

Краткие сообщения

05

Температурно-концентрационные зависимости удельного электросопротивления сплавов плутония с америцием при высоких температурах

© Ю.Ю. Циовкин,¹ А.А. Повзнер,¹ Л.Ю. Циовкина,¹ Л.Р. Кабирова,¹ А.Р. Дьяченко,¹ В.Б. Быструшкин,¹ М.В. Рябухина,¹ В.В. Дрёмов²

¹ Уральский государственный технический университет им. Б.Н. Ельцина, 620002 Екатеринбург, Россия

² Российский федеральный ядерный центр — Всероссийский научно-исследовательский институт теоретической физики им. акад. Е.И. Забабахина, Снежинск, Челябинская область, Россия
e-mail: y.tsiovkin@mail.ustu.ru

(Поступило в Редакцию 31 марта 2010 г.)

В рамках сформулированной многополосной модели проводимости качественно и количественно показано, что основной причиной отрицательного температурного коэффициента электросопротивления в сплавах актинидов при высоких температурах ($T > \Theta_D$) может являться интерференционный механизм рассеяния электронов проводимости, а характер температурной зависимости удельного электросопротивления таких сплавов полностью определяется балансом между когерентными и некогерентными вкладами в электрон-примесь-фононное рассеяние. Полученная модель использована для анализа концентрационной и температурной зависимостей удельного электросопротивления сплавов плутония и америция.

Природа высокорезистивного состояния, причины аномалий температурных и концентрационных зависимостей удельного электросопротивления (ЭС) и отрицательного температурного коэффициента электросопротивления (ТКС) разбавленных и концентрированных сплавов с участием нептуния, америция и плутония, на протяжении многих лет являются предметом непрекращающихся дискуссий и интенсивных исследований [1]. Только в последние годы, в рамках двухполосной модели проводимости Мотта [2] с учетом интерференционных механизмов рассеяния впервые удалось получить внутренне непротиворечивое объяснение аномальной температурной зависимости ЭС, наблюдаемой в некоторых разбавленных сплавах Pu (δ -Pu) в области как низких, так и высоких температур [3,4]. Но в силу сделанных приближений прямое использование модели [3,4] для анализа температурной зависимости ЭС концентрированных сплавов актинидов невозможно, так как первопринципные расчеты, выполненные для актинидов середины ряда показывают, что значение плотности электронных состояний (ПС) d - и f -электронов на уровне Ферми сопоставимы по величине [4–6] и обе частично заполненные полосы в этих металлах могут являться эффективными ловушками для электронов проводимости. Поэтому развитый в работах [3,4] модельный подход требует последовательного обобщения на случай многополосных переходов электронов проводимости.

Рассмотрим систему s - (p -) d - и f -электронов, совершающих внутри- и межполосные переходы в результате их рассеяния на хаотически распределенных по узлам

кристаллической решетки электрических полях ионов сплава, совершающих тепловые колебания относительно положения равновесия. Для двойного непрерывного твердого металлического раствора гамильтониан рассматриваемой системы $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$ может быть представлен в виде

$$\hat{H} = \sum_l E_l a_l^\dagger a_l + \frac{1}{N} \sum_{\alpha, n, l, l'} e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}', r_n)} [v(n)\mu_{ll'} + a_\alpha(n)\hat{\eta}_{ll'}^\alpha(n)] c_l + c_{l'}. \quad (1)$$

Первое слагаемое в (1) — оператор кинетической энергии электрона с квантовым числом $l = \{\mathbf{k}, j\}$, включающим волновой вектор \mathbf{k} и индекс полосы j ($j = s(p), d, f$). Множитель $a_\alpha(n)$ принимает значения „1“, если узел с номером n занят атомом сорта α ($\alpha = A, B$) и „0“ в другом случае и описывает хаотическое распределение ионов сплава по узлам кристаллической решетки. Множитель

$$v(n) = \alpha_A(n)c_B - \alpha_B(n)c_A$$

хаотически распределяет ионы компонент сплава по узлам кристаллической решетки, а

$$\mu_{ll'} = V_{ll'}^A - V_{ll'}^B$$

и $\hat{\eta}_{ll'}^\alpha$ — характеризуют интенсивности электрон-примесного [4,7] и электрон-фононного рассеяния соот-

ветственно, причем

$$\hat{\eta}_{ll'}^\alpha(n) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}} [\gamma_{ql'}^\alpha(n) b_{\mathbf{q}} + \text{к.с.}];$$

$$\gamma_{ql'}^\alpha(n) = -i \left(\frac{\hbar}{2M_\alpha S_\alpha} \right)^{1/2} \left(\frac{\mathbf{k} - \mathbf{k}', \mathbf{e}_{\mathbf{q}}}{\sqrt{q}} \right) e^{i(\mathbf{q}n)} \Lambda_{ll'}^\alpha, \quad (2)$$

где $\mathbf{e}_{\mathbf{q}}$ — вектор поляризации, M_α и S_α — масса иона и скорость звука в α -компоненте, а $\Lambda_{ll'}^\alpha$ — константа Блоха.

Систему уравнений многополосного приближения когерентного потенциала (ПКП) рассматриваемой задачи получим из требования строгой диагональности оператора сдвига и уширения одноэлектронных уровней в представлении оператора \hat{H}_0 . В одноэлектронном и одноузельном приближениях при учете $|V_{jj'} F_s| \ll 1$ и $|V_{jj'} F_s| \ll 1$ получим

$$\Delta_s = \sum_{\alpha} \sum_{j=(d,f) \neq j'} c_{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} d\eta \frac{P_{\alpha}(\eta)}{A_{\alpha}(\eta)} \{U_{\alpha,j}^2(\eta) F_j \times [1 - U_{\alpha,j'}(\eta) F_{j'}] + W_{\alpha}(\eta) F_j F_{j'}\}, \quad (3)$$

$$\Delta_d = \sum_{\alpha} c_{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} d\eta \frac{P_{\alpha}(\eta)}{A_{\alpha}(\eta)} \{U_{\alpha,d}^2(\eta) F_d \times [1 - U_{\alpha,f}(\eta) F_f] + U_{\alpha,d}^2(\eta) F_f [1 + U_{\alpha,d}(\eta) F_d]\}. \quad (4)$$

Уравнения для когерентного потенциала f -электронов получаются из (4) заменой индексов $d \leftrightarrow f$.

$$W_{\alpha}(\eta) = U_{\alpha,sd}(\eta) U_{\alpha,sf}(\eta) U_{\alpha,df}(\eta),$$

$$A_{\alpha}(\eta) = [1 - U_{\alpha,d}(\eta) F_d][1 - U_{\alpha,f}(\eta) F_f] - U_{\alpha,df}^2(\eta) F_d F_f,$$

$$U_{n \in A(B), jj'}(\eta) = c_{B(A)} \mu_{jj'} + Z_{A(B)jj'} \eta,$$

$$Z_{\alpha, jj'} = \frac{\Lambda_{\alpha, jj'}}{\sqrt{2M_{\alpha} S_{\alpha}}}.$$

Усреднение по фоновым переменным заменено интегрированием с функцией распределения Гаусса:

$$P_n(\eta) = 1/\sqrt{2\beta_n} e^{-\eta^2/2\beta_n}$$

при

$$\beta_n = \frac{Z_{\alpha, jj'} 6T}{\theta_D^{\alpha}},$$

где θ_D^{α} — температура Дебая α -й компоненты сплава [8]. Повторяющиеся индексы кратности опущены ($U_{jj} = U_j$).

Так как при высоких температурах главные вклады в ЭС пропорциональны T/θ_D , в разложении (3) ограничимся учетом слагаемых второго и третьего порядка по взаимодействию, содержащими соответствующие

вклады:

$$\begin{aligned} \rho^{(2+3)}(T) \propto \sum_j g_j(E_F) \left\{ \left[c_A Z_{A,sj}^2 \frac{T}{\theta_A} + c_B Z_{B,sj}^2 \frac{T}{\theta_B} \right] \right. \\ + 4c_A c_B \mu_{sj} \left[Z_{A,j} Z_{A,sj} \frac{T}{\theta_A} - Z_{B,j} Z_{B,sj} \frac{T}{\theta_B} \right] \text{Re} F_j \\ + 2c_A c_B \mu_{jj} \left[Z_{A,sj}^2 \frac{T}{\theta_A} + Z_{B,sj}^2 \frac{T}{\theta_B} \right] \text{Re} F_j \\ \left. + 2c_A c_B \sum_{j' \neq j} \mu_{sj'} \left[Z_{A,jj'} Z_{A,j'j} \frac{T}{\theta_A} - Z_{B,jj'} Z_{B,j'j} \frac{T}{\theta_B} \right] \text{Re} F_{j'} \right\}, \quad (5) \end{aligned}$$

где $g_j(E_F)$ и $\text{Re} F_{j'}$ — плотность состояний и реальная часть функции Грина j -электронов на уровне Ферми соответственно ($j = d, f$). Первая группа слагаемых в (5) — обычный результат теории возмущений, соответствующий когерентным процессам рассеяния. Вторая и третья группы слагаемых в (5) содержат некогерентные вклады от последовательных процессов рассеяния и пропорциональны реальной части функции Грина на уровне Ферми ($\text{Re} F_j(E_F)$) принимающей полосы. Четвертая группа — некогерентные вклады, пропорциональные реальной части функции Грина полосы, через которую электрон приходит в принимающую полосу.

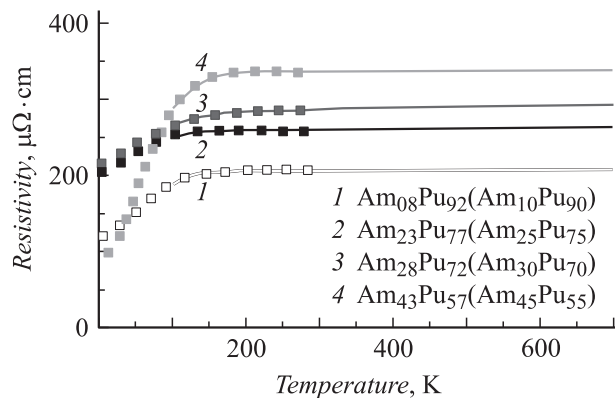
Очевидно, что характер температурной зависимости ЭС сплавов полностью определяется балансом между когерентными и некогерентными вкладами в рассеяние. Действительно, если грубо принять равными значения интенсивности внутри- и межполосного примесного и электрон-фононного взаимодействий, положить $\text{Re} F_d \approx \text{Re} F_f$, $g_d(E_F) F_d \approx g_f(E_F)$, то критерий отрицательного ТКС примет особо простой вид

$$c_A c_B \frac{\mu(Z_A^2 T/\theta_A - Z_B^2 T/\theta_B) \text{Re} F_j}{c_A Z_A^2 T/\theta_A + c_B Z_B^2 T/\theta_A} > -\frac{1}{10}. \quad (6)$$

Как следует из (6), знак ТКС зависит не только от интенсивности взаимодействия, но и знака и значения реальной части функции Грина принимающей и промежуточной полос на уровне химического потенциала, а отрицательный ТКС следует ожидать в системах с сильным взаимодействием и высокими значениями электро-сопротивления, что хорошо согласуется с эмпирическим правилом Муиджи.

Вычисления температурно-концентрационных зависимостей ЭС сплавов Am—Pu выполнены в относительных единицах с использованием LSDA + U + SO ПС fcc-америдия и плутония и формулы Кубо для диагональной компоненты тензора проводимости. Исходная ПС и уровень Ферми сплавов определялись из условия сохранения числа d - и f -электронов [4,7]. Параметр электрон-примесного рассеяния $\mu_{ff} = -2.6 \text{ eV}$ определен из расчетов [7], $\Lambda_{jj'} = 0.8 E_F$ [9].

Решение уравнений (3)–(4) показывает, что сильное электрон-примесное и электрон-фононное взаимодействие приводят с ростом температуры к сглаживанию



Температурные зависимости удельного электросопротивления сплавов Am–Pu. Экспериментальные данные (точки) из работы [10]. Сплошные кривые — результат вычислений.

всех особенностей исходной ПС металлов и исчезновению псевдощели, разделяющей состояния $j = 5/2$ и $j = 7/2$ [4], а значительное размытие ПС фактически определяет температурную зависимость ЭС сплавов Am–Pu.

Использованный в расчетах сопротивления некоторых сплавов Am–Pu метод Кубо–Гринвуда позволяет лишь воспроизвести относительный ход температурной зависимости ЭС. Поэтому для сопоставления экспериментальных и расчетных данных последние были пересчитаны из относительных в абсолютные единицы (см. рисунок) для $\rho_{\text{exp}}(100 \text{ K})/\rho_{\text{cal}}(100 \text{ K}) = 1$.

В области температур 100–400 К в сплавах $\text{Am}_{10}\text{Pu}_{90}$, $\text{Am}_{25}\text{Pu}_{75}$, $\text{Am}_{30}\text{Pu}_{70}$ доминируют некогерентные процессы рассеяния, приводя к нулевому ТКС (причем при незначительном увеличении $\Lambda_{jj'} = 0.83E_F$ ТКС сплава становится отрицательным). Для $\text{Am}_{45}\text{Pu}_{55}$ ТКС является нулевым в более узком интервале температур (150–350 К) и несколько возрастает при более высоких температурах. Схожесть в поведении рассчитанных величин ТКС для различных сплавов в области температур 350–700 К является следствием общей для всех сплавов тенденции слабого подавления некогерентного рассеяния с ростом температуры и сильной деформации исходной ПС сплавов, сопровождающейся значительным уменьшением величины ПС на уровне химпотенциала. Выход кривой ЭС на насыщение с ростом температуры аналогичен наблюдаемому в некоторых высокорезистивных сплавах 4d-, 5d-металлов.

Отметим, что роль электрон-примесного рассеяния и связанного с ним электрон-примесь-фононного рассеяния в сплавах актинидов является определяющей. При этом аномально большие наблюдаемые значения ЭС сплавов при сохранении металлического типа проводимости, вероятно, являются следствием не только доминирования межполосных переходов подвижных s -(p -)электронов, но более существенной перенормировки их масс за счет сильной гибридизации s -(p -) и d -оболочек и сильного электрон-примесь-фононного взаимодействия.

Работа выполнена при содействии РФФИ, гранты N 09-02-00431-а, 10-02-00081-а и государственной программы НК 529П.

Список литературы

- [1] Boring A.M., Smith J.L. // Los Alamos Sci. 2000. Vol. 26. P. 90.
- [2] Mott N.F. // Adv. Phys. 1964. Vol. 13. P. 325.
- [3] Tsiovkin Yu.Yu., Tsiovkina L.Yu. // J. Phys.: Cond. Mat. 2007. Vol. 19. P. 056 207.
- [4] Tsiovkin Yu.Yu. et al. // Phys. Rev. B. 2007. Vol. 76. P. 075 119.
- [5] Shorikov A.O. et al. // Phys. Rev. B. 2005. Vol. 72. P. 024 458.
- [6] Moore K.T., van der Laan G. // Rev. Mod. Phys. 2009. Vol. 81. P. 235.
- [7] Tsiovkin Yu.Yu. et al. // Phys. Rev. B. 2009. Vol. 80. P. 155 137.
- [8] Chen A.B., Weisz G., Sher A. // Phys. Rev. B. 1972. Vol. 5. P. 2897.
- [9] Lashley J.C. et al. // Phys. Rev. Lett. 2003. Vol. 91. P. 205 901.
- [10] Baclet N. et al. // Phys. Rev. B. 2007. Vol. 75. P. 035 101.