

# Теплоемкость и скорость звука „легкой“ тяжелофермионной системы $\text{YbMgCu}_4$

© 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  $\text{YbMgCu}_4$ . С помощью полученных экспериментальных данных для  $C_p$ ,  $v$  и измеренной нами ранее в интервале 5–300 К фоновой теплопроводности  $\text{YbMgCu}_4$  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 ( $\kappa_{\text{ph}}$ ) кристаллических соединений  $\text{YbMgCu}_4$ ,  $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$  (в области гомогенности  $\text{YbInCu}_4$ ) [1–3],  $\text{YbAgCu}_4$  [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],  $\text{YbZnCu}_4$  [7] и  $\text{YbMgCu}_4$  [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  $\text{UCu}_5\text{In}$  [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  $\gamma$  — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости — равен соответственно 40–60 и 100–400 мДж/моль · К<sup>2</sup>. Параметр  $\gamma$  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  $\text{YbZnCu}_4$  — „умеренного“ ТФС. Оказалось, что  $l(T)$  для него в интервале  $\sim 80$ –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  $\text{YbZnCu}_4$ , характерной лишь для одного из приведенных выше „легких“ и „умеренных“ ТФС или она типична для большого круга рассмотренных соединений  $\text{YbMgCu}_4$ . Проведение таких исследований явилось первой, главной целью настоящей работы.

В качестве объекта исследования был выбран образец  $\text{YbMgCu}_4$  с параметром элементарной ячейки  $a = 7.161 \text{ \AA}$ , который располагается по составу в области гомогенности  $\text{YbMgCu}_4$  [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  $\text{YbMgCu}_4$ .

$\text{YbMgCu}_4$  относится к группе „легких“ ТФС. Стехиометрический  $\text{YbMgCu}_4$ , 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.  $\text{YbMgCu}_4$  является металлом.

Известно, что температура Кондо исследованного образца  $\text{YbMgCu}_4$  равна  $\sim 178 \text{ К}$  и что он относится к семейству ТФС [14]. Величина параметра  $\gamma$  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  $\text{YbMgCu}_4$  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  $\text{YbMgCu}_4$  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  $\gamma$ . 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  $\text{YbMgCu}_4$ , 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  $\text{YbMgCu}_4$ . 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-

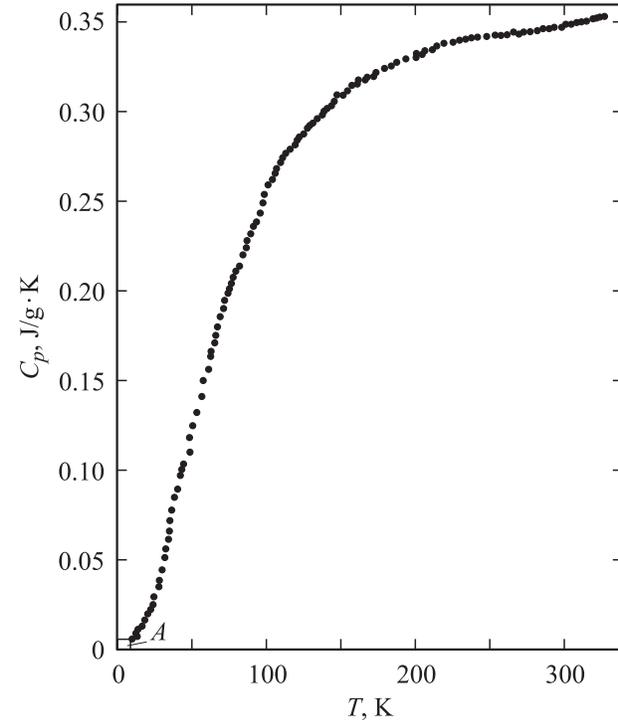


Рис. 1. Температурная зависимость  $C_p$  для исследованного образца  $\text{YbMgCu}_4$ .

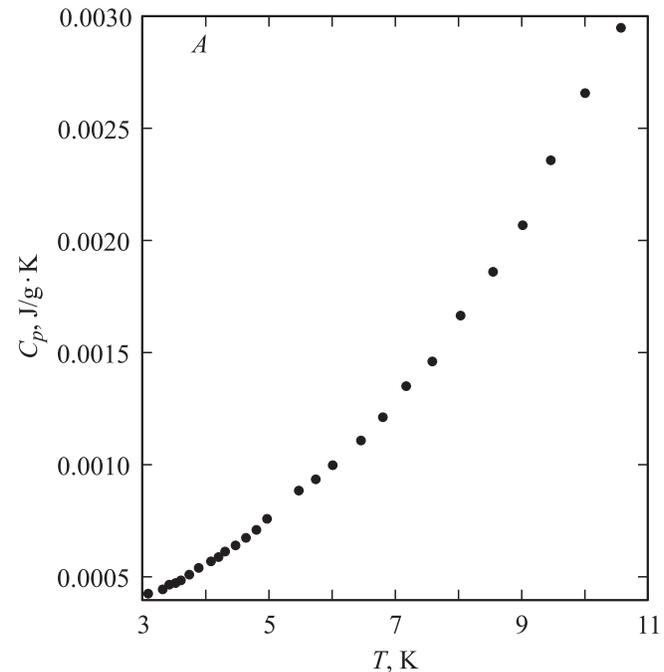
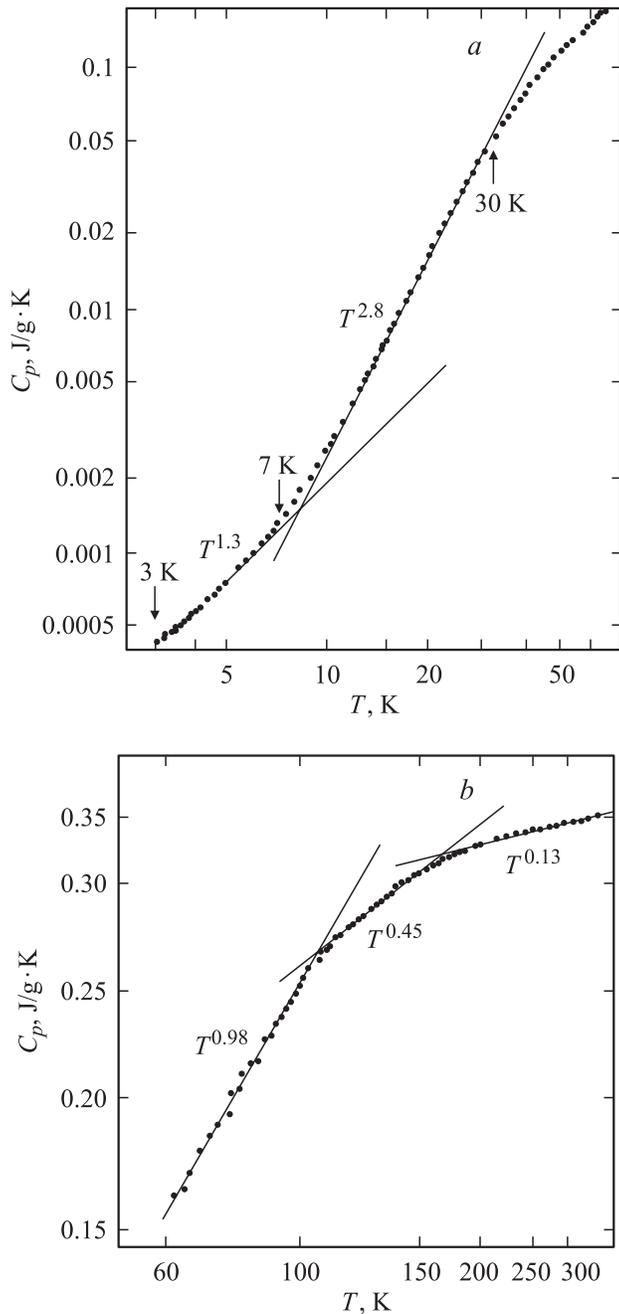


Рис. 2. Низкотемпературный участок зависимости  $C_p(T)$  для  $\text{YbMgCu}_4$  (участок А на рис. 1).



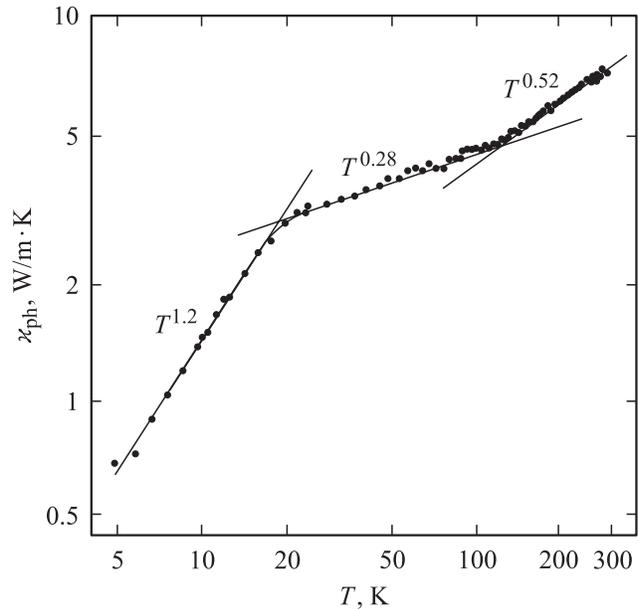
**Рис. 3.** Температурные зависимости  $C_p$  для YbMgCu<sub>4</sub>, представленные в логарифмическом масштабе. *a* и *b* — соответственно для области низких и высоких температур.

дующая в формулу (1), составила  $\sim 2.75 \cdot 10^5$  cm/s. Для сравнения поперечная и продольная скорости звука при 77 K для YbZnCu<sub>4</sub> [13] равны (в cm/s):  $v_t = 2.2 \cdot 10^5$  и  $v_l = 4.15 \cdot 10^5$ .

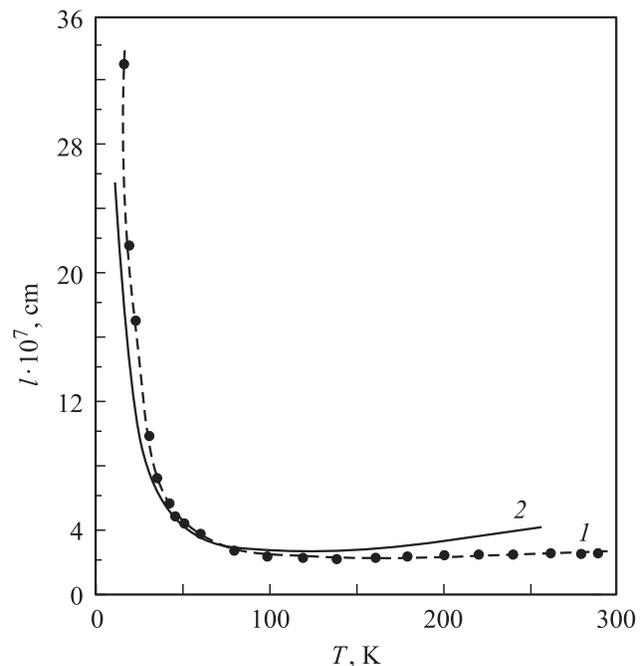
На рис. 4 приведены полученные нами в [8] для этого же образца экспериментальные данные по зависимости  $\kappa_{ph}(T)$ . С помощью имеющихся данных по  $C_p(T)$ ,  $\bar{v}$  и  $\kappa_{ph}(T)$  с учетом рентгеновской плотности для исследованного образца (8.222 g/cm<sup>3</sup>) можно рассчитать по формуле (1) значения  $l(T)$ . Они приведены на рис. 5

(кривая 1). Там же для сравнения представлена зависимость  $l(T)$  для YbZnCu<sub>4</sub> из работы [13].

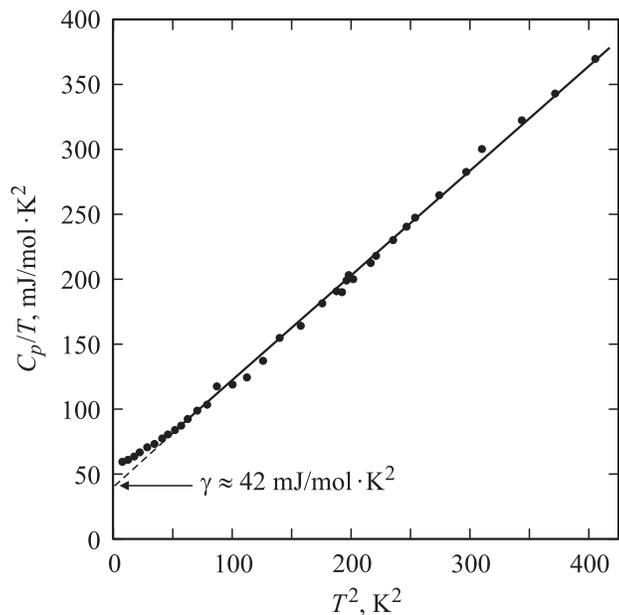
Температурная зависимость  $l(T)$  и ее величина для кристаллического YbMgCu<sub>4</sub> оказались очень похожими на таковые для кристаллических и аморфных материалов Se и SiO<sub>2</sub> [22]. Величина  $l$  на участке, где она близка к постоянному значению, составляет  $\sim (3.5-3.9)$  постоянных решетки  $a$  (для YbZnCu<sub>4</sub> она была равна



**Рис. 4.** Температурная зависимость  $\kappa_{ph}$  для YbMgCu<sub>4</sub> (по данным работы [8]).



**Рис. 5.** Температурная зависимость длин свободного пробега фононов для исследованного нами образца YbMgCu<sub>4</sub> (1) и YbZnCu<sub>4</sub> [13] (2), рассчитанные по формуле (1).



**Рис. 6.** Зависимость  $C_p/T$  от  $T^2$  для исследованного образца  $\text{YbMgCu}_4$ .

$\sim 3a$  [13]). Сравнение полученных результатов по  $l(T)$  в  $\text{YbMgCu}_4$  и в классических аморфных телах показывает, что в  $\text{YbMgCu}_4$  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  $\text{YbMgCu}_4$ . Из зависимости

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

для этого образца определен параметр  $\gamma$ . Он составил  $\sim 42 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ . Как отмечалось выше, величина  $\gamma$  для стехиометрического образца  $\text{YbMgCu}_4$  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  $\text{YbMgCu}_4$  с  $a = 7.161 \text{ \AA}$ , расположенного в области гомогенности этого соединения.

2) При  $77 \text{ K}$  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  $\text{YbMgCu}_4$  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  $\gamma$  — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости исследованного образца  $\text{YbMgCu}_4$ .

## 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. Wlosecicz, 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. Картенко, 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. Wlosecicz, T. Plackwski, 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).