

Термоэдс „умеренной“ тяжелофермионной системы YbZnCu_4

© А.В. Гольцев, А.В. Голубков, И.А. Смирнов, Н. Misiorek*, Ч. 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 YbZnCu_4 и металлического LuZnCu_4 . Показано, что из данных о температурной зависимости S YbZnCu_4 следует, что этот материал является тяжелофермионным соединением с температурой Кондо ~ 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 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 γ — 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]¹, 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 $T_v \sim 40\text{--}80$ К (в зависимости от величины x) и сопровождается изменением валентности Yb для состава с $x = 0$ от ~ 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.

¹ Параметр γ равен $\sim 50\text{--}60, 100\text{--}400$ $n > 400 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ 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 YbZnCu_4 и LuZnCu_4 . Ранее $S(T)$ у этих соединений не измерялись.

Литые поликристаллические образцы YbZnCu_4 и 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 $\sim 10^{-4}$ mm Hg тонкостенном (толщина стенок ~ 0.1 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 YbZnCu_4 и LuZnCu_4 , которые могут быть полезны при обсуждении полученных нами данных для $S(T)$ этих материалов. Из таблицы видно, что YbZnCu_4 относится к „умеренным“ ТФС и соединениям с переменной валентностью редкоземельных ионов. Полученные значения для постоянных кристаллической решетки YbZnCu_4 и 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 YbZnCu_4 и LuZnCu_4 [2,5]

Параметр	Соединение	
	YbZnCu_4	LuZnCu_4
γ , $\text{mJ/mol} \cdot \text{K}^2$	230(15)	7.2(5)
T_K , К	31–97 (из данных по магнитной восприимчивости), 60 — расчетные значения	—
V иона Yb	~ 2.84 (при 4.2 К) ~ 2.88 (при 300 К)	—
Постоянная Холла	$\sim -20 \cdot 10^{-10}$ (при 4.2 К)	$\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$
R_H , m^3/C	$\sim -0.3 \cdot 10^{-10}$ (при 300 К)	(4.2–300 К)
a , Å	7.046	7.034

Примечание. В YbZnCu_4 до $T = 100$ мК не обнаружено магнитное упорядочение.

На рисунке приведены экспериментальные результаты для абсолютных значений термоэдс YbZnCu_4 и LuZnCu_4 . Термоэдс 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 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 LuZnCu_4 был отрицательным (см. таблицу), у нас же знак $S(T)$ в том же температурном интервале для 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 LuZnCu_4 (см. рисунок).

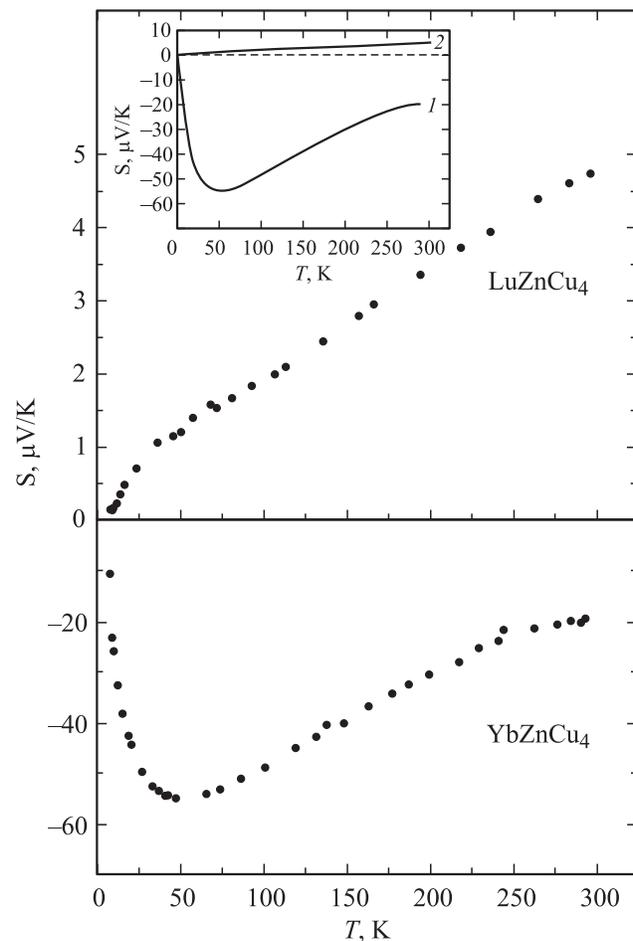
В ТФС сильные электрон-электронные взаимодействия меняют температурный характер поведения термоэдс. С понижением температуры эффект Кондо приводит к значительному увеличению S (увеличение может составлять несколько порядков), а затем к формированию максимума при температуре, близкой к температуре Кондо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

Температурное поведение термоэдс соединения 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 YbZnCu_4 . Со-



Температурные зависимости термоэдс YbZnCu_4 и LuZnCu_4 . На вставке для сравнения приведены температурные зависимости термоэдс YbZnCu_4 (1) и LuZnCu_4 (2), представленные в одном масштабе.

гласно экспериментальным данным, в 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 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 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).