

Теплопроводность и теплоемкость LuMgCu₄

© А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Misiorek*, D. Wlosewicz*, J. Mucha*, A. Jezowski*

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

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

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

(Поступила в Редакцию 23 апреля 2007 г.)

В интервале температур 5–300 К измерены теплопроводность κ и удельное электросопротивление ρ , а при 80–300 К — теплоемкость при постоянном давлении C_p металлического немагнитного соединения LuMgCu₄. Проведено сравнение величины κ и C_p LuMgCu₄ с литературными данными для „легкого“ тяжелофермионного соединения YbMgCu₄. Показано, что в области низких температур (5–20 К) фононная теплопроводность κ_{ph} YbMgCu₄ из-за рассеяния фононов на флуктуациях магнитных моментов $4f$ -электронов Yb оказалась меньше $\kappa_{ph}(T)$ LuMgCu₄ и, наоборот, теплоемкость LuMgCu₄ в интервале 80–300 К оказалась меньше $C_p(T)$ YbMgCu₄ из-за наличия в YbMgCu₄ дополнительной магнитной составляющей теплоемкости.

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

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

В последнее десятилетие ведущие лаборатории мира в США, Японии и Германии проявляют интерес к исследованию интерметаллических соединений YbM₄Cu₄ и LuM₄Cu₄ ($M = Ag, Au, Cd, In, Mg, Tl, Zn$), поскольку эти материалы обладают весьма необычными физическими свойствами. Они кристаллизуются в гранцентрированной кубической решетке типа AuBe₅ (структура $C15b$, пространственная группа $F\bar{4}3m(T_a^2)$).

Соединения YbM₄Cu₄ относятся к „легким“ („light“) и „умеренным“ („moderate“) тяжелофермионным системам и одновременно входят в группу материалов с гомогенной переменной валентностью редкоземельных ионов (в данном случае иона Yb). Соединения LuM₄Cu₄ являются немагнитными металлами. В их состав входит немагнитный ион Lu. Поэтому они чаще всего используются в качестве реперных (сравнительных) материалов при анализе экспериментальных данных тяжелофермионных систем YbM₄Cu₄. Однако значение исследования физических свойств LuMgCu₄ не ограничивается лишь отмеченными выше узкими рамками, поскольку эти свойства сами по себе бывают весьма необычными, вносящими существенный вклад в понимание физики поведения интерметаллических соединений. За последние годы в различных лабораториях мира было проведено достаточно подробное изучение физических свойств различных представителей из группы LuM₄Cu₄. Были проведены исследования структурных [1], электрических [2–8], магнитных [1], гальваномагнитных [1,4,9], тепловых (теплоемкость при низких температурах [1,5,10], теплопроводность [7,8]) свойств, исследовались коэффициент термоэдс [11,12] и коэффициент линейного расширения [4], проводились расчеты электронной зонной структуры [13–16].

Целью настоящей работы было измерение в широком интервале температур теплопроводности κ , удельного электросопротивления ρ и теплоемкости C LuMgCu₄ и сравнение этих данных с $\kappa(T)$ и $C(T)$, полученными в [17,18] для „легкого“ тяжелофермионного соединения YbMgCu₄.

Согласно литературным данным [1,9], для LuMgCu₄ постоянная Холла в интервале температур 4–300 К равна $-(1.7-2) \cdot 10^{-10} \text{ m}^3/\text{C}$, так что этот материал является металлом, параметр γ — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости ($C_e \sim \gamma T$), пропорциональный эффективной массе носителей тока, — равен $8.7 \text{ mJ/mol}\cdot\text{K}^2$, температура Дебая $\theta = 290 \text{ K}$ и параметр элементарной ячейки $a = 7.129 \text{ \AA}$.

1. Приготовление образцов, методики измерений

Литые поликристаллические образцы LuMgCu₄ готовились по методике, описанной в [11,12,19]. Полученные образцы проходили рентгеноструктурный анализ на установке ДРОН-2 (в $\text{CuK}\alpha$ -излучении). Определялись значения параметров элементарной ячейки a . Параметр a для выбранного нами для исследования образца LuMgCu₄ составил 7.136 \AA .

Теплопроводность и удельное электросопротивление измерялись в интервале температур 5–300 К на установке, аналогичной [20], в вакууме $\sim 10^{-5} \text{ mm Hg}$.

Измерение теплоемкости при постоянном давлении C_p проводилось в вакууме в интервале 80–300 К в адиабатическом калориметре [21]. В литературе данные о теплопроводности и теплоемкости LuMgCu₄ в указанных выше интервалах температур отсутствовали.

2. Полученные результаты и их обсуждение

На рис. 1 и 2 приведены соответственно температурные зависимости полной измеренной на эксперименте теплопроводности κ_{tot} и удельного электросопротивления ρ LuMgCu₄.

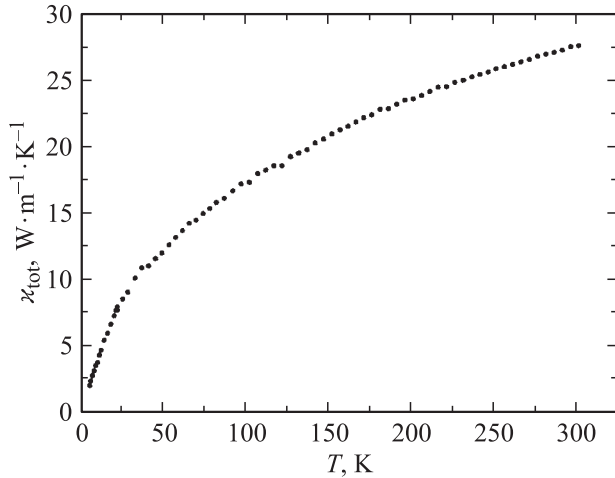


Рис. 1. Температурная зависимость общей теплопроводности $\kappa_{\text{tot}}(T)$ для LuMgCu₄.

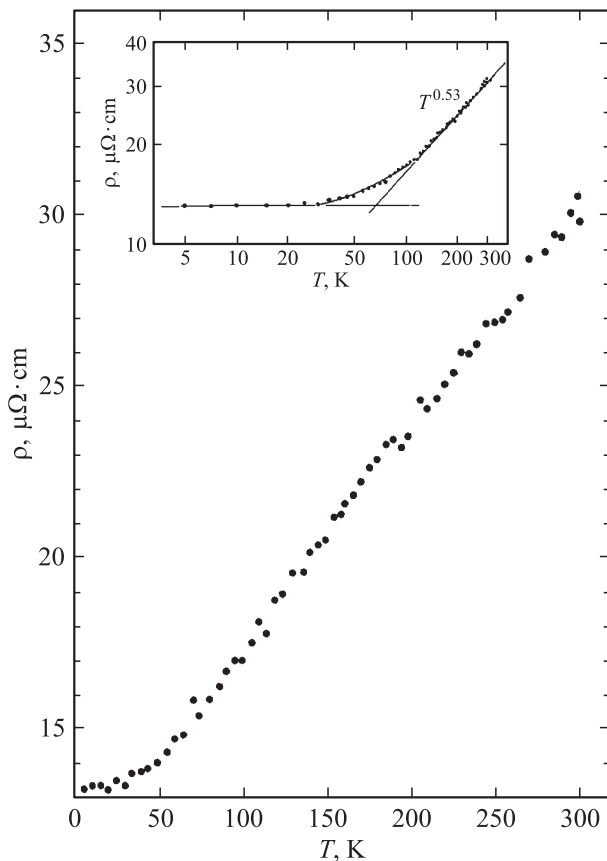


Рис. 2. Температурная зависимость удельного электросопротивления LuMgCu₄. На вставке — эта же зависимость представлена в логарифмическом масштабе.

ния ρ LuMgCu₄. Из данных, представленных на вставке к рис. 2, следует, что величина остаточного удельного электросопротивления ρ_0 у исследованного образца равна $13.2 \mu\Omega \cdot \text{cm}$.

Согласно данным по эффекту Холла [1.9], LuMgCu₄ во всем измеренном интервале температур (5–300 К) можно отнести к металлам, для которых κ_{tot} выражается в виде суммы решеточной (фононной) κ_{ph} и электронной κ_{e} составляющих теплопроводности [22]:

$$\kappa_{\text{tot}} = \kappa_{\text{ph}} + \kappa_{\text{e}}, \quad (1)$$

κ_{e} подчиняется закону Видемана–Франца и записывается в виде

$$\kappa_{\text{e}} = L_0 T / \rho, \quad (2)$$

где L_0 — зоммерфельдовское значение числа Лоренца ($L_0 = 2.45 \cdot 10^{-8} \text{ W} \cdot \Omega / \text{K}^2$).

На рис. 3 приведена температурная зависимость $\kappa_{\text{ph}}(T)$ LuMgCu₄, рассчитанная с помощью (1) и (2) из данных для κ_{tot} и $\rho(T)$, представленных на рис. 1 и 2.

На первый взгляд характер поведения $\kappa_{\text{ph}}(T)$ в интервале температур 5–100 К типичен для твердых тел: рост теплопроводности с повышением температуры в области низких температур, прохождение через максимум в районе ~ 32 К и затем уменьшение $\kappa_{\text{ph}}(T)$ с дальнейшим возрастанием температуры.

Если рассматривать всю исследованную температурную область (5–300 К) и более критично подойти к анализу поведения $\kappa_{\text{ph}}(T)$ в области 5–100 К, то выявляются некоторые особенности, которые обсуждаются далее.

В интервале температур 30–100 К κ_{ph} уменьшается с ростом температуры по закону $\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-0.3}$, а не $\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-1}$, как это должно быть для поведения теплопроводности в случае бездефектного (или слабодефектного) твердого тела. Зависимость $\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-0.3}$ характерна для сильнодефектных материалов. Отступление от зависимости $\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-1}$ в аналогичной области температур наблюдалось и ранее при исследовании теплопроводности LuInCu₄ ($\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-0.6}$) [8] и LuAgCu₄ ($\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-0.5}$) [7].

Более серьезные вопросы вызывают следующие обстоятельства: 1) при низких температурах в интервале 5–15 К $\kappa_{\text{ph}} \sim T$; 2) при $T > 100$ К $\kappa_{\text{ph}}(T)$ сильно возрастает с повышением температуры, отклоняясь от зависимости $\kappa_{\text{ph}} \sim T^{-0.3}$.

Рассмотрим более подробно причины нестандартного поведения $\kappa_{\text{ph}}(T)$, отмеченного выше.

В изоляторах или материалах с небольшой величиной электропроводности при низких температурах ($T \ll \theta$), согласно теории теплопроводности [23], $\kappa_{\text{ph}} \sim T^3$, в металлах из-за рассеяния фононов на носителях тока $\kappa_{\text{ph}} \sim T^2$ [23]. Однако у ряда металлических твердых тел (некоторых металлических составов [24], CeAl₃ [25], CeCu₂Si₂ [26], UCu₅In [27]) в области низких температур наблюдается зависимость $\kappa_{\text{ph}} \sim T$. Согласно теоретическим расчетам [24], подобная температурная

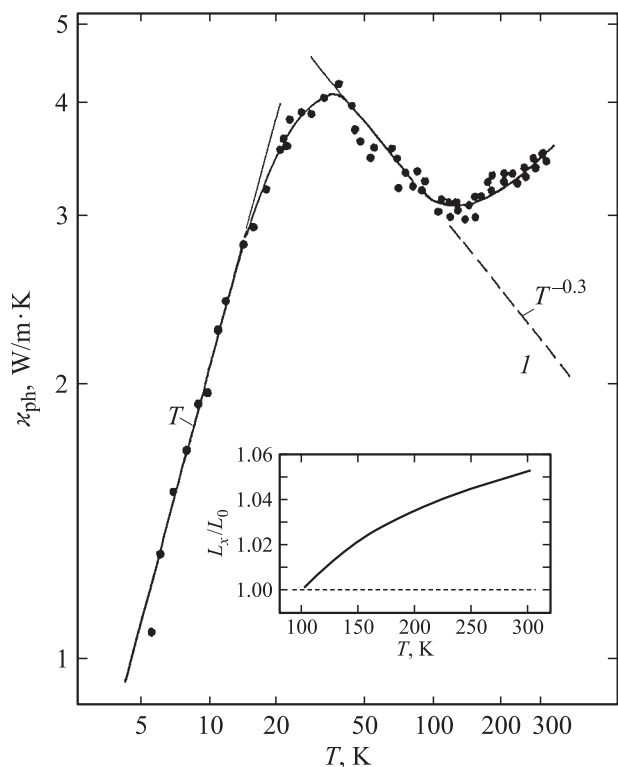


Рис. 3. Температурная зависимость фоновой теплопроводности LuMgCu₄. На вставке — $L_x/L_0 = f(T)$ для LuMgCu₄ в области температур 100–300 К (см. текст).

зависимость $\kappa_{ph}(T)$ может проявиться при низких температурах в металлических материалах, у которых $\rho_0 > 10 \mu\Omega \cdot \text{см}$, а длина волны фононов в этой области температур становится сравнимой или превышает величину длины свободного пробега носителей тока.

Возможно, подобная ситуация имеет место и в наблюдаемом нами случае с κ_{ph} для образца LuMgCu₄, у которого, как отмечалось выше, $\rho_0 = 13.2 \mu\Omega \cdot \text{см}$. Остановимся теперь на обсуждении возможных причин, которые могли бы быть ответственны за возрастание $\kappa_{ph}(T)$ LuMgCu₄ при $T > 100$ К (рис. 3).

1) Это могло быть связано с появлением при $T > 100$ К дополнительной теплопроводности за счет биполярной диффузии носителей тока, как это имело место в полуметалле LuInCu₄ [8]. Однако, согласно данным для постоянной Холла [1,9], LuMgCu₄ во всем исследованном интервале температур (5–300 К) не является полуметаллом, а ведет себя как достаточно хороший металл, у которого биполярной диффузии носителей тока не должно быть.

2) Можно предположить, что при выделении $\kappa_{ph}(T)$ из полученной в эксперименте общей теплопроводности $\kappa_{tot}(T)$ по формулам (1) и (2) был неправильно проведен учет электронной составляющей κ_e по закону Видемана–Франца в формуле (2).

Для того чтобы „ликвидировать“ возрастание κ_{ph} в области $T > 100$ К по сравнению со значениями κ_{ph} , соответствующими штриховой прямой I на рис. 3, необ-

ходимо, чтобы в формуле (2) число Лоренца L_x было больше зоммерфельдовского значения L_0 . Для этого в интервале 100–300 К отношение L_x/L_0 (L_x — реальное значение числа Лоренца для этого интервала температур) должно возрасти от 1 до 1.06 (см. вставку к рис. 3). Такая ситуация может иметь место в металлах при наличии в них сложной зонной структуры [28], когда в них наряду с зоной легких носителей тока имеется зона с тяжелыми носителями тока и наблюдается межзонное взаимодействие между носителями тока, находящимися в этих зонах.

Однако окончательной ясности в причинах возрастания $\kappa_{ph}(T)$ при $T > 100$ К у LuMgCu₄ все же нет. Возможно, в дальнейшем по мере накопления новых экспериментальных данных и теоретических разработок могут появиться и иные объяснения обнаруженного эффекта, более близкие к реальной ситуации. Поведение $\kappa_{ph}(T)$, подобное полученному в настоящей работе для LuMgCu₄ в области 100–300 К, наблюдалось нами ранее [7] и для LuAgCu₄.

На рис. 4 приведены данные для $\kappa_{ph}(T)$, полученные в настоящей работе для LuMgCu₄ и заимствованные из [17] для YbMgCu₄. Фоновая теплопроводность кристаллического образца „легкого“ тяжелофермионного соединения проявляет несвойственную для кристаллических тел температурную зависимость $\kappa_{ph}(T)$. Она имеет „аморфноподобный“ вид, обусловленный наличием в YbMgCu₄ иона Yb с гомогенной переменной валентностью [17].

$\kappa_{ph}(T)$ для LuMgCu₄ имеет температурную зависимость, характерную для кристаллических тел, за исключением особенностей, наблюдающихся при $T > 100$ К.

Особый интерес представляет область низких температур (5–20 К).

1) Здесь фоновая теплопроводность YbMgCu₄ меньше по величине по сравнению с κ_{ph} LuMgCu₄. Подобный эффект для $\kappa_{ph}(T)$ был обнаружен для области низких температур в [29] для CeAuAl₃ и LaAuAl₃. Уменьшение κ_{ph} CeAuAl₃ по сравнению с LaAuAl₃ объяснялось

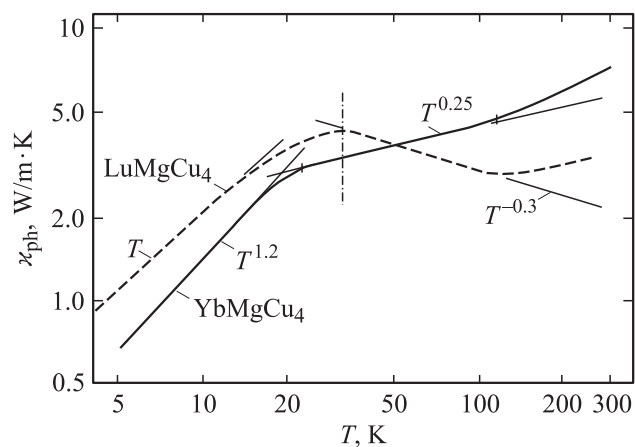


Рис. 4. Температурные зависимости κ_{ph} для LuMgCu₄ и YbMgCu₄ [17].

в этой работе рассеянием фононов на флуктуациях магнитного момента $4f$ -электронов Ce. Подобное объяснение можно, вероятно, дать и для обнаруженного нами эффекта уменьшения κ_{ph} в $YbMgCu_4$, где также может происходить рассеяние фононов на флуктуациях магнитного момента $4f$ -электронов Yb. Ионы La и Lu, как известно, не являются магнитными ионами.

2) В этой области температур $\kappa_{ph} \sim T$ как для $LuMgCu_4$, так и для $YbMgCu_4$. Физическая природа такой температурной зависимости была подробно рассмотрена нами выше для $LuMgCu_4$. Возможно, и для $YbMgCu_4$ она имеет такое же объяснение.

На рис. 5 приведены данные для $C_p(T)$, полученные для $LuMgCu_4$, а на рис. 6 проведено сравнение их с $C_p(T)$ для $YbMgCu_4$ [18].

Из рис. 6 видно, что теплоемкость $LuMgCu_4$ по своей величине оказалась меньше $C_p(T)$ $YbMgCu_4$ во всем исследованном интервале температур (80–300 К). Это происходит из-за наличия в $YbMgCu_4$ дополнительной магнитной составляющей теплоемкости. Такая же картина наблюдалась нами ранее при исследовании теплоемкости $YbZnCu_4$ и $LuZnCu_4$ [30].

В заключение можно сделать следующие выводы.

1) В интервале 5–300 К измерены теплопроводность, удельное электросопротивление, а при 80–300 К — теплоемкость при постоянном давлении металлического

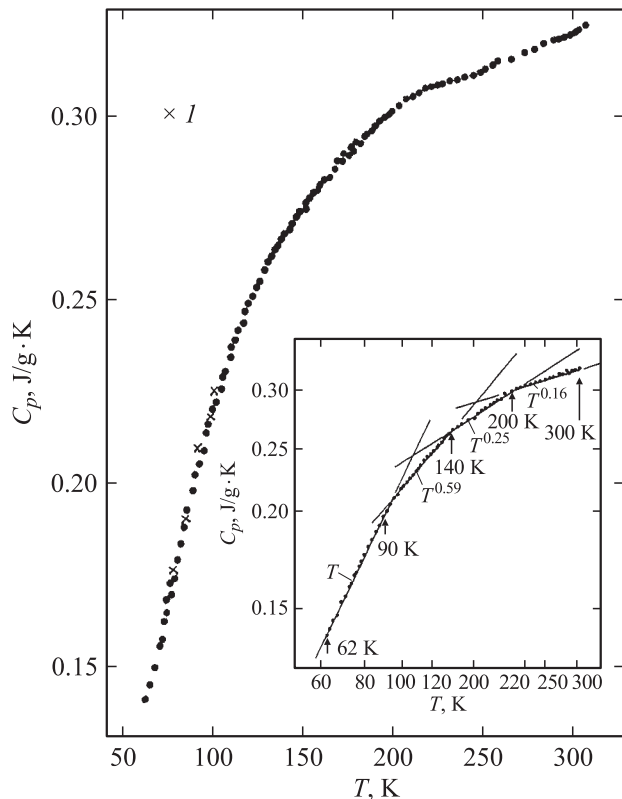


Рис. 5. Температурная зависимость C_p для $LuMgCu_4$. I — значения, полученные при измерении обратного хода $C_p(T)$. На вставке — зависимость $C_p(T)$ для $LuMgCu_4$, представленная в логарифмическом масштабе.

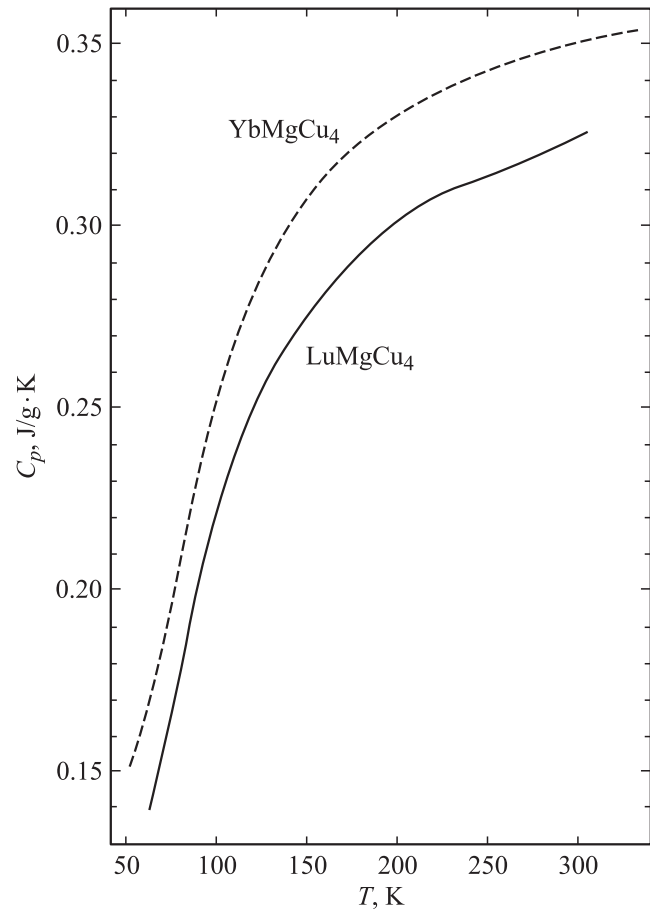


Рис. 6. Температурные зависимости C_p для $LuMgCu_4$ и $YbMgCu_4$ [18].

немагнитного соединения $LuMgCu_4$. Измерения проводились на поликристаллическом образце.

2) Из сравнения величин теплопроводностей и теплоемкостей $LuMgCu_4$ и „легкого“ тяжелофермионного соединения $YbMgCu_4$ [17,18] сделаны следующие заключения: а) в области низких температур (5–20 К) $\kappa_{ph}(T)$ $YbMgCu_4$ оказалась меньше по величине, чем $\kappa_{ph}(T)$ $LuMgCu_4$, из-за рассеяния фононов на флуктуациях магнитных моментов $4f$ -электронов Yb; б) в области температур 80–300 К $C_p(T)$ $YbMgCu_4$ [18] оказалась больше по величине, чем $C_p(T)$ $LuMgCu_4$, из-за наличия в $YbMgCu_4$ дополнительной магнитной составляющей теплоемкости.

Авторы выражают благодарность Н.Ф. Картенко и Н.В. Шаренковой за проведение рентгеноструктурного анализа образцов $LuMgCu_4$.

Список литературы

- [1] J.L. Sarrao, C.D. Immer, Z. Fisk, C.H. Booth, E. Figueroa, J.M. Lawrence, R. Modler, A.L. Cornelius, M.F. Hundley, J.H. Kwei, J.D. Thompson, F. Bridges. Phys. Rev. B **59**, 6855 (1999).

- [2] I. Felner, I. Nowik, D. Vaknin, U. Potzel, J. Moezer, G.M. Kalvius, D. Wartmann, G. Schmiester, G. Hickscher, E. Gtatz, C.C. Schmiester, N. Pilmayr, K.G. Prasad, H. de Waard, H. Pinto. *Phys. Rev. B* **35**, 6956 (1987).
- [3] H. Müller, E. Bauer, E. Gratz, K. Yoshimura, T. Nitta, M. Mekata. *J. Magn. Magn. Mater.* **76–77**, 159 (1988).
- [4] H. Nakamura, K. Ito, M. Shiga. *J. Phys.: Cond. Matter* **6**, 9201 (1994).
- [5] N. Pillmayr, E. Bauer, K. Yoshimura. *J. Magn. Magn. Mater.* **104–107**, 639 (1992).
- [6] E. Bauer, R. Hauzer, E. Gratz, K. Pauer, G. Oomi, T. Kagayama. *Phys. Rev. B* **48**, 15 873 (1993).
- [7] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **42**, 1938 (2000).
- [8] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **42**, 1357 (2000).
- [9] E. Fugiera, J.M. Lawrence, J.L. Sarrao, Z. Fisk, M.F. Hundley, J.D. Thompson. *Solid State Commun.* **106**, 347 (1998).
- [10] M.J. Besnus, P. Haen, N. Hamdaoui, A. Herr, A. Meyer. *Physica B* **163**, 571 (1990).
- [11] А.В. Гольцев, А.В. Голубков, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, Cz. Shulkovski. *ФТТ* **48**, 583 (2006).
- [12] А.В. Голубков, А.В. Гольцев, Н.Ф. Картенко, И.А. Смирнов, Cz. Shulkovski, Н. Мисиорек. *ФТТ* **49**, 1159 (2007).
- [13] K. Takegahara, T. Kasuya. *J. Phys. Soc. Jap.* **59**, 3299 (1990).
- [14] V.N. Antonov, M. Galli, F. Marabelli, A.N. Yeresko, A.Ya. Perlov, E. Bauer. *Phys. Rev. B* **62**, 1742 (2000).
- [15] A. Continenza, P. Monachesi. *J. Appl. Phys.* **79**, 6423 (1996).
- [16] P. Monachesi, A. Continenza. *Phys. Rev. B* **54**, 13 558 (1996).
- [17] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, J. Mucha, A. Jezowski. *ФТТ* **49**, 1945 (2007).
- [18] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, D. Wlosewicz, Н. Мисиорек, J. Mucha, A. Jezowski, A.I. Krivchikov, G.A. Zvyagina, I.B. Bilich. *ФТТ* **49**, 1949 (2007).
- [19] А.В. Голубков, Т.Б. Жукова, В.М. Сергеева. *Изв. АН СССР. Неорган. материалы* **2**, 77 (1966).
- [20] A. Jezowski, J. Mucha, G. Pompe. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **20**, 1500 (1987).
- [21] D. Wlosewicz, T. Plackwcki, K. Rogacki. *Cryogenics* **32**, 265 (1992).
- [22] И.А. Смирнов, В.И. Тамарченко. *Электронная теплопроводность в металлах и полупроводниках*. Наука, Л. (1977). 151 с.
- [23] В.С. Оскотский, И.А. Смирнов. *Дефекты в кристаллах и теплопроводность*. Наука, Л. (1972). 159 с.
- [24] J.E. Zimmerman. *J. Phys. Chem. Sol.* **11**, 299 (1959).
- [25] H.R. Ott, O. Marti, P. Hulliger. *Solid State Commun.* **75**, 1129 (1984).
- [26] W. Franz, A. Griessel, F. Steglich, D. Wohlleben. *Z. Phys. B* **31**, 7 (1978).
- [27] D. Kaczorowski, R. Troc, A. Czopnik, A. Jezowski, Z. Henkie, V.I. Zeremba. *Phys. Rev. B* **63**, 144 401 (2001).
- [28] Н.В. Коломеец. *ФТТ* **8**, 997 (1966).
- [29] Y.Aoki, M.A. Chernikov, H.R. Ott, H. Sugawara, H. Sato. *Phys. Rev. B* **62**, 87 (2000).
- [30] А.В. Голубков, И.А. Смирнов, D. Wlosewicz, Н. Мисиорек, A.I. Krivchikov. *ФТТ* **49**, 1164 (2007).