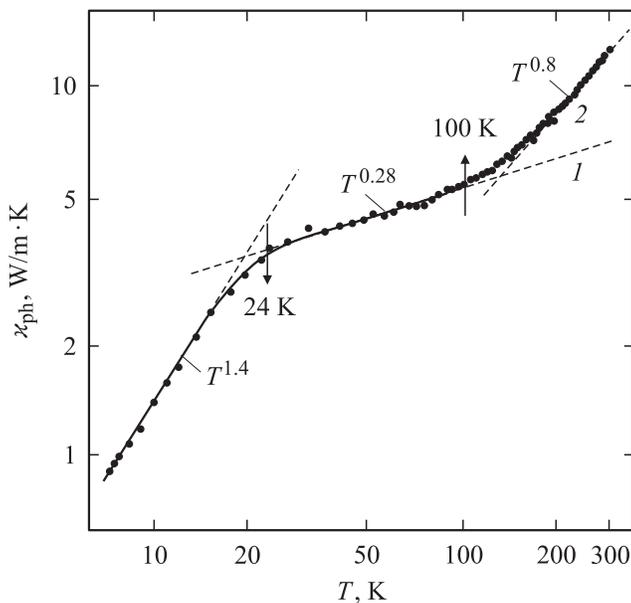


Рис. 4. Температурная зависимость фоновой теплопроводности YbZnCu_4 из [7]. Объяснение участков кривых 1 и 2 см. в тексте статьи.

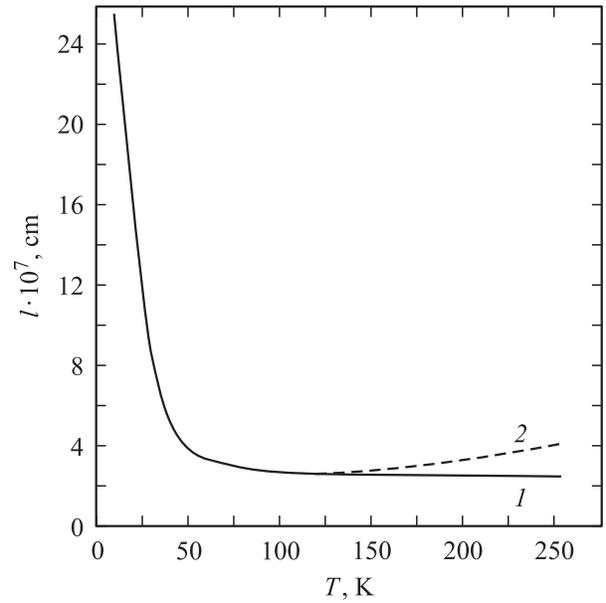


Рис. 5. Температурная зависимость длины свободного пробега для фононов в YbZnCu_4 , рассчитанная по формуле (1). Объяснение участков кривых 1 и 2 см. в тексте статьи.

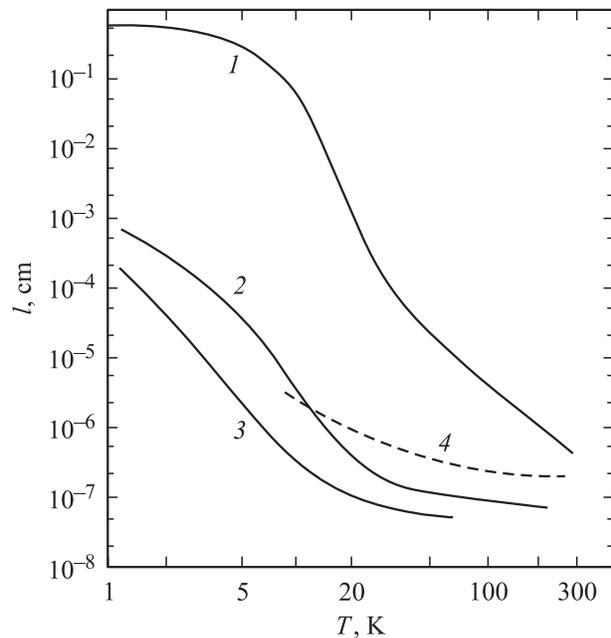


Рис. 6. Температурные зависимости длин свободного пробега фононов в исследованном образце YbZnCu_4 (1), аморфных Se (2) и SiO_2 (3), а также кристаллическом SiO_2 (4) из работы [17].

для области 24–250 К (экспериментальные точки для 24–100 К и данные с экстраполированной штриховой прямой 1 для 100–250 К). Штриховая кривая 2 рассчитана для интервала 100–250 К с помощью экспериментальных значений $\kappa_{ph}(T)$, представленных на кривой 2 рис. 4.

Температурная зависимость $l(T)$ и ее величина оказались очень похожими на таковые для классических аморфных материалов Se и SiO_2 [17] (рис. 6).

Величина l на участке, где она постоянна, составляет ~ 3 постоянных кристаллических решетки a YbZnCu_4 . Если провести сравнение полученных результатов для $l(T)$ в YbZnCu_4 с классическими аморфными телами, то можно утверждать, что в YbZnCu_4 имеется либо набор искаженных областей, либо набор „кластеров“ с размерами $\sim 3a$, на которых происходит рассеяние фононов в этом соединении.

Вернемся к обсуждению результатов для $l(T)$, представленных на рис. 5. Значения l , относящиеся к участку l , остаются постоянными в интервале 80–250 К, представленные на кривой 2 для интервала 100–250 К слегка возрастают с повышением температуры.

Можно указать несколько причин, которые могли бы привести к такому возрастанию l .

1) Как уже отмечалось в работе [7], это могло бы быть связано с появлением в области температур 100–250 К дополнительной теплопроводности за счет биполярной диффузии, если бы YbZnCu_4 был полуметаллом [18]. Однако, согласно данным для постоянной Холла [11], YbZnCu_4 при этих температурах ведет себя как хороший металл.

2) Можно предположить, что при выделении $\kappa_{\text{ph}}(T)$ из полученной на эксперименте общей теплопроводности $\kappa_{\text{tot}}(T)$ в [7] по формуле (2)

$$\kappa_{\text{tot}} = \kappa_{\text{ph}} + \kappa_{\text{e}} \quad (2)$$

был неправильно проведен учет электронной составляющей теплопроводности (κ_{e}) по закону Видемана–Франца (3)

$$\kappa_{\text{e}} = L_0 T / \rho, \quad (3)$$

где L_0 — зоммерфельдовское значение числа Лоренца. Для хороших металлов оно равно $2.45 \cdot 10^{-8} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$. Для того чтобы „ликвидировать“ возрастание κ_{ph} в области 100–250 К по сравнению со значениями κ_{ph} , соответствующими штриховой прямой 1 рис. 4, необходимо, чтобы в (3) число Лоренца L было больше L_0 . Такая ситуация может иметь место в металлах со сложной зонной структурой [19], когда в них наряду с зоной легких носителей тока имеется зона с тяжелыми носителями тока и наблюдается межзонное взаимодействие тяжелых и легких носителей тока. Однако для проверки этого предположения необходимо провести достаточно сложные исследования электронной зонной структуры YbZnCu_4 .

3) И наконец, как это отмечалось в [7], полученные экспериментальные результаты для $\kappa_{\text{ph}}(T)$ YbZnCu_4 (рис. 4) можно полностью описать в рамках модели для классических аморфных тел [20], для которых возрастание κ_{ph} в области температур 100–300 К вполне правомерно. Однако это заключение для случая YbZnCu_4 требует достаточно серьезного теоретического подтверждения.

Список литературы

- [1] И.А. Смирнов, Л.С. Парфеньева, А. Ежовский, Х. Мисиорек, С. Кремпел-Хассе, Ф. Риттер, В. Ассмус. ФТТ **41**, 1548 (1999).
- [2] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Риттер, В. Ассмус. ФТТ **44**, 973 (2002).
- [3] Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Риттер, В. Ассмус. ФТТ **44**, 1162 (2002).
- [4] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. ФТТ **43**, 210 (2001).
- [5] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. ФТТ **43**, 1739 (2001).
- [6] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Misiorek, J. Mucha, A. Jezowski. ФТТ **48**, 586 (2006).
- [7] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Misiorek, J. Muha, A. Jezowski. ФТТ **49**, 000 (2007).
- [8] А.В. Голубков, А.В. Гольцев, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. ФТТ **42**, 986 (2000).
- [9] D. Kaczorowski, R. Troc, A. Czopnik, A. Jezowski, Z. Henkie, V.I. Zeremba. Phys. Rev. B **63**, 144401 (2001).
- [10] H.R. Ott, O. Marti, F. Hulliger. Solid State Commun. **49**, 1129 (1984).
- [11] J.L. Sarrao, C.D. Immer, Z. Fisk, C.H. Booth, E. Figueroa, J.M. Lawrence, R. Modler, A.L. Cornelius, M.F. Handley, G.H. Kwei, J.D. Thompson, F. Bridges. Phys. Rev. B **59**, 6855 (1999).
- [12] J.M. Lawrence, P.S. Riseborough, C.H. Booth, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, R. Osborn. Phys. Rev. B **63**, 054427 (2001).
- [13] А.В. Гольцев, А.В. Голубков, И.А. Смирнов, Н. Misiorek, Ch. Sulkovski. ФТТ **48**, 583 (2006).
- [14] A.I. Krivchikov, B.Ya. Gorodilov, A. Czopnik. Proc. Conf. Low Temperature Thermometry and Dynamic Temperature Measurement. IL Tand SR. Wroclaw (1997). P. V7.
- [15] D. Wlosewicz, T. Plackowski, K. Rogacke. Cryogenics **32**, 265 (1992).
- [16] Е.А. Масалитин, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Желобенко, Т.В. Игнатова. ФНТ **29**, 93 (2003).
- [17] R.C. Zeller, R.O. Pohl. Phys. Rev. B **4**, 2029 (1971).
- [18] И.А. Смирнов, В.И. Тмарченко. Электронная теплопроводность в металлах и полупроводниках. Наука, Л. (1977). 151 с.
- [19] Н.В. Колomoец. ФТТ **8**, 997 (1996).
- [20] В.С. Оскотский, И.А. Смирнов. Дефекты в кристаллах и теплопроводность. Наука, Л. (1972). 159 с.