

05,11

Намагниченность и гигантское магнетосопротивление поликристаллов TbSb при низких температурах

© М.П. Волков, Н.Н. Степанов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: m.volkov@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 17 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 17 апреля 2019 г.

Принята к публикации 17 апреля 2019 г.

На поликристаллах антимонида тербия TbSb проведены исследования зависимостей намагниченности M и сопротивления R от температуры T в интервале 2–300 К и от магнитного поля H до $H = 14$ Т. Установлено, при температурах ниже температуры перехода TbSb в антиферромагнитную фазу ($T_N = 14.8$ К) на зависимостях $M(H)$ при каждой температуре наблюдается особенность (изгиб), связанный с метамагнитным фазовым переходом. Обнаружено гигантское положительное магнетосопротивление TbSb в области антиферромагнитной фазы.

Ключевые слова: антимонид тербия, намагниченность, магнетосопротивление, магнитные фазовые переходы.

DOI: 10.21883/FTT.2019.08.47971.457

Монониктиды редких земель $RE-X$ (где RE — Ln, а $X = N, P, As, Sb, Bi$) образуют семейство бинарных соединений, кристаллизующихся в структурном типе NaCl и отличающихся широким разнообразием электрических и магнитных свойств: от металлических до полупроводниковых, от парамагнитных до антиферромагнитных [1–4]. Перспективы практического применения этих материалов связаны с возможностью направленной вариации большого числа параметров, таких как: катион-анионный состав, концентрация свободных носителей тока, магнитные состояния. Одной из перспективных областей применения указанных материалов может, к примеру, оказаться разработка магнитных охладителей гелиевого диапазона температур [5].

Среди публикаций по исследованию магнитных, электрических и тепловых свойств монониктидов лантаноидов известно всего несколько экспериментальных и теоретических работ, посвященных изучению моноантимонида тербия (TbSb) [6–10]. Было установлено, что антиферромагнитное упорядочение наблюдается в указанном соединении при понижении температуры ниже $T_N \sim 15$ К и сопровождается магнотриксционным эффектом — тригональным искажением его кристаллической структуры. В [10] сообщается также об особенности строения антиферромагнитной фазы в монокристаллах TbSb: магнитные моменты катионов упорядочиваются ферромагнитно в плоскости (111) и антиферромагнитно в прилегающих слоях с ориентацией вдоль направления $\langle 111 \rangle$. В сильном магнитном поле возможно изменение магнитной структуры, что обусловлено квадрупольным эффектом взаимодействия магнитных моментов катионов [10]. Магнитные фазовые превращения могут проявляться и в процессах электропереноса TbSb,

Однако до настоящего времени комплексное изучение магнитных свойств и коэффициентов электропереноса TbSb в широком диапазоне температур и в сильных магнитных полях не проводилось.

В данной работе представлены результаты измерений температурных и полевых зависимостей электросопротивления (R) и намагниченности (M) поликристаллического моноантимонида тербия (TbSb) в температурной области 2–300 К в магнитных полях до 14 Т.

Образцы для исследований представляли собой поликристаллы, которые приготавливались методом сплавления элементов (Tb, Sb) в стехиометрической пропорции с последующим гомогенизирующим отжигом, аналогично процессу получения поли- и монокристаллов монокристаллоидов РЗЭ [11]. На первом этапе синтеза составлялась композиция из редкоземельного металла (Tb) в виде мелкой стружки (чистота $\geq 99.9\%$) и пниктогена (в нашем случае Sb) в виде тонкодисперсного порошка (чистота $\geq 99.99\%$), которая загружалась в кварцевую ампулу. Откаченная до 10^{-7} МПа и запаиваемая ампула помещалась в специальную двузонную печь, в которой РЗМ выдерживается при более высокой температуре, чем пниктоген, но не выше $\approx 600^\circ\text{C}$ и $\approx 450^\circ\text{C}$ соответственно в течение ~ 100 h. Для полного завершения реакции синтезированный материал подвергался дополнительному отжигу при $\sim 800^\circ\text{C}$ в молибденовом тигле в заполненной аргоном кварцевой ампуле с двойными стенками для предотвращения натекания воздуха через кварц в процессе нагрева. Вещество, полученное в результате синтеза, брикетировалось в пресс-формах при давлениях ~ 1 ГПа. Далее образцы подвергались гомогенизирующему отжигу при температуре $\sim 2000^\circ\text{C}$ в заваренных молибденовых тиглях, помещенных в кварцевые

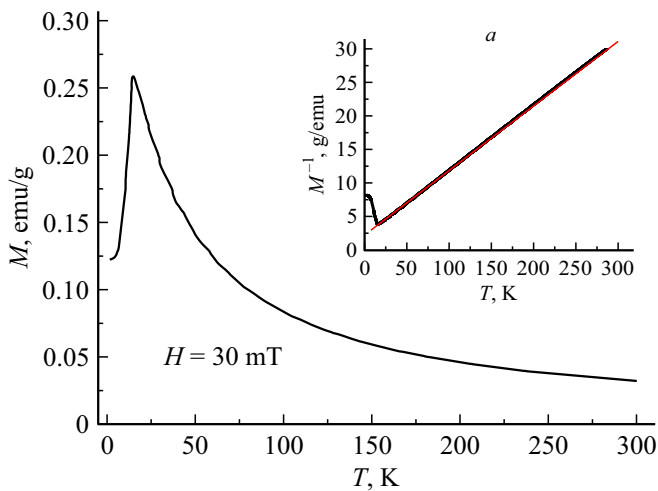


Рис. 1. Температурная зависимость намагниченности $M(H, T)$ поликристаллического антимионида тербия, a — зависимость $M^{-1}(H, T)$ TbSb.

ампулы. На этом этапе синтеза получаются однородные по составу поликристаллические слитки TbSb.

Рентгеноструктурный и рентгенофазовый анализы показали, что TbSb кристаллизуется в структурном типе NaCl и имеет постоянную решетки $a = 6.17 \text{ \AA}$. Иных фаз, кроме TbSb, в исследуемом материале не обнаружено. Из полученных поликристаллов вырезались образцы для последующих измерения зависимостей электросопротивления и намагниченности от температуры ($2 < T < 300 \text{ K}$) и магнитного поля ($H < 14 \text{ T}$). Зависимости намагниченности от температуры и магнитного поля измерялись на вибрационном магнитометре системы PPMS Quantum Design, измерение электросопротивления проводилось при токе 5 mA (ac mode).

На рис. 1 представлена температурная зависимость намагниченности M поликристаллического образца TbSb. Магнитное поле напряженностью 30 мТ прикладывалось вдоль большего размера образца. Намагниченность M возрастает при понижении температуры от комнатной (300 К) до $\approx 15 \text{ K}$. На вставке рис. 1, a приведена зависимость $M^{-1}(T)$, которая в указанной температурной области строго линейна, подтверждая, тем самым, соблюдение закона Кюри-Вейса для TbSb в парамагнитной области. Максимум температурной зависимости намагниченности достигается в антимиониде тербия при $T_N = 14.8 \text{ K}$, которая и является температурой Нееля для данного соединения. Полученное значение T_N совпадает с таковым, приведенным ранее в [10]. При нескольких фиксированных температурах были измерены зависимости намагниченности M поликристалла TbSb от магнитного поля H (рис. 2, a), а на рис. 2, b представлены частные производные указанных зависимостей по магнитному полю ($\partial M/\partial H$).

Из рис. 2, a видно, что при $T < 15 \text{ K}$ функциональные зависимости $M(H, T)$ имеют вид кривых с перегибом, а на полевых зависимостях их производных

$\partial M(H, T)/\partial H$ (см. рис. 2, b) наблюдаются резкие максимумы, соответствующие точкам перегиба исходных функций $M(H, T)$. При температурах 2 К и 4 К зависимости $\partial M/\partial H$ практически совпадают, а при дальнейшем повышении температуры максимумы полевых производных M или, другими словами, величина магнитного поля H , при котором наблюдается перегиб функции M , смещается в область малых полей и исчезает при переходе в парамагнитную область (см. рис. 3). На этом же рисунке представлена температурная зависимость магнитного поля H_{max} , соответствующего точкам перегиба функции $M(H, T)$, полученная для монокристалла TbSb при ориентации H вдоль направления $\langle 111 \rangle$ [10], которое является направлением легкого намагничивания [12].

В температурной области 2–15 К с ростом напряженности магнитного поля в TbSb происходит магнитный фазовый переход (МФП) первого рода, связанный с перестройкой магнитной структуры соединения [10], что отражается на зависимостях $M(H)$ поли- и монокристаллов в виде изломов (перегибов) и можно ожидать,

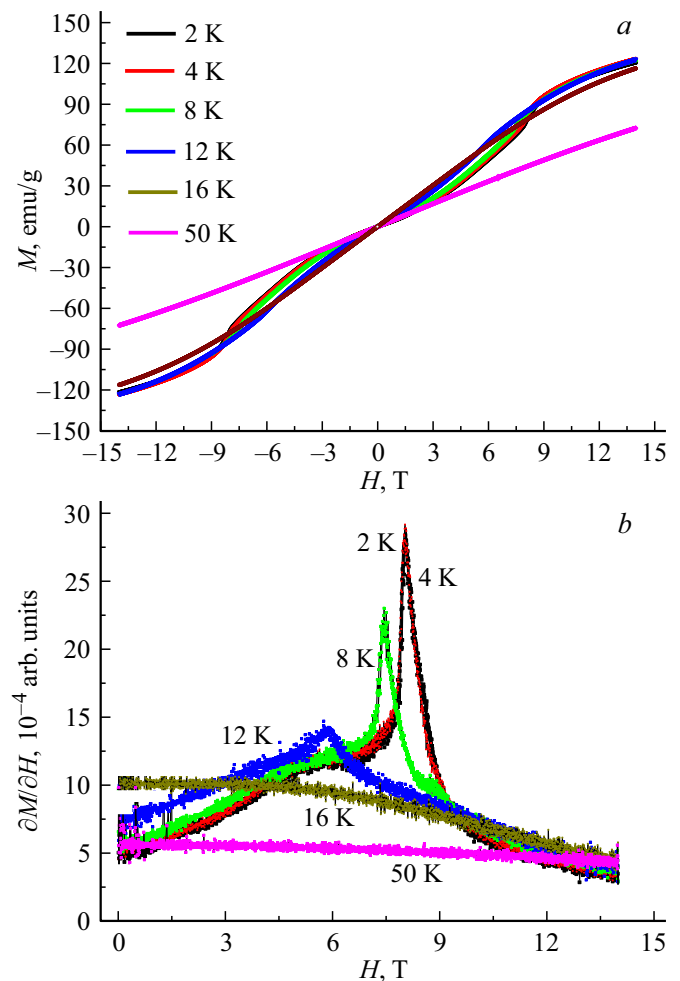


Рис. 2. Полевые зависимости удельного магнитного момента TbSb (a) и его производной по полю (b) при различных температурах.

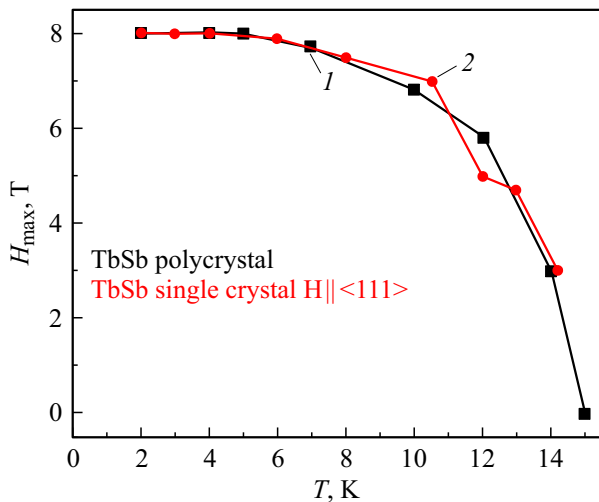


Рис. 3. Температурная зависимость магнитного поля H_{max} , соответствующего точкам перегиба функции $M(H, T)$ 1 — данные настоящей работы; 2 — данные [10].

в магнитном поле 14 Т превосходит значение $R(H = 0)$ в ≈ 45 раз.

Полевые зависимости электросопротивления образцов TbSb, полученные при различных температурах (представлены на рис. 5), достаточно хорошо описываются классической квадратичной функцией $R \sim H^2$, однако обнаруживают незначительные особенности в виде изломов, наблюдаемых на кривых $R(H, T)$ при $T = 2$ К, 5 К и, в меньшей степени, при 10 К. Более отчетливо отклонения от квадратичной зависимости электросопротивления антимонида тербия от индукции магнитного поля можно наблюдать, если построить графики частных производных $\partial R/\partial H$ TbSb при различных температурах. Для трех температур $T = 2$ К, 5 К и 10 К такие графики приведены на рис. 6. На полевых зависимостях производных электросопротивления по полю $\partial R/\partial H$, представленных на рис. 6, присутствуют аномалии в виде отклонений от линейности, характеризующие нарушение

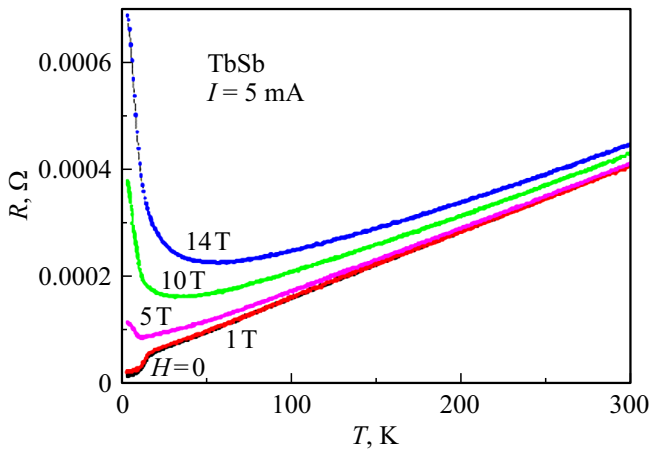


Рис. 4. Температурные зависимости электросопротивления TbSb в магнитных полях $H = 0, 1, 5, 10$ и 14 Т.

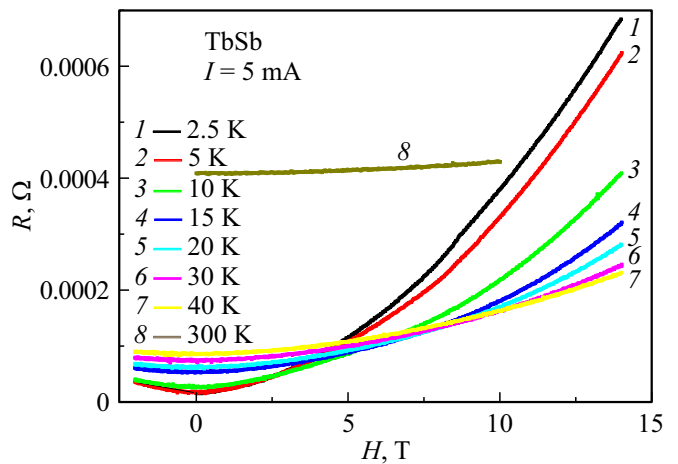


Рис. 5. Зависимости электросопротивления поликристаллического TbSb от магнитного поля при различных температурах.

что наличие такого перехода будет наблюдаться и на зависимостях электросопротивления R от магнитного поля.

Зависимости электросопротивления от температуры при фиксированных значениях магнитного поля, приложенного нормально направлению измерительного тока, представлены на рис. 4. Зависимость $R(T)$ при $H = 0$ линейно убывает до $T \sim 15$ К, что характерно для металлического типа проводимости. При меньших температурах наблюдается резкое падение зависимости $R(T)$, обусловленное переходом TbSb в антиферромагнитное состояние, а затем величина R далее практически не меняется, поскольку определяется остаточным электросопротивлением образца.

Во всем исследованном температурном интервале наблюдается большое магнетосопротивление TbSb, наиболее отчетливо выраженное при низких температурах. При температуре $T = 3$ К электросопротивление TbSb

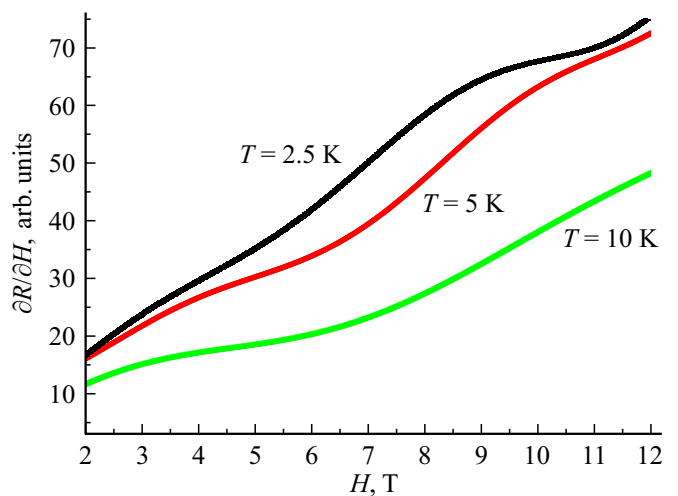


Рис. 6. Зависимости производных $\partial R/\partial H$ (a) поликристаллического образца TbSb от магнитного поля при температурах 2.5 К, 5 К, 10 К.

ние квадратичного закона изменения функции $R(H, T)$. Можно предположить, что особенности $R(H)$ также связаны с магнитным фазовым переходом, приводящим к особенностям в $M(H)$. Так, для родственного соединения NdSb при измерениях на монокристаллах обнаружены небольшие скачки на зависимости $R(H)$, наблюдающиеся именно при полях магнитных фазовых переходов [13]. Для поликристаллических образцов TbSb особенности на зависимостях $R(H, T)$ сильно сглажены и не позволяют определить характерные поля с такой же точностью, как это возможно для зависимостей $M(H)$.

Таким образом, при исследовании зависимостей намагниченности M и электросопротивления R поликристаллического TbSb обнаружено, что при $T_N = 14.8$ К материал переходит в антиферромагнитную фазу, при $T < T_N$ на зависимостях $M(H)$ наблюдаются перегибы, соответствующие магнитному фазовому переходу. Значения магнитных полей этих особенностей совпадают со значениями полей магнитного перехода, наблюдавшегося ранее в [10] при ориентации магнитного поля вдоль оси $\langle 111 \rangle$ монокристалла TbSb. Обнаружено гигантское положительное магнетосопротивление TbSb в области антиферромагнитной фазы, при этом на зависимостях $R(H)$ также наблюдаются сглаженные особенности.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии у них конфликта интересов.

Список литературы

- [1] F. Hulliger. Rare Earth Pnictides. In: Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths. / Eds. Karl A. Gschneidner, Jr. LeRoy Eyring. North-Holland, Amsterdam. (1979). V. 4. Ch. 33. P. 153.
- [2] M.N. Abdusalyamova, O.R. Burmashev, K.E. Mironov. J. Less-Commun. Met. **77**, 1, 81.
- [3] Н.Н. Степанов, Н.В. Морозова, А.Е. Карькин, А.В. Голубков, В.В. Каминский. ФТТ **57**, 12, 2300 (2015).
- [4] F. Leuenberger, A. Parge, W. Felsch, K. Fauth, M. Hessler. Phys. Rev. B **72**, 1, 014427-1 (2005).
- [5] H. Nakane, S. Yamazaki, H. Fujishiro, T. Yamaguchi. Low Temperature Properties of HoSb, DySb. Cryocoolers 11 / Ed. R.G. Ross, Jr. Kluwer. Academic Plenum Publishers (2001) 443-448.
- [6] T.M. Holden, E.C. Svensson, W.J.L. Buyers, O. Vogt. Phys. Rev. B **10**, 9, 3864 (1974).
- [7] P.J. von Ranke, P.O. Ribeiro, A. Magnus, G. Carvalho, B.P. Alho, T.S.T. Alvarenga, E.P. Nobrega, A. Caldas, V.S.R. de Sousa, P.H.O. Lopes, N.A. de Oliveira. J. Appl. Phys. **119**, 18, 183903-1 (2016).
- [8] Y. Nakanishi, T. Sakon, M. Motokawa, M. Ozawa, T. Suzuki. Phys. Rev. B **69**, 2, 024412-1 (2004).
- [9] A. Buschbeck, Ch. Chojnowski, J. Kötzler, R. Sonder, G. Thummes. JMMM **69**, 2, 171 (1987).
- [10] Y. Nakanishi, T. Sakon, M. Motokawa, M. Ozawa, T. Suzuki, M. Yoshizawa. Phys. Rev. B **68**, 14, 144427-1 (2003).

- [11] А.В. Голубков, В.М. Сергеева. Физика и химия редкоземельных полупроводников (Химия и технология). УНЦ АН СССР, Свердловск (1977) С. 28–35.
- [12] T. Sakon, Y. Nakanishi, M. Ozawa, H. Nojiri, T. Suzuki, M. Monokawa. JMMM **177-181**. Part 1. P. 355 (1998).
- [13] Y. Zhou, X. Zhu, Sh. Huang, X. Chen, Y. Zhou, Ch. An, B. Zhang, Y. Yuan, Z. Xia, Ch. Gu, Z. Yang. Phys. Rev. B **96**, 205122-1 (2017).

Редактор Т.Н. Василевская