

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

© А.В. Гольцев, А.В. Голубков, И.А. Смирнов, Н. Misiorek\*, Ch. Sulkovski\*

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

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

(Поступила в Редакцию 12 июля 2005 г.)

В интервале температур 5–300 К измерены коэффициенты термоэдс ( $S$ ) на образцах „умеренной“ тяжелофермионной системы  $\text{YbZnCu}_4$  и металлического  $\text{LuZnCu}_4$ . Показано, что из данных о температурной зависимости  $S$   $\text{YbZnCu}_4$  следует, что этот материал является тяжелофермионным соединением с температурой Кондо  $\sim 50$  К.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 05-02-17775) и Польского государственного комитета по научным исследованиям (грант KBN N 3T 08A 05426).

PACS: 72.15.Qm, 72.20.Pa

Тяжелофермионные соединения (ТФС)  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  ( $M = \text{Ag, Au, Cd, In, Mg, Tl, Zn}$ ), кристаллизующиеся в гранцентрированной кубической решетке типа  $\text{AuBe}_5$  (структура  $C15b$ , пространственная группа  $F 43m (T_d^2)$ ) обладают весьма необычными физическими свойствами, исследования которых в последнее десятилетие широко проводятся в ведущих лабораториях США, Японии и европейских стран [1–6].

Соединения, входящие в группу материалов  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$ , относятся к „легким“ („light“) и „умеренным“ („moderately“) ТФС. Параметр  $\gamma$  — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости ( $C_e \sim \gamma T$ ), пропорциональный эффективной массе носителей тока, располагается в интервале значений 50–400  $\text{mJ/mol} \cdot \text{K}^2$  [2,5]<sup>1</sup>, а температура Кондо ( $T_K$ ) варьируется от 60 до 800 К. Эти соединения относятся также к интересному классу материалов с переменной валентностью ( $V$ ) редкоземельных ионов (в данном случае иона Yb). Валентность иона Yb у них при 4.2 К равна 2.6–2.9 [2,5].

Изоструктурный фазовый переход первого рода при атмосферном давлении в ряду соединений  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  наблюдается лишь у  $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$ . Он происходит при  $T_v \sim 40$ –80 К (в зависимости от величины  $x$ ) и сопровождается изменением валентности Yb для состава с  $x = 0$  от  $\sim 2.9$  (при  $T > T_v$ ) до 2.85 (при  $T < T_v$ ). Полуметаллическая высокотемпературная фаза относится к кюри-вейсовским парамагнетикам с локализованными магнитными моментами. Металлическая низкотемпературная фаза является паулевским парамагнетиком с немагнитным состоянием Ферми-жидкости. Она относится к классу „легких“ тяжелофермионных систем с  $\gamma \approx 50 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ . У других соединений, входящих в систему  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$ , фазовые переходы в интервале 4.2–300 К не наблюдались. Свойства, характерные для ТФС, у них проявляются при низких температурах.

<sup>1</sup> Параметр  $\gamma$  равен  $\sim 50$ –60, 100–400  $n > 400 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$  соответственно у „легких“, „умеренных“ и классических ТФС.

С изменением температуры от низкой к высокой в системе  $f$ -электронов Yb этих материалов происходит постепенный переход от состояния Ферми-жидкости к локальному состоянию (т.е. имеет место постепенный переход ТФС к обычному металлу, в котором однако ионы Yb продолжают оставаться в состоянии с переменной валентностью) [2,5].

При анализе результатов для  $\text{Yb}M\text{Cu}_4$  в большинстве работ используются данные, полученные на эталонных материалах  $\text{Lu}M\text{Cu}_4$  ( $M = \text{Ag, Au, Cd, In, Mg, Tl, Zn}$ ) [2,3,5].

В настоящей работе в интервале температур 5–300 К измерены коэффициенты термоэдс ( $S$ ) у  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$ . Ранее  $S(T)$  у этих соединений не измерялись.

Литые поликристаллические образцы  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$  приготавливались по методике, описанной в [7]. 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 переплавились в откаченном до  $\sim 10^{-4} \text{ mm Hg}$  тонкостенном (толщина стенок  $\sim 0.1 \text{ mm}$ ) заваренном танталовом контейнере. Плавление образцов проводилось в высокочастотной печи. Полученные образцы подвергались рентгеноструктурному анализу на установке ДРОН-2 (в  $\text{CuK}\alpha$ -излучении) для определения постоянной кристаллической решетки ( $a$ ). Измерения  $S(T)$  проводились с помощью стандартной дифференциальной методики.

В таблице суммированы имеющиеся в литературе сведения о некоторых параметрах  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$ , которые могут быть полезны при обсуждении полученных нами данных для  $S(T)$  этих материалов. Из таблицы видно, что  $\text{YbZnCu}_4$  относится к „умеренным“ ТФС и соединениям с переменной валентностью редкоземельных ионов. Полученные значения для постоянных кристаллической решетки  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$  оказались соответственно равными 7.043(2) и 7.036(9) Å, что близко к величинам для этих соединений, определенных в [2] (см. таблицу).

Литературные данные о ряде физических параметров  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$  [2,5]

Параметр	Соединение	
	$\text{YbZnCu}_4$	$\text{LuZnCu}_4$
$\gamma$ , $\text{mJ/mol} \cdot \text{K}^2$	230(15)	7.2(5)
$T_K$ , К	31–97 (из данных по магнитной восприимчивости), 60 — расчетные значения	—
$V$ иона Yb	$\sim 2.84$ (при 4.2 К) $\sim 2.88$ (при 300 К)	—
Постоянная Холла	$\sim -20 \cdot 10^{-10}$ (при 4.2 К)	$\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$
$R_H$ , $\text{m}^3/\text{C}$	$\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$ (при 300 К)	(4.2–300 К)
$a$ , Å	7.046	7.034

Примечание. В  $\text{YbZnCu}_4$  до  $T = 100$  мК не обнаружено магнитное упорядочение.

На рисунке приведены экспериментальные результаты для абсолютных значений термоэдс  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$ . Термоэдс  $\text{LuZnCu}_4$ , измеренного в качестве эталона, имеет небольшую величину и уменьшается линейно с понижением температуры, что характерно для металлов. Такое заключение совпадает с выводом, сделанным относительно  $\text{LuZnCu}_4$  в [2] на основании измерения эффекта Холла. Однако наши данные несколько расходятся с данными, полученными в [2]. В [2] знак постоянной Холла во всем исследованном интервале температур 4.2–300 К для  $\text{LuZnCu}_4$  был отрицательным (см. таблицу), у нас же знак  $S(T)$  в том же температурном интервале для  $\text{LuZnCu}_4$  положительный.

Температурное поведение термоэдс нормальных металлов хорошо описывается формулой Мотта [8]

$$S = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \left. \frac{\partial \ln \rho(E)}{\partial E} \right|_{E=E_F}, \quad (1)$$

где  $k_B$  — константа Больцмана,  $e$  — заряд электрона,  $\rho(E)$  — плотность состояний,  $E_F$  — энергия Ферми. В случае квадратичного закона дисперсии  $E = p^2/2$  уравнение (1) принимает вид

$$S = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{6eE_F}, \quad (2)$$

который показывает, что  $S$  обратно пропорциональна энергии Ферми. Согласно (1), термоэдс нормальных металлов падает линейно с понижением температуры, что и наблюдается для  $\text{LuZnCu}_4$  (см. рисунок).

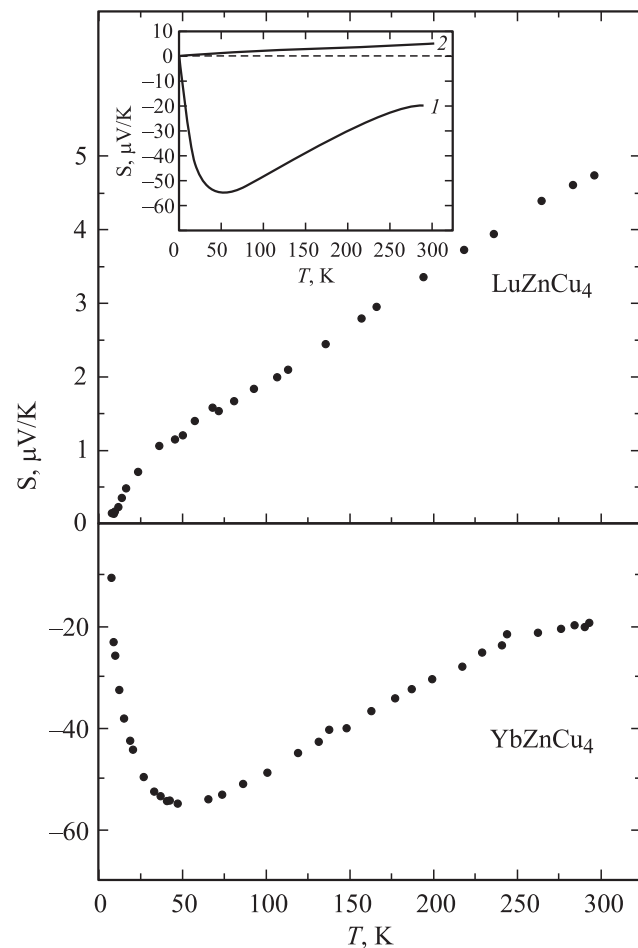
В ТФС сильные электрон-электронные взаимодействия меняют температурный характер поведения термоэдс. С понижением температуры эффект Кондо приводит к значительному увеличению  $S$  (увеличение может составлять несколько порядков), а затем к формированию максимума при температуре, близкой к температуре Кондо ( $T_K$ ). При дальнейшем понижении температуры в область  $T \ll T_K$  термоэдс качественно следует закону (1).

Температурное поведение термоэдс соединения  $\text{YbZnCu}_4$  полностью согласуется с описанным выше поведением  $S(T)$  для ТФС. Абсолютное значение термоэдс при температуре порядка 50 К достигает максимального значения  $55 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$ , что намного больше типичной для нормальных металлов величины  $\sim 1 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$ . Исходя из положения максимума  $|S|$ , можно сделать оценку температуры Кондо:  $T_K \approx 50$  К.

Согласно уравнению (2), в нормальных металлах температурная производная от термоэдс равна

$$\frac{\partial S}{\partial T} = \frac{\pi^2 k_B^2}{6eE_F}, \quad (3)$$

т. е. обратно пропорциональна энергии Ферми. Согласно экспериментальным и теоретическим исследованиям, ТФС в области ниже температуры Кондо демонстрируют нормальные ферми-жидкостные свойства (см., например, [10]). При этом эффективная энергия Ферми ТФС  $E_F^*$  является величиной порядка  $T_K$  [10]. Поэтому можно использовать закон (3) для оценки эффективной энергии Ферми  $E_F^*$  ( $E_F^* = E_F$ ) в  $\text{YbZnCu}_4$ . Со-



Температурные зависимости термоэдс  $\text{YbZnCu}_4$  и  $\text{LuZnCu}_4$ . На вставке для сравнения приведены температурные зависимости термоэдс  $\text{YbZnCu}_4$  (1) и  $\text{LuZnCu}_4$  (2), представленные в одном масштабе.

гласно экспериментальным данным, в  $\text{YbZnCu}_4$  величина  $|\partial S/\partial T| = 2.7 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-2}$ , что соответствует  $E_F^* = 52 \text{ K}$ . Эта величина хорошо согласуется с полученной выше оценкой температуры Кондо  $T_K \approx 50 \text{ K}$ .

Таким образом, температурное поведение термоэдс в  $\text{YbZnCu}_4$  свидетельствует, что это соединение является тяжелофермионным соединением с температурой Кондо  $T_K \approx 50 \text{ K}$ . Величина  $T_K \sim 50 \text{ K}$  лежит в интервале значений для температуры Кондо  $\text{YbZnCu}_4$ , полученных в [2,5] расчетным путем и из данных по магнитной восприимчивости (см. таблицу).

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**, 10, 6855 (1999).
- [3] V.N. Antonov, M. Galli, F. Marabelli, A.N. Yeresko, A.Ya. Perlov, E. Bauer. *Phys. Rev. B* **62**, 3, 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. Condens. Matter.* **14**, 4445 (2002).
- [7] А.В. Голубков, Т.Б. Жукова, В.М. Сергеева. *Изв. АН СССР. Неорган. материалы* **2**, 11, 77 (1966).
- [8] N.F. Mott, J. Johns. *Theory of Metals and Alloys*. Clarendon, Oxford (1936), 326 с.
- [9] N.E. Bickers, D.L. Cox, J.W. Wilkins. *Phys. Rev. B* **36**, 2036 (1987).
- [10] A.J. Millis, P.A. Lee. *Phys. Rev. B* **35**, 3394 (1987).