

Теплоемкость и скорость звука „легкой“ тяжелофермионной системы YbMgCu_4

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

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

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

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

(Поступила в Редакцию 12 апреля 2007 г.)

В интервале температур 3.0–320 К измерена теплоемкость при постоянном давлении (C_p), а при 77 К — скорость звука (v) у „легкого“ тяжелофермионного соединения YbMgCu_4 . С помощью полученных экспериментальных данных для C_p , v и измеренной нами ранее в интервале 5–300 К фоновой теплопроводности YbMgCu_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 проводилась в рамках двустороннего научного соглашения между Польской и Российской академиями наук.

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

1. Постановка задачи исследования

При исследовании нами фоновой (решеточной) теплопроводности (κ_{ph}) кристаллических соединений YbMgCu_4 , $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$ (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], YbZnCu_4 [7] и YbMgCu_4 [8], в которых в качестве одной из компонент материала был редкоземельный ион Yb с переменной гомогенной валентностью (ПВ) (в англоязычной литературе такие материалы называют mixed-valence compounds или intermediate valence compounds), был 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 кристаллических твердых тел, а наоборот возрастала по закону $\kappa_{\text{ph}} \sim T^n$ (где величина n изменялась 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 $x > 0.16$) [9] и UCu_5In [10], в состав которых также входили ионы с ПВ: Sm и U. Все рассмотренные выше материалы относились к классу тяжелофермионных соединений (ТФС): „легких“ и „умеренных“, у которых параметр γ — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости — равен соответственно 40–60 и 100–400 мДж/моль · К². Параметр γ пропорционален эффективной массе носителей тока в материале.

В [1–8] нами было высказано предположение, что за „аморфноподобное“ поведение $\kappa_{\text{ph}}(T)$ рассмотренных

в этих работах соединений ответственны входящие в них ионы с ПВ.

Одним из основных параметров, необходимых для проведения теоретических расчетов с целью выяснения причины нестандартного для кристаллических тел поведения $\kappa_{\text{ph}}(T)$ в рассмотренных выше соединениях, является длина свободного пробега фононов в них $l(T)$. В аморфных материалах (например, в стеклах) в области температур $T > 50$ –100 К $l(T)$ стремится к постоянной величине, сравнимой с размерами разупорядоченных областей в структуре стекла [11,12]. В [13] мы определили величину и температурную зависимость l для YbZnCu_4 — „умеренного“ ТФС. Оказалось, что $l(T)$ для него в интервале ~ 80 –250 К слабо зависит от температуры и близка к зависимости длины свободного пробега фононов, характерной для аморфных тел. Было интересно исследовать, является ли такая зависимость $l(T)$, полученная для YbZnCu_4 , характерной лишь для одного из приведенных выше „легких“ и „умеренных“ ТФС или она типична для большего круга рассмотренных соединений YbMgCu_4 . Проведение таких исследований явилось первой, главной целью настоящей работы.

В качестве объекта исследования был выбран образец YbMgCu_4 с параметром элементарной ячейки $a = 7.161 \text{ \AA}$, который располагается по составу в области гомогенности YbMgCu_4 [8,14]. Для этого образца ранее мы измерили в интервале 5–300 К коэффициент термоэдс [14], теплопроводность и коэффициент удельного электросопротивления [8]. В [8,14] описана также методика приготовления образца YbMgCu_4 .

YbMgCu_4 относится к группе „легких“ ТФС. Стехиометрический YbMgCu_4 , согласно [15–18], имеет величину $\gamma = 53\text{--}62 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$; его температура Кондо, определенная из измерений магнитной восприимчивости, варьируется в пределах 500–855 К, валентность иона Yb изменяется от 2.63–2.65 при 4 К до 2.69–2.70 при 300 К, а параметр элементарной ячейки составляет 7.194 Å. YbMgCu_4 является металлом.

Известно, что температура Кондо исследованного образца YbMgCu_4 равна $\sim 178 \text{ К}$ и что он относится к семейству ТФС [14]. Величина параметра γ для него не определялась.

Длину свободного пробега $l(T)$ фононов в твердом теле можно рассчитать по формуле

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

C и \bar{v} — соответственно теплоемкость и средняя скорость звука, которая определяется из соотношения $\bar{v} = (v_l + 2v_t)/3$, где v_l и v_t — продольная и поперечная скорости звука.

Таким образом, для определения $l(T)$ в материале необходимо иметь экспериментальные данные для его $\kappa_{\text{ph}}(T)$, $C(T)$ и \bar{v} .

Экспериментальные значения $\kappa_{\text{ph}}(T)$ для образца YbMgCu_4 с $a = 7.161 \text{ Å}$ для интервала температур 5–300 К были получены нами в [8]. Данные о $C(T)$ и \bar{v} для YbMgCu_4 указанного выше состава в литературе отсутствовали.

В настоящей работе для данного соединения измерены теплоемкость при постоянном давлении (C_p) в интервале 3.0–320 К и скорость звука при 77 К.

Как отмечалось выше, для исследуемого образца отсутствовали сведения о величине γ . Мы попытались оценить ее из данных о $C_p(T)$. Это явилось второй задачей настоящей работы.

Измерение теплоемкости при постоянном давлении $C_p(T)$ проводилось в интервале 3.0–65 К в вакууме с помощью импульсного квазиadiaбатического метода [19], а при 80–250 К на автоматическом адиабатическом калориметре [20].

Для ультразвуковых измерений использовалась установка, представляющая собой компенсационную схему, работающую в импульсном режиме, что позволило надежно разделить различные звуковые моды [21].

2. Полученные результаты и их обсуждение

На рис. 1 и 2 приведены полученные экспериментальные результаты для теплоемкости при постоянном давлении $C_p(T)$ для исследованного образца YbMgCu_4 , а на рис. 3 эти же результаты представлены в логарифмическом масштабе. При низких температурах (3–7 К) $C_p \sim T^{1.3}$, в интервале 7–30 К наблюдается зависимость $C_p \sim T^{2.8}$ (рис. 3, *a*), а затем при 60–320 К происходит постепенный переход к классическому закону $C_p \sim \text{const}$ ($C_p \sim T^{0.13}$) (рис. 3, *b*).

При 77 К были измерены поперечная (v_t) и продольная (v_l) скорости звука в исследованном образце YbMgCu_4 . Они оказались равными (в см/с): $v_t = 2.16 \cdot 10^5$, $v_l = 3.95 \cdot 10^5$. Средняя величина \bar{v} , вхо-

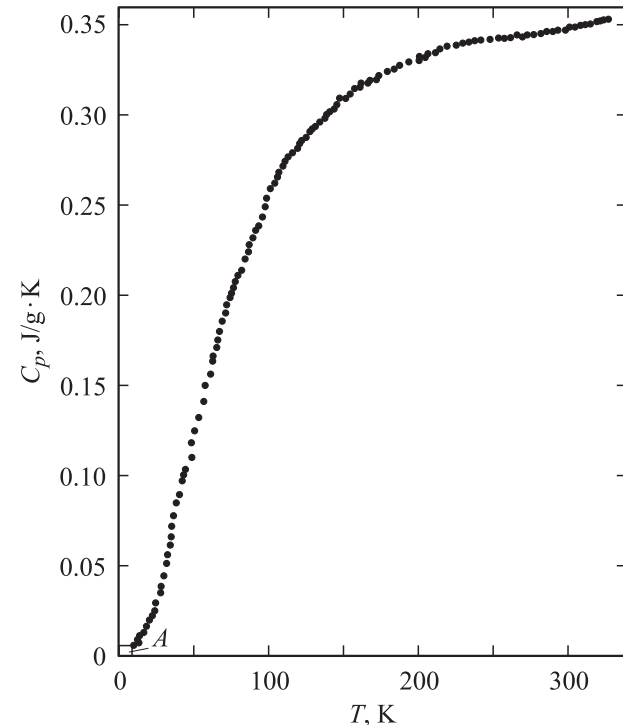


Рис. 1. Температурная зависимость C_p для исследованного образца YbMgCu_4 .

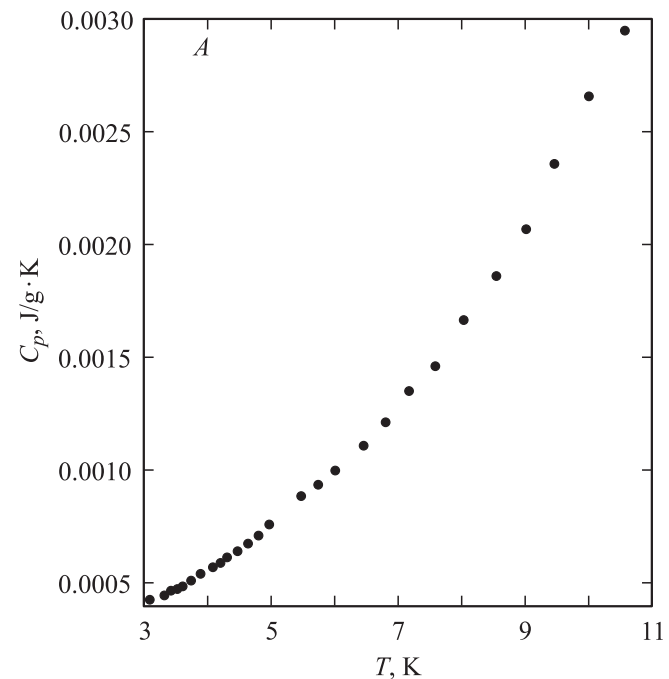


Рис. 2. Низкотемпературный участок зависимости $C_p(T)$ для YbMgCu_4 (участок А на рис. 1).

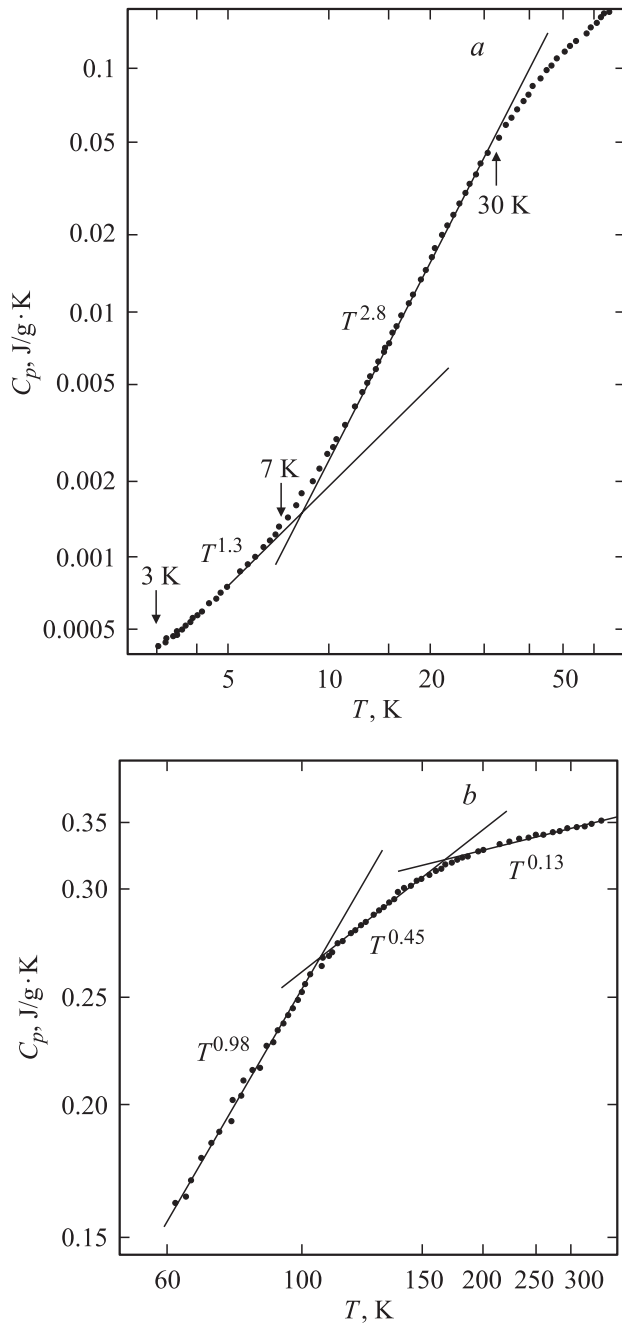


Рис. 3. Температурные зависимости C_p для YbMgCu₄, представленные в логарифмическом масштабе. *a* и *b* — соответственно для области низких и высоких температур.

дующая в формулу (1), составила $\sim 2.75 \cdot 10^5$ cm/s. Для сравнения поперечная и продольная скорости звука при 77 K для YbZnCu₄ [13] равны (в cm/s): $v_t = 2.2 \cdot 10^5$ и $v_l = 4.15 \cdot 10^5$.

На рис. 4 приведены полученные нами в [8] для этого же образца экспериментальные данные по зависимости $\kappa_{ph}(T)$. С помощью имеющихся данных по $C_p(T)$, \bar{v} и $\kappa_{ph}(T)$ с учетом рентгеновской плотности для исследованного образца (8.222 g/cm³) можно рассчитать по формуле (1) значения $l(T)$. Они приведены на рис. 5

(кривая 1). Там же для сравнения представлена зависимость $l(T)$ для YbZnCu₄ из работы [13].

Температурная зависимость $l(T)$ и ее величина для кристаллического YbMgCu₄ оказались очень похожими на таковые для кристаллических и аморфных материалов Se и SiO₂ [22]. Величина l на участке, где она близка к постоянному значению, составляет $\sim (3.5-3.9)$ постоянных решетки a (для YbZnCu₄ она была равна

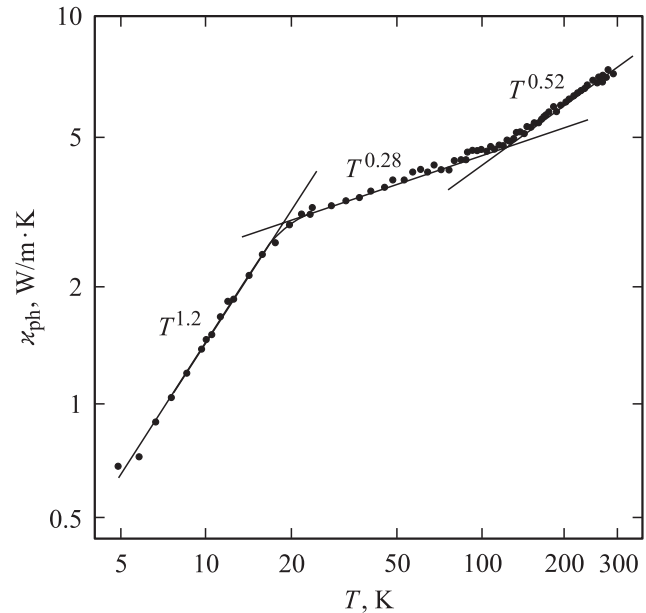


Рис. 4. Температурная зависимость κ_{ph} для YbMgCu₄ (по данным работы [8]).

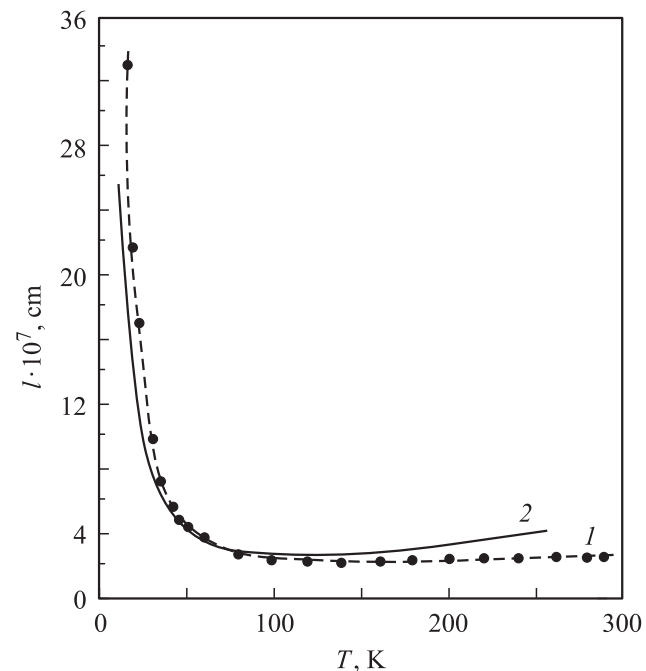


Рис. 5. Температурная зависимость длин свободного пробега фононов для исследованного нами образца YbMgCu₄ (1) и YbZnCu₄ [13] (2), рассчитанные по формуле (1).

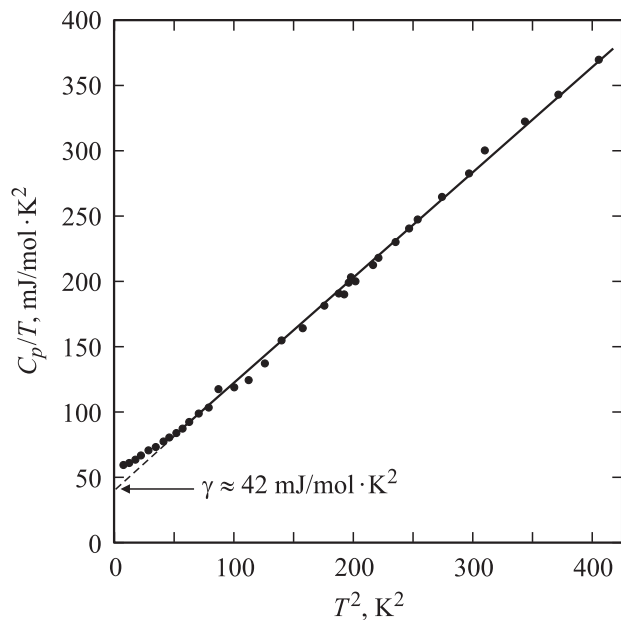


Рис. 6. Зависимость C_p/T от T^2 для исследованного образца YbMgCu_4 .

$\sim 3a$ [13]). Сравнение полученных результатов по $l(T)$ в YbMgCu_4 и в классических аморфных телах показывает, что в YbMgCu_4 имеется либо набор искаженных областей, либо набор „кластеров“ с размерами $\sim (3.5-3.9)a$, на которых происходит рассеяние фононов.

На рис. 6 в координатах $C_p(T) = f(T^2)$ представлены низкотемпературные данные для измеренного образца YbMgCu_4 . Из зависимости

$$C_p/T = \gamma + \beta T^2 \quad (2)$$

для этого образца определен параметр γ . Он составил $\sim 42 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$. Как отмечалось выше, величина γ для стехиометрического образца YbMgCu_4 равнялась $53-62 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ [15-18].

В заключение сделаем следующие выводы.

1) В интервале температур $3.5-320 \text{ K}$ измерена теплоемкость при постоянном давлении для образца „легкого“ ТФС YbMgCu_4 с $a = 7.161 \text{ \AA}$, расположенного в области гомогенности этого соединения.

2) При 77 K в нем измерена скорость звука. Для поперечной и продольной скоростей звука получены значения $2.16 \cdot 10^5$ и $3.95 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$.

3) С помощью полученных экспериментальных данных для теплоемкости, скорости звука и измеренной нами ранее фоновой теплопроводности для кристаллического YbMgCu_4 была рассчитана длина свободного пробега фононов. Вид полученной температурной зависимости длины свободного пробега характерен для классических аморфных материалов.

4) Из данных для $C_p(T)$ определен параметр γ — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости исследованного образца YbMgCu_4 .

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, H. Misiorek, J. Mucha, A. Jezowski. ФТТ **48**, 586 (2006).
- [7] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, H. Misiorek, J. Mucha, A. Jezowski. ФТТ **49**, 19 (2007).
- [8] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, H. Misiorek, J. Mucha, A. Jezowski. ФТТ **49**, 1945 (2007).
- [9] А.В. Голубков, А.В. Гольцев, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. ФТТ **42**, 986 (2000).
- [10] D. Kaczorowski, R. Troc, A. Czopnik, A. Jezowski, Z. Henkie, V.I. Zeremba. Phys. Rev. B **63**, 144401 (2001).
- [11] C. Kittel. Phys. Rev. **75**, 972 (1949).
- [12] В.С. Оскотский, И.А. Смирнов. Дефекты в кристаллах и теплопроводность. Наука, Л. (1972). 159 с.
- [13] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, D. Wlozewicz, H. Misiorek, J. Mucha, A. Jezowski, A.I. Krivchikov, G.A. Zvyagina. ФТТ **49**, 194 (2007).
- [14] А.В. Голубков, А.В. Гольцев, Н.Ф. Карченко, И.А. Смирнов, Cz. Sulkowski, H. Misiorek. ФТТ **49**, 1159 (2007).
- [15] E. Fugiera, J.M. Lawrence, J.L. Sarrao, Z. Fizek, M.F. Hundley, J.D. Thompson. Solid State Commun. **106**, 347 (1998).
- [16] J.L. Sarrao, C.D. Immer, Z. Fizek, 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).
- [17] J.M. Lawrence, P.S. Riseborough, C.H. Booth, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, R. Osborn. Phys. Rev. B **63**, 054427 (2001).
- [18] T. Kojima, M. Matsumoto, T. Tanaka, H. Ishida, T. Mito, S. Wada, J.L. Sarrao. Phys. Rev. B **66**, 014420 (2002).
- [19] A.I. Krivchikov, B.Ya. Gorodilov, A. Czopnik. Proc. Conf. Low temperature thermometry and dynamic temperature measurement. IL Tand SR, Wroclaw (1977). P. V7.
- [20] D. Wlozewicz, T. Plackowski, K. Rogacki. Cryogenics **32**, 265 (1992).
- [21] Е.А. Масалитин, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Желобенко, Т.В. Игнатова. ФНТ **29**, 93 (2003).
- [22] R.C. Zeller, R.O. Pohl. Phys. Rev. B **4**, 2029 (1971).