

Thermal and transport properties of quasicrystals

Doctoral Thesis

Author(s):

Bianchi, Andrea Daniele

Publication date:

1999

Permanent link:

<https://doi.org/https://doi.org/10.3929/ethz-a-002092950>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

Diss. ETH No. 12915

Thermal and Transport Properties of Quasicrystals

*A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZURICH*

*for the degree of
Doctor of Natural Sciences*

presented by

ANDREA DANIELE BIANCHI

Dipl. Phys. ETH

born on the 11th August 1968

Citizen of Olten (SO)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. H. R. Ott, examiner

Prof. Dr. T. M. Rice, co-examiner

1999

Abstract

In this work three topics related with the low-temperature transport and thermal properties of icosahedral and decagonal quasicrystals are described.

In the first part, the thermal conductivity $\lambda(T)$ investigations on icosahedral Al-Mn-Pd and Al-Re-Pd performed in temperature ranges between 0.065 and 310 K are reported. We found that below 1 K, the lattice thermal conductivity $\lambda_{\text{ph}}(T)$ in both systems is compatible with the scattering of phonons by tunneling states and grain boundaries. The most prominent feature of $\lambda_{\text{ph}}(T)$ is its approximate temperature independence between 20 and 80 K, for which the concept of quasiperiodic Umklapp scattering seems to offer the most plausible explanation. Above 80 K, the low values of $\lambda_{\text{ph}}(T)$ imply a phonon mean free path that is of the order of the phonon wavelength, suggesting that the lattice modes of an icosahedral quasiperiodic lattice in the THz frequency range propagate diffusively.

We also found that for decagonal quasicrystals in the Al-Cu-Co and in the Al-Ni-Co systems the lattice contribution $\lambda_{\text{ph}}^{\text{p}}(T)$ to the thermal conductivity along the periodic direction shows a maximum at ~ 25 K and a sizable negative slope $d\lambda_{\text{ph}}^{\text{p}}/dT$ above this temperature, characteristic of periodic crystals. The phonon thermal conductivity $\lambda_{\text{ph}}^{\text{q}}(T)$ along a direction in the quasiperiodic plane is, as in the case of icosahedral quasicrystals, only weakly temperature dependent between 30 and 70 K, thus indicating the dominance of quasiperiodic Umklapp processes.

In the second part, we report on the calorimetric investigation of icosahedral Al-Re-Pd and on decagonal Al-Cu-Co and Al-Ni-Co. For icosahedral $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$, the specific heat $C_p(T)$ below 0.4 K increases with decreasing T and, at the lowest temperatures it

varies as T^{-2} indicative of the interaction of the quadrupolar moments of ^{185}Re and ^{187}Re nuclei with the gradient of the electric field induced by their neighbours. The linear contribution γT to $C_p(T)$ is approximately 1/10 of the electronic contribution γ_{el} of Aluminum and has to be partially attributed to excitations of tunneling states, as suggested by the $\lambda_{\text{ph}}(T)$ results, indicating a very low density of electronic states at the Fermi energy E_F . The cubic-in- T term to $C_p(T)$ of icosahedral $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$ is distinctly higher than the calculated value of the acoustic phonon contribution, indicating a large excess specific heat $C_{\text{ex}}(T)$.

For decagonal Al-Cu-Co and Al-Ni-Co, the coefficient $\gamma \approx 0.6 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ of the linear term in $C_p(T)$ indicates a low density of electronic states at E_F for both systems. For Al-Ni-Co the magnitude of the cubic-in- T term in the low temperature specific heat is in fair agreement with the acoustic contribution to $C_p(T)$ calculated from the results of low-temperature measurements of the elastic stiffness constants c_{ij} . Above 4 K, C_{ph}/T^3 in decagonal Al-Ni-Co increases approximately as T^2 . While this variation may be ascribed to the dispersion of acoustic excitations, the magnitude of the T^5 term in $C_{\text{ph}}(T)$ is a few times larger than the value calculated from phonon dispersion curves measured using inelastic neutron scattering experiments, again suggesting the presence of a large excess specific heat.

In the third part of this work, temperature and magnetic field dependences of the electrical conductivity $\sigma(T, H)$ of two samples of icosahedral Al-Re-Pd with chemical composition of $\text{Al}_{70}\text{Re}_{10}\text{Pd}_{20}$ and $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$ are described. For temperatures below 0.2 K, the temperature and magnetic field dependence of $\sigma(T, H)$ in $\text{Al}_{70}\text{Re}_{10}\text{Pd}_{20}$ with a value of the residual conductivity of $\sigma_0 = 30 \text{ } \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$, is compatible with quantum-interference effects including Coulomb interactions among itinerant electrons. The electrical conductivity of $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$, which has a residual conductivity value of $\sigma_0 = 1.7 \text{ } \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$, saturates below 0.1 K in all applied magnetic fields up to 40 kOe, suggesting that for this material an approach different from quantum interference effects needs to be considered to describe the electronic transport at the lowest temperatures.

Kurzfassung

In dieser Doktorarbeit werden drei Aspekte im Zusammenhang mit den thermischen sowie den Transporteigenschaften von ikosahedrischen und dekadagonalen Quasikristallen bei tiefen Temperaturen beleuchtet.

Im ersten Teil werden Wärmeleitfähigkeitsmessungen $\lambda(T)$ an ikosahedrischen Al-Mn-Pd und Al-Re-Pd Quasikristallen in verschiedenen Temperaturbereichen zwischen 0.065 und 310 K beschrieben. Unterhalb von 1 K ist der Wärmeleitfähigkeit der Phononen $\lambda_{\text{ph}}(T)$ in beiden Systemen begrenzt durch die Streuung der Phononen an Zwei-Niveau Systemen sowie an Korngrenzen. Das auffälligste Merkmal von $\lambda_{\text{ph}}(T)$ ist die schwache Temperaturabhängigkeit im Bereich von 20 bis 80 K welche wir quasiperiodische Umklapp Prozesse zuschreiben. Die tiefen Werte von $\lambda_{\text{ph}}(T)$ oberhalb von 80 K bedingen eine mittlere freie Weglänge der Phononen in der Größenordnung der Wellenlänge der Phononen. Dies weist darauf hin, dass der Wärmetransport von Gitterschwingungen im THz Bereich überwiegend diffusiv erfolgt.

Im weitem wurde beobachtet, dass der Gitteranteil die Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{\text{ph}}^{\text{p}}(T)$ von dekadagonalem Al-Cu-Co und Al-Ni-Co entlang der periodischen Achse in beiden Systemen ein Maximum bei ~ 25 K besitzt. Oberhalb dieser Temperatur beobachtet man eine negative Steigung $d\lambda_{\text{ph}}^{\text{p}}/dT$; ein Verhalten wie man es typischerweise von den periodischen Kristallen her kennt. Die Wärmeleitfähigkeit entlang einer Richtung in der quasiperiodischen Ebene $\lambda_{\text{ph}}^{\text{q}}(T)$ zeigt zwischen 30 und 70 K nur eine schwache Temperaturabhängigkeit. Solch ein Verhalten hat man auch in ikosahedrischen Quasikristallen beobachtet und es deutet auf eine bestimmende Rolle der quasiperiodischen Umklapp Prozesse hin.

Im zweiten Teil wird die kalorimetrische Untersuchung von ikosahedrischem Al-Re-Pd sowie von dekadonalem Al-Cu-Co und Al-Ni-Co beschrieben. Unterhalb von 0.4 K wird in $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$ mit sinkender Temperatur ein zu T^{-2} proportionaler Anstieg von $C_p(T)$ beobachtet, welcher auf eine Wechselwirkung zwischen dem nuklearen Quadrupolmoment der ^{185}Re und ^{187}Re Kerne und dem elektrischen Feldgradienten der Gitternachbarn hindeutet. Der lineare Beitrag γT zu $C_p(T)$ ist klein und ein Teil dieses Beitrages ist auf Zwei-Niveau Systeme zurückzuführen, deren Vorhandensein durch die $\lambda_{\text{ph}}(T)$ Daten angezeigt ist, was auf eine sehr kleine Zustandsdichte am Fermi-niveau schliessen lässt. Der zu T^3 proportionale Beitrag zu $C_p(T)$ von ikosahedrischem $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$ ist deutlich grösser als der Beitrag den man auf Grund der akustischen Phononen erwarten würde und deutet somit auf einen zusätzlichen Beitrag $C_{\text{ex}}(T)$ unbekanntem Ursprungs zur spezifischen Wärme.

In dekadonalem Al-Cu-Co und Al-Ni-Co deutet der kleine Koeffizient des linearen Beitrages γT von $\approx 0.6T \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ zur spezifischen Wärme $C_p(T)$ auf eine kleine elektronische Zustandsdichte bei der Fermienergie E_F . Der zu T^3 proportionale Beitrag zu $C_p(T)$ in Al-Ni-Co ist in guter Übereinstimmung mit dem akustischen Beitrag, der aus den Tieftemperaturwerten der elastischen Konstanten c_{ij} berechnet werden kann. In dekadonalem Al-Ni-Co steigt oberhalb von 4 K das Verhältnis C_{ph}/T^3 proportional zu T^2 an. Obwohl man einen Beitrag zu $C_p(T)$ mit einer zu T^5 proportionalen Temperaturabhängigkeit auf Grund der Dispersion der akustischen Anregungen erwartet, so ist der aus den mittels inelastischer Neutronenstreuung gemessenen Dispersionskurven berechnete Wert um fast eine Grössenordnung kleiner, was wieder auf einen zusätzlichen Beitrag zur spezifischen Wärme hindeutend.

Im dritten Teil wird die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit $\sigma(T, H)$ von zwei Proben von ikosahedrischem Al-Re-Pd mit der chemischen Zusammensetzung $\text{Al}_{70}\text{Re}_{10}\text{Pd}_{20}$ und $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$ beschrieben. Für Temperaturen unterhalb von 0.2 K kann die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit der Leitfähigkeit von $\text{Al}_{70}\text{Re}_{10}\text{Pd}_{20}$, welches eine Restleitfähigkeit von $\sigma_0 = 30 \text{ } \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ besitzt, mit Quanteninterferenzeffekten der beweglichen Ladungsträger unter Berücksichtigung der Coulomb Wechselwirkung erklärt werden. Im Fall von $\text{Al}_{70}\text{Re}_{8.6}\text{Pd}_{21.4}$, welches eine Restleitfähigkeit von $\sigma_0 = 1.7 \text{ } \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ besitzt, zeigt die elektrische Leitfähigkeit unterhalb von 1 K die Tendenz zur Saturierung. Diese Tendenz wird auch bei angelegten Magnetfeldern bis zu 40 kOe noch beobachtet, was darauf hindeutet, dass die elektrische

Leitfähigkeit bei den tiefsten Temperaturen in diesem Material durch andere Mechanismen als Quanteninterferenzeffekte bestimmt wird.