

# Теплопроводность „умеренной“ тяжелофермионной системы $\text{YbZnCu}_4$

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

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

\* Trzebiatowski 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 20 апреля 2006 г.)

В интервале температур 5–300 К измерены теплопроводность  $\kappa$  и удельное электросопротивление  $\rho$  литого поликристаллического образца  $\text{YbZnCu}_4$ , относящегося к „умеренным“ тяжелофермионным соединениям. Показано, что его фоновая теплопроводность во всем исследованном интервале температур имеет „аморфноподобный“ вид, обусловленный наличием гомогенной переменной валентности иона Yb в этом соединении. На температурной зависимости  $\rho(T)$  можно выделить два участка: высокотемпературный ( $T > 220$  К), характерный для обычных металлов, и среднетемпературный (14–35 К), типичный для Кондо-соединений.

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: 71.27.-a, 65.40.-b

Тяжелофермионные соединения (ТФС)  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  ( $M = \text{Ag}, \text{Au}, \text{Cd}, \text{In}, \text{Mg}, \text{Tl}, \text{Zn}$ ), кристаллизующиеся в гранцентрированной кубической решетке типа  $\text{AuBe}_5$  (структура  $C15b$ , пространственная группа  $F\bar{4}3m (T_d^2)$ ), обладают весьма необычными физическими свойствами [1–9]. Они относятся к „легким“ и „умеренным“ ТФС. Параметр  $\gamma$  — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости ( $C_e \sim \gamma T$ ), пропорциональный эффективной массе носителей тока, — находится у этих соединений в интервале 50–400 мДж/моль·К<sup>2</sup>,<sup>1</sup> а температура Кондо  $T_K$  варьируется от 60 до 800 К [2,5,7,9]. Одновременно эти материалы входят в группу соединений с гомогенной переменной валентностью (ПВ) редкоземельных ионов (в данном случае иона Yb). В англоязычной литературе такие материалы называют „mixed-valence compounds“ или „intermediate valence compounds“. Валентность  $V$  иона Yb у них при 4.2 К равна 2.6–2.9 [2,5].

Уникальным соединением в системе  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  является  $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$  (составы в области гомогенности  $\text{YbInCu}_4$ ), у которого при  $T_v \sim 40$ –80 К (в зависимости от величины  $x$ ) при атмосферном давлении наблюдается изоструктурный фазовый переход от состояния кюри-вейсовского парамагнетика с локализованными магнитными моментами (при  $T > T_v$ ) к паулевскому парамагнетика с немагнитным состоянием Ферми-жидкости (при  $T < T_v$ ). При этом валентность иона Yb изменяется от 2.9 (при  $T > T_v$ ) до  $\sim 2.8$  (при  $T < T_v$ ) [2,3]. У других соединений, входящих в систему  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$ , подобных фазовых переходов в интервале 4.2–300 К

(и при более низких температурах) не наблюдается. Свойства, характерные для ТФС, у них проявляются при низких температурах. С изменением температуры от низкой к высокой в системе  $f$ -электронов Yb этих материалов происходит постепенный переход от ТФС к обычному металлу, в котором, однако, ионы Yb находятся в состоянии с ПВ. Магнитных фазовых переходов для соединений системы  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  не наблюдается, за исключением  $\text{YbAuCu}_4$ , у которого такой переход обнаружен при  $T < 1$  К.

В качестве объекта исследования в настоящей работе был выбран  $\text{YbZnCu}_4$ . Он является „умеренным“ ТФС с  $\gamma \sim 230$  мДж/моль·К<sup>2</sup> [2],  $T_K \sim 30$ –97 К [2,5,7], валентностью иона Yb — 2.84 (при 4.2 К) и  $\sim 2.88$  (при 300 К) [2,5], постоянной Холла  $R_H \sim -20 \cdot 10^{-10}$  (при 4.2 К) и  $\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$  м<sup>3</sup>/С (при 300 К) и величиной термоэдс в минимуме при 50 К  $-55 \mu\text{В/К}$  [7]. Параметр решетки  $\text{YbZnCu}_4$  составляет 7.046 Å [2]. Из-за небольшой величины  $R_H$   $\text{YbZnCu}_4$  относят к металлам или, как предполагается в [2], к „ослабленным или недостаточным Кондо-полуметаллам“ (failed Kondo semimetal).

В настоящей работе измерена теплопроводность  $\text{YbZnCu}_4$  в интервале 5–300 К. Ранее таких измерений не проводилось.

При исследовании  $\kappa(T)$   $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$  [10–12],  $\text{YbAgCu}_4$  [13],  $\text{YbIn}_{0.7}\text{Ag}_{0.3}\text{Cu}_4$  [14],  $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$  [8] нами был обнаружен интересный эффект: фоновая теплопроводность  $\kappa_{\text{ph}}$  у этих соединений при  $T \geq 30$ –100 К не уменьшалась с ростом температуры, как этого можно было ожидать для стандартных твердых тел, а, наоборот, возрастала по закону  $\kappa_{\text{ph}} \sim T^n$  (где величина  $n$  изменя-

<sup>1</sup> Параметр  $\gamma > 400$ ,  $\sim 50$ –60 и 100–400 мДж/моль·К<sup>2</sup> относится соответственно к классическим, „легким“ и „умеренным“ ТФС.

лась в пределах от 0.13 до 0.8). Такое же поведение  $\kappa_{ph}$  было отмечено ранее у „легких“ ТФС  $Sm_{1-x}Gd_xS$  (при  $x > 0.16$ ) [15], у „умеренного“ ТФС  $YbUCu_5$  [16] и даже у классического ТФС  $CeAl_3$  [17], т.е. и у этих материалов имело место „аморфноподобное“ поведение  $\kappa_{ph}(T)$ . Общим для всех приведенных выше соединений было наличие в них ионов с переменной гомогенной валентностью (Yb, U, Ce), которые, по нашему мнению, и несут ответственность за „аморфноподобное“ поведение  $\kappa_{ph}(T)$  этих материалов.

Для построения теории, которая смогла бы объяснить поведение  $\kappa_{ph}(T)$  отмеченных выше соединений, необходимо провести накопление экспериментальных данных для материалов с разными величинами  $T_K$ ,  $\gamma$  и  $V$ . Поэтому основной целью настоящей работы было исследовать поведение  $\kappa_{ph}(T)$  при высоких температурах у  $YbZnCu_4$ , входящего в семейство соединений  $YbMCu_4$ , но имеющего иные значения для  $T_K$ ,  $\gamma$  и  $V$  по сравнению с исследованными нами ранее соединениями системы  $YbMCu_4$ .

## 1. Подготовка образцов, методики исследования

Литые поликристаллические образцы  $YbZnCu_4$  готовились по методике, описанной в [18]. При синтезе использовались дважды возогнанный и переплавленный в танталовом тигле (для очистки от окисла) Yb, а также Zn и Cu марки осч. Компоненты сплава в стехиометрическом соотношении переплавлялись в откачанном до  $\sim 10^{-4}$  mm Hg тонкостенном (толщина стенок  $\sim 0.1$  mm) заваренном танталовом контейнере. Плавление образцов проводилось в высокочастотной печи. Полученные образцы подвергались рентгеноструктурному анализу на установке ДРОН-2 (в  $CuK_\alpha$ -излучении). Образец был монофазным, имел кубическую решетку типа  $AuBe_5$  (структура  $C15b$ ) с постоянной кристаллической решетки, равной  $7.043(2)$  Å при 300 K, что достаточно хорошо совпадает с литературными данными для  $YbZnCu_4$  ( $7.046$  Å [2]). Теплопроводность и удельное электросопротивление  $\rho$  измерялись в интервале температур 5–300 K на установке, аналогичной использованной в [19], в вакууме  $\sim 10^{-5}$  mm Hg.

## 2. Результаты и их обсуждение

На рис. 1, 2 приведены полученные экспериментальные данные для полной теплопроводности  $\kappa_{tot}(T)$  и  $\rho(T)$  исследованного образца  $YbZnCu_4$ .

2.1. Удельное электросопротивление  $YbZnCu_4$ . Приведенные на рис. 2 данные для  $\rho(T)$   $YbZnCu_4$  по характеру температурной зависимости совпадают с результатами для  $\rho(T)$  этого соединения, полученными в работе [2], однако по абсолютной величине они меньше, чем в [2].

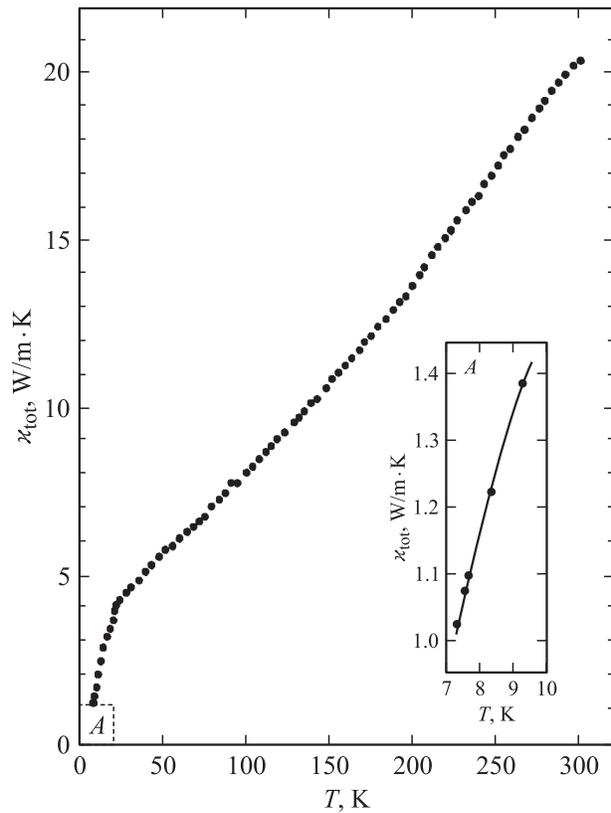


Рис. 1. Температурная зависимость полной теплопроводности ( $\kappa_{tot}$ )  $YbZnCu_4$ . На вставке представлен низкотемпературный участок зависимости  $\kappa_{tot}(T)$ .

На рис. 3 зависимость  $\rho(T)$  для исследованного нами образца  $YbZnCu_4$  представлена в координатах  $\rho - \ln T$ . Из рис. 2 и 3 видно, что в области температур  $T \geq 225$  K вид  $\rho(T)$  характерен для обычных металлов, а в интервале 14–35 K подчиняется зависимости  $\rho(\ln T)$ , типичной для Кондо-соединений (Кондо-решеток). Похожее поведение  $\rho(T)$  наблюдалось нами ранее и для „умеренного“ ТФС  $YbIn_{0.2}Ag_{0.8}Cu_4$  [8] (см. вставку к рис. 3).

2.2. Теплопроводность  $YbZnCu_4$ . Согласно данным по эффекту Холла [2],  $YbZnCu_4$  во всем измеренном нами интервале температур (5–300 K) можно отнести к металлам или к „failed Kondo semimetal“, для которых общая теплопроводность  $\kappa_{tot}$  выражается в виде суммы решеточной (фононной)  $\kappa_{ph}$  и электронной  $\kappa_e$  составляющих теплопроводности [20]

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

$\kappa_e$  подчиняется закону Видемана–Франца и записывается в виде

$$\kappa_e = L_0 T / \rho, \quad (2)$$

где  $L_0$  — зоммерфельдовское значение числа Лоренца. Для металлов и полуметаллов оно равно  $2.45 \cdot 10^{-8}$  W · Ω/K<sup>2</sup>.

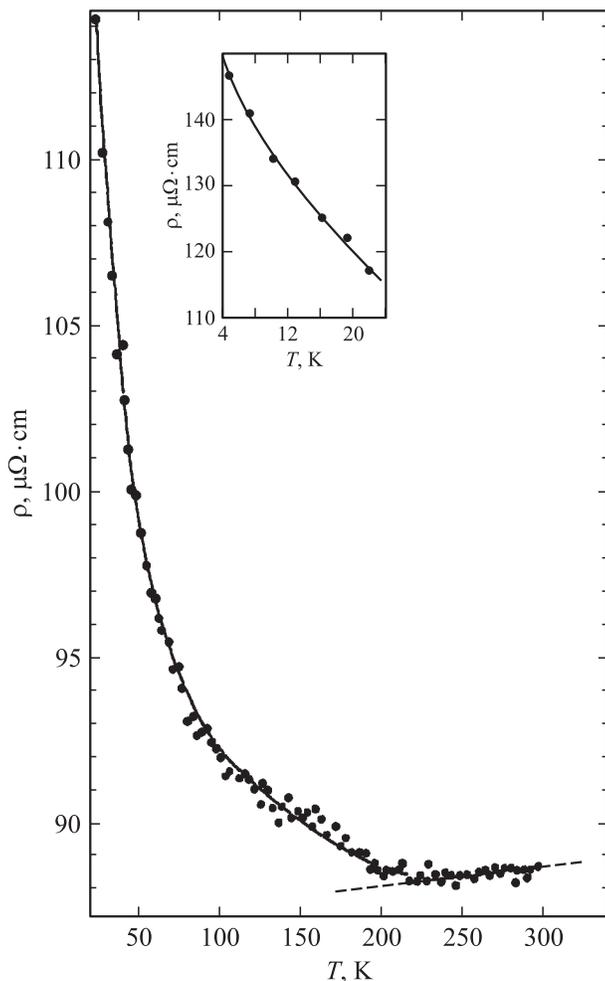


Рис. 2. Температурная зависимость удельного электросопротивления ( $\rho$ )  $\text{YbZnCu}_4$ . На вставке представлен низкотемпературный участок зависимости  $\rho(T)$ .

На рис. 4 приведены результаты расчета  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  с помощью формул (1) и (2). Как видно из этого рисунка,  $\text{YbZnCu}_4$  имеет аморфноподобную температурную зависимость  $\kappa_{\text{ph}}(T)$ . Ее ход напоминает поведение  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  классических аморфных твердых тел, относящихся к участкам 1–3 кривой, представленной на вставке к рис. 4. Она согласуется также с полученными нами ранее данными об аморфноподобном поведении  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  (при  $T \geq 30\text{--}100\text{ K}$ ) у  $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$ ,  $\text{YbAgCu}_4$ ,  $\text{YbIn}_{0.7}\text{Ag}_{0.3}\text{Cu}_4$  [10–14] и особенно у „умеренного“ ТФС  $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$  [8] (рис. 5).

Таким образом, можно еще раз констатировать, что с большой вероятностью обнаруженный эффект аморфноподобного поведения  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  связан с наличием в этих материалах иона Yb с гомогенной ПВ. Подтвердить или опровергнуть эти предположения смогут, по-видимому, только теоретические расчеты  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  для материалов с гомогенной ПВ редкоземельных ионов.

Отметим возможность несколько иной интерпретации возрастания  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  у  $\text{YbZnCu}_4$  в области температур

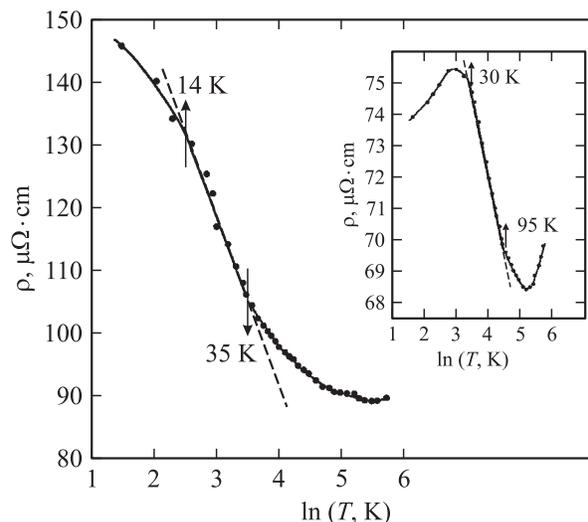


Рис. 3. Зависимости  $\rho$  от  $\ln T$  для  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$  [8] (на вставке).

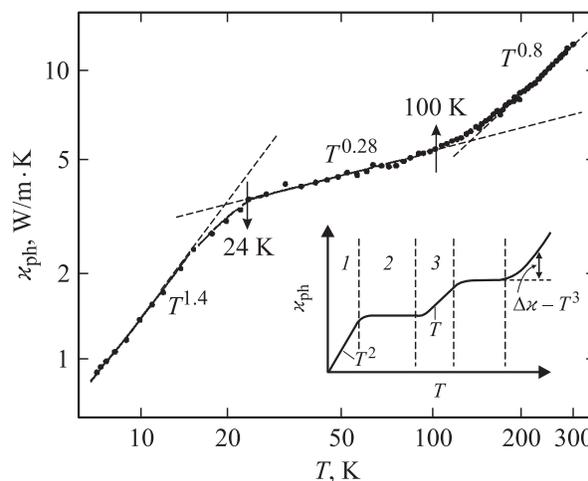


Рис. 4. Зависимость  $\kappa_{\text{ph}}$  от температуры для  $\text{YbZnCu}_4$ . На вставке представлено схематическое изображение температурной зависимости  $\kappa_{\text{ph}}$  для классических аморфных материалов.

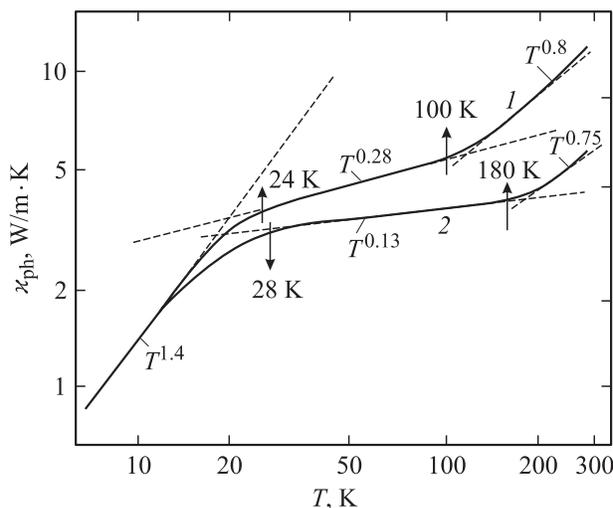


Рис. 5. Зависимости  $\kappa_{\text{ph}}$  от температуры для  $\text{YbZnCu}_4$  (1) и  $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$  [8] (2).

выше 100 К (рис. 4, 5). Оно может быть связано с появлением в  $\text{YbZnCu}_4$  при этих температурах биполярной составляющей теплопроводности, характерной для полуметаллов, хотя, как утверждается в [2] исходя из данных для  $R_H(T)$ ,  $\text{YbZnCu}_4$  при высоких температурах, скорее всего, следует отнести к металлам.<sup>2</sup>

В заключение отметим основные результаты, полученные в настоящей работе.

1) В интервале температур 5–300 К на литых поликристаллических образцах  $\text{YbZnCu}_4$  измерены  $\kappa$  и  $\rho$ .

2) Обнаружено „аморфноподобное“ поведение  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  у исследованного образца  $\text{YbZnCu}_4$ , обусловленное наличием гомогенной ПВ иона Yb в этом соединении.

3) На температурной зависимости  $\rho(T)$  выделены два участка: высокотемпературный при  $T > 220$  К, характерный для обычных металлов, и среднетемпературный (14–35 К), типичный для Кондо-соединений ( $\rho \sim \ln T$ ).

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

## Список литературы

- [1] R. Casanova, D. Jaccard, C. Marcenat, N. Hamdaoui, M.J. Besnus. *J. Magn. Magn. Mater.* **90/91**, 587 (1990).
- [2] J.L. Sarrao, C.D. Immer, Z. Fisk, C.H. Booth, E. Figueroa, J.M. Lawrence, R. Modler, A.L. Cornelius, M.F. Hundley, G.H. Kwei, J.D. Thompson, F. Bridges. *Phys. Rev. B* **59**, 6855 (1999).
- [3] V.N. Antonov, M. Galli, F. Marabelli, A.N. Yeresko, A.Ya. Perlov, E. Bauer. *Phys. Rev. B* **62**, 1742 (2000).
- [4] K. Hiraoka, K. Murakami, S. Tomiyoshi, T. Hihara, T. Shinohara, K. Kojima. *Physica B* **281/282**, 173 (2000).
- [5] J.M. Lawrence, P.S. Riseborough, C.H. Booth, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, R. Osborn. *Phys. Rev. B* **63**, 054 427 (2001).
- [6] H. Sato, K. Hiraoka, M. Taniguchi, Y. Nishikawa, F. Nagasaki, H. Fujino, Y. Takeda, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, A. Kimura, K. Kojima. *J. Phys. Cond. Matter* **14**, 4445 (2002).
- [7] А.В. Гольцев, А.В. Голубков, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, Ch. Sulkovski. *ФТТ* **48**, 583 (2006).
- [8] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, J. Mucha, A. Jezowski. *ФТТ* **48**, 586 (2006).
- [9] T. Koyama, M. Matsumoto, T. Tanaka, H. Ishida, T. Mito, S. Wada, J.L. Sarrao. *Phys. Rev. B* **66**, 014 420 (2002).
- [10] И.А. Смирнов, Л.С. Парфеньева, А. Ежовский, Х. Мисиорек, С. Кремפל-Хассе, Ф. Ритгер, В. Ассмус. *ФТТ* **41**, 1548 (1999).
- [11] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Ритгер, В. Ассмус. *ФТТ* **44**, 973 (2002).
- [12] Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Ритгер, В. Ассмус. *ФТТ* **44**, 1162 (2002).
- [13] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **43**, 210 (2001).
- [14] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **43**, 1739 (2001).
- [15] А.В. Голубков, А.В. Гольцев, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **42**, 986 (2000).
- [16] D. Kaczorowski, R. Troc, A. Czopnik, A. Jezowski, Z. Henkie, V.I. Zeremba. *Phys. Rev. B* **63**, 144 401 (2001).
- [17] H.R. Ott, O. Marti, F. Hulliger. *Solid State Commun.* **49**, 1129 (1984).
- [18] А.В. Голубков, Т.Б. Жукова, В.М. Сергеева. *Изв. АН СССР. Неорган. материалы* **2**, 77 (1966).
- [19] A. Jezowski, J. Mucha, G. Pompe. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **20**, 1500 (1987).
- [20] И.А. Смирнов, В.И. Тмарченко. *Электронная теплопроводность в металлах и полупроводниках*. Наука, Л. (1977). 151 с.

<sup>2</sup> Несмотря на высказанное в [2] предположение о возможности отнесения  $\text{YbZnCu}_4$  к особой группе материалов „failed Kondo semimetals“.