

# Теплопроводность „легкой“ тяжелофермионной системы $\text{YbMgCu}_4$

© 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

\* 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 2 апреля 2007 г.)

В интервале температур 5–300 К измерены теплопроводность и удельное электросопротивление образца  $\text{YbMgCu}_4$ , относящегося к „легким“ тяжелофермионным соединениям. Исследованный образец располагался в области гомогенности этого соединения. Показано, что его фононная теплопроводность во всем исследованном интервале температур имеет „аморфноподобный“ вид, обусловленный наличием в  $\text{YbMgCu}_4$  гомогенной переменной валентности иона Yb.

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

## 1. Введение

Тяжелофермионные соединения (ТФС)  $\text{YbMCu}_4$  ( $M = \text{Ag, Au, Cd, In, Mg, Tl, Zn}$ ), 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 [1–6]. Они входят в группы „легких“ („light“) и „умеренных“ („moderate“) ТФС. Параметр  $\gamma$  — коэффициент при линейном члене по температуре электронной составляющей теплоемкости ( $C_e = \gamma T$ ), пропорциональный эффективной массе носителей тока, — расположен у этих соединений в интервале 50–400 мДж/моль · К<sup>2</sup> (материалы с  $\gamma > 400$ , ~ 50–60 и 100–400 мДж/моль · К<sup>2</sup> относятся соответственно к классическим, „легким“ и „умеренным“ ТФС). Значения температуры Кондо ( $T_K$ ) у  $\text{YbMCu}_4$  лежат в интервале 60–800 К [2–4]. Эти соединения принадлежат также к интересному классу материалов с переменной валентностью ( $V$ ) редкоземельных ионов (в данном случае иона Yb).

Изоструктурный фазовый переход первого рода при атмосферном давлении в ряду соединений  $\text{YbMCu}_4$  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 2.9 (при  $T > T_v$ ) до 2.85 (при  $T < T_v$ ). Полуметаллическая высокотемпературная фаза относится к кюри-вейссовским парамагнетикам с локализованными магнитными моментами. Металлическая низкотемпературная фаза является паулиевским парамагнетиком с немагнитным состоянием Ферми-жидкости. Она принадлежит к классу „легких“ тяжелофермионных систем с  $\gamma \approx 50$  мДж/моль · К<sup>2</sup>. У других соединений, входящих в систему  $\text{YbMCu}_4$ , фазовых переходов в интервале 4.2–300 К не наблюдалось. 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 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) [2,3].

Настоящая работа посвящается исследованию  $\text{YbMgCu}_4$ . Этот материал относится к „легкой“ ТФС. Стехиометрический  $\text{YbMgCu}_4$ , согласно [1–4], имеет  $\gamma = 53$ –62 мДж/моль · К<sup>2</sup>,  $T_K$ , определенная из данных по магнитной восприимчивости, варьируется у него в пределах 500–855 К, валентность иона Yb изменяется от 2.63–2.65 при 4 К до 2.69–2.70 при 300 К, а постоянная Холла  $R_H$  (в м<sup>3</sup>/С) составляет  $-(1.5$ – $1.7) \cdot 10^{-10}$  при 4 К и  $-3.5 \cdot 10^{-10}$  при 300 К. Параметр элементарной ячейки у этих образцов равен 7.194 Å. Согласно данным  $R_H(T)$ ,  $\text{YbMgCu}_4$  является металлом.

В [7] на основании измерений коэффициента термоэдс было показано, что  $\text{YbMgCu}_4$  имеет достаточно широкую область гомогенности, в пределах которой наблюдаются значительные изменения  $T_K$ , но все составы, расположенные в этой области, относятся к тяжелофермионной системе. В качестве объекта настоящего исследования был выбран образец  $\text{YbMgCu}_4$ , расположенный по своим свойствам в области гомогенности этого соединения.

В работе предполагалось провести измерение в интервале 5–300 К его теплопроводности ( $\chi$ ) и коэффициента удельного сопротивления ( $\rho$ ). Ранее измерения  $\chi(T)$   $\text{YbMgCu}_4$  не проводилось.

При исследовании  $\chi(T)$   $\text{YbIn}_{1-x}\text{Cu}_{4+x}$  [8–10],  $\text{YbAgCu}_4$  [11],  $\text{YbIn}_{0.7}\text{Ag}_{0.3}\text{Cu}_4$  [12],  $\text{YbIn}_{0.2}\text{Ag}_{0.8}\text{Cu}_4$  [13],  $\text{YbZnCu}_4$  [14] нами был обнаружен интересный эффект: фононная теплопроводность ( $\chi_{ph}$ ) у этих соединений при  $T \geq 30$ –100 К не уменьшалась с

ростом температуры, как этого можно было ожидать для стандартных кристаллических твердых тел, а наоборот возрастала по закону  $\kappa_{ph} \sim T^n$  (где  $n$  изменялась в пределах от 0.13 до 0.8). Такое же поведение  $\kappa_{ph}$  было отмечено ранее в „легких“ ТФС  $Sm_{1-x}Gd_xS$  (при  $x > 0.16$ ) [15], у „умеренной“ ТФС  $UCu_5In$  [16], 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 (Sm, U), которые, по нашему мнению, и несут ответственность за „аморфноподобное“ поведение  $\kappa_{ph}(T)$  этих материалов.

Основная цель настоящей работы состоит в исследовании поведения  $\kappa_{ph}(T)$  в случае  $YbMgCu_4$ , входящего в „семью“ соединений  $YbMCu_4$ , но имеющего иные значения для  $T_K$ ,  $\gamma$  и  $V$  по сравнению с исследованными нами ранее соединениями системы  $YbMCu_4$ . Результаты такого исследования важны также для построения теории, которая смогла бы объяснить нестандартное поведение  $\kappa_{ph}(T)$  для кристаллических тел у этих материалов.

## 2. Приготовление образцов, методики исследования

Литые поликристаллические образцы готовились по методике, описанной в [17]. При синтезе использовались дважды возогнанный и переплавленный в танталовом тигле (для очистки от окисла) Yb, Mg 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 проходили рентгеноструктурный анализ на установке ДРОН-2 (в  $CuK_{\alpha}$ -излучении). Образец, выбранный для исследования, был монофазным, имел кубическую решетку типа  $AuBe_5$  (структура  $C15b$ ) и параметр элементарной ячейки ( $a$ ) при 300 K, равный 7.161 Å, так что по составу этот образец располагался в пределах области гомогенности  $YbMgCu_4$  [7]. Как отмечалось выше, параметр  $a$  у стехиометрического образца  $YbMgCu_4$  составлял 7.194 Å [2]. Теплопроводность и удельное электросопротивление измерялись в интервале температур 5–300 K на установке, аналогичной [18], в вакууме  $\sim 10^{-5}$  mm Hg.

## 3. Полученные результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены полученные экспериментальные результаты для полной теплопроводности  $\kappa_{tot}(T)$ , а на рис. 2 — для  $\rho(T)$  исследованного образца  $YbMgCu_4$ .

3.1. Удельное электросопротивление. Приведенные на рис. 2 значения  $\rho(T)$  для образца  $YbMgCu_4$ , относящегося к области гомогенности этого соединения, по величине отличаются от  $\rho(T)$  стехиометрического

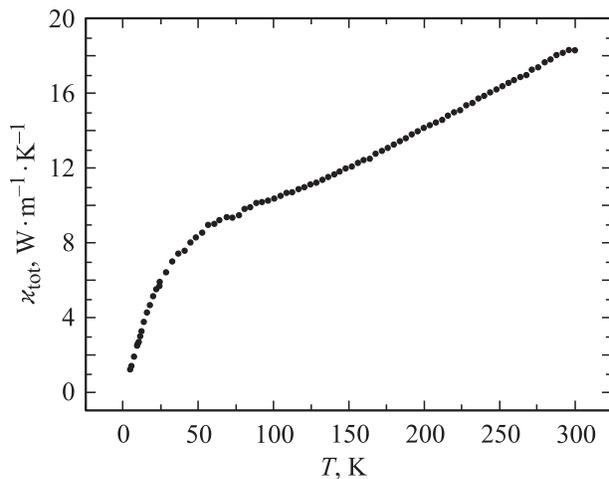


Рис. 1. Температурная зависимость общей теплопроводности ( $\kappa_{tot}$ )  $YbMgCu_4$ .

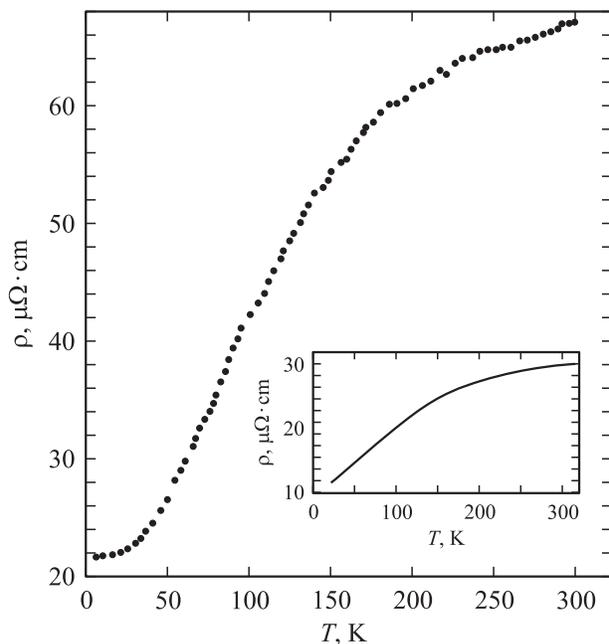


Рис. 2. Температурная зависимость удельного электросопротивления  $YbMgCu_4$ . На вставке приведены значения  $\rho(T)$  для стехиометрического образца  $YbMgCu_4$  из работы [2].

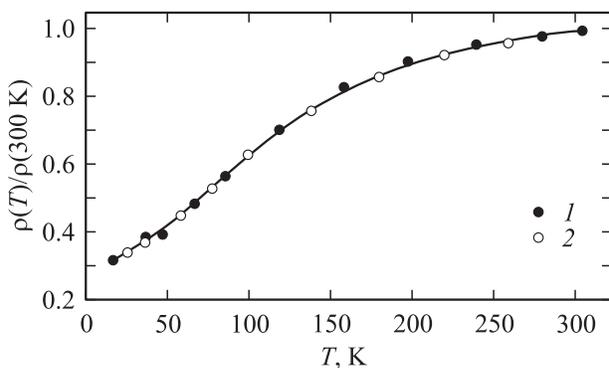


Рис. 3. Температурная зависимость отношения  $\rho(T)/\rho(300 K)$  для образцов  $YbMgCu_4$ , исследованных в [2] (1) и настоящей работе (2).

образца YbMgCu<sub>4</sub> из [2] (см. вставку к рис. 2), но по характеру температурной зависимости они идентичны друг другу. Это подтверждается данными, представленными на рис. 3. Значения  $\rho(T)/\rho(300\text{ K})$  для образцов YbMgCu<sub>4</sub>, исследованных нами и в работе [2], совпали между собой.

На рис. 4 приведена зависимость  $\rho(T)$  для исследованного образца YbMgCu<sub>4</sub> в логарифмических координатах. Величина остаточного сопротивления для этого образца оказалась равной  $\sim 21.5\ \mu\Omega \cdot \text{cm}$ .

3.2. Теплопроводность. Как уже отмечалось выше, исследованный образец YbMgCu<sub>4</sub> можно отнести к металлам, для которых общая теплопроводность  $\kappa_{\text{tot}}$  выражается в виде суммы решеточной (фононной)  $\kappa_{\text{ph}}$  и электронной  $\kappa_e$  составляющих теплопроводности [19]:

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

$\kappa_e$  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  $2.45 \cdot 10^{-8}\ \text{W}\Omega/\text{K}^2$ .

На рис. 5 приведены результаты расчета  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  с помощью формул (1) и (2). Как видно из этого рисунка, кристаллический YbMgCu<sub>4</sub> имеет аморфноподобную температурную зависимость  $\kappa_{\text{ph}}(T)$ . Ее вид похож на поведение  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  классических аморфных твердых тел, относящихся к участкам 1–3 кривой, представленной на вставке к рис. 5. Она согласуется также с полученными нами ранее данными об аморфноподобном поведении  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  YbIn<sub>1-x</sub>Cu<sub>4+x</sub> [8–10], YbAgCu<sub>4</sub> [11], YbIn<sub>0.7</sub>Ag<sub>0.3</sub>Cu<sub>4</sub> [12] и особенно YbIn<sub>0.2</sub>Ag<sub>0.8</sub>Cu<sub>4</sub> [13] и YbZnCu<sub>4</sub> [14] (рис. 6).

Таким образом, можно снова констатировать, что с большой вероятностью обнаруженный эффект аморфноподобного поведения  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  в основном связан с

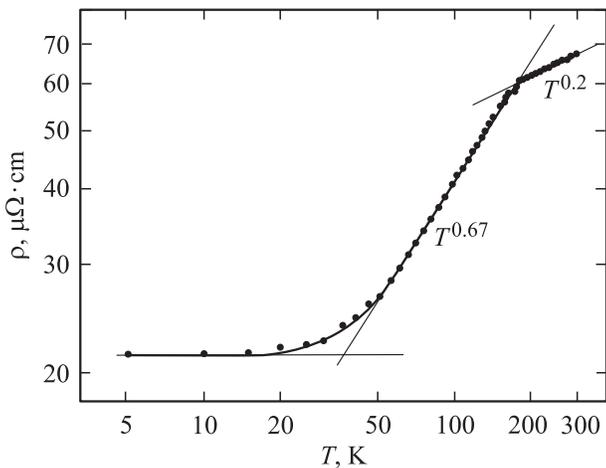


Рис. 4. Зависимость  $\rho(T)$  для исследованного образца YbMgCu<sub>4</sub> в логарифмических координатах.

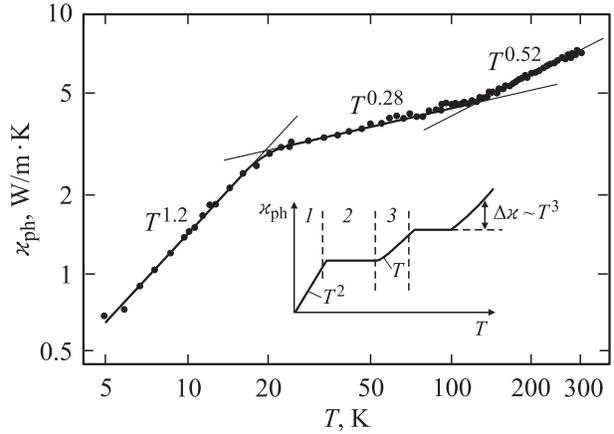


Рис. 5. Температурная зависимость  $\kappa_{\text{ph}}$  для исследованного образца YbMgCu<sub>4</sub>. На вставке представлено схематическое изображение температурной зависимости  $\kappa_{\text{ph}}$  для классических аморфных материалов.

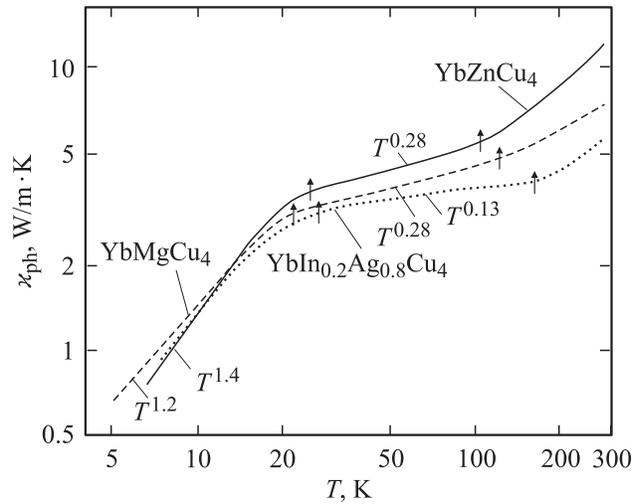


Рис. 6. Температурные зависимости  $\kappa_{\text{ph}}$  для YbIn<sub>0.2</sub>Ag<sub>0.8</sub>Cu<sub>4</sub> [13], YbZnCu<sub>4</sub> [14] и исследованного нами образца YbMgCu<sub>4</sub>. Стрелки на кривых ограничивают область слабой температурной зависимости представленных материалов.

наличием в этих материалах иона Yb с гомогенной переменной валентностью и практически не зависит от величин  $T_K$  и  $\gamma$  исследованных материалов.

## 4. Заключение

Отметим основные результаты, полученные в настоящей работе.

1) В интервале температур 5–300 К на литом поликристаллическом образце YbMgCu<sub>4</sub> с  $a = 7.161\ \text{\AA}$ , расположенном в области гомогенности этого соединения, измерены теплопроводность и удельное электросопротивление.

2) Для исследованного кристаллического образца  $\text{YbMgCu}_4$  обнаружено „аморфноподобное“ поведение фононной теплопроводности, обусловленное в основном наличием в нем иона Yb с гомогенной переменной валентностью.

Сделано заключение, что эффект аморфноподобного поведения  $\kappa_{\text{ph}}(T)$  практически не зависит от величины  $T_K$  и  $\gamma$  у различных материалов системы  $\text{YbMgCu}_4$ .

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

## Список литературы

- [1] E. Fugiera, J.M. Lowrance, J.L. Sarrao, Z. Fisk, M.F. Hundley, J.D. Thompson. *Solid State Commun.* **106**, 347 (1998).
- [2] J.L. Sarrao, C.D. Immer, Z. Fisk, C.H. Booth, E.Figueroa, J.M. Lowrance, R. Modler, A.L. Cornelius, M.F. Hundkey, J.H. Kwei, J.D. Thompson, F. Bridges. *Phys. Rev. B* **59**, 6855 (1999).
- [3] J.M. Lowrance, P.S. Riseborough, C.H. Booth, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, R. Osborn. *Phys. Rev. B* **63**, 054 427 (2001).
- [4] T. Kojima, M. Matsumoto, T. Tanaka, H. Ishida, T. Mito, S. Wada, J.L. Sarrao. *Phys. Rev. B* **66**, 014 420 (2002).
- [5] V.N. Antonov, M. Galli, F. Marabelli, A.N. Yeresko, A.Ya. Perlov, E. Bauer. *Phys. Rev. B* **62**, 1742 (2000).
- [6] H. Sato, K. Hiraoka, T. 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. Голубков, А.В. Гольцев, Н.Ф. Картенко, И.А. Смирнов, Cz. Sulkowski, Н. Мисиорек. *ФТТ* **49**, 1159 (2007).
- [8] И.А. Смирнов, Л.С. Парфеньева, А. Ежовский, Х. Мисиорек, С. Кремпел-Хассе, Ф. Риттер, В. Ассмус. *ФТТ* **41**, 1548 (1999).
- [9] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Риттер, В. Ассмус. *ФТТ* **44**, 973 (2002).
- [10] Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский, Ф. Риттер, В. Ассмус. *ФТТ* **44**, 1162 (2002).
- [11] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **43**, 210 (2001).
- [12] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек, Я. Муха, А. Ежовский. *ФТТ* **43**, 1739 (2001).
- [13] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, Ж. Муха, А. Jezowski. *ФТТ* **48**, 586 (2006).
- [14] А.В. Голубков, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Н. Мисиорек, Ж. Муха, А. Jezowski. *ФТТ* **49**, 19 (2007).
- [15] 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. Zerebma. *Phys. Rev. B* **63**, 144 401 (2001).
- [17] А.В. Голубков, Т.Б. Жукова, В.М. Сергеева. *Изв. АН СССР. Неорган. материалы* **2**, 77 (1966).
- [18] A. Jezowski, J. Mucha, G. Pompe. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **20**, 1500 (1987).
- [19] И.А. Смирнов, В.И. Тмарченко. *Электронная теплопроводность в металлах и полупроводниках.* Наука, Л. (1977). 151 с.