

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СТРОНЦИЙ-ЗАМЕЩЕННЫХ ФЕРРИМАНГАНИТОВ ТУЛИЯ И ИТТЕРБИЯ

Аннотация.

Актуальность и цели. Существенная взаимосвязь магнитных (с одной стороны, проводящих, а с другой – сегнетоэлектрических) свойств диамагнитно-замещенных манганитов редкоземельных элементов может быть использована для создания различных спинтронных устройств. Большинство экспериментальных исследований к настоящему времени посвящено изучению эффекта гигантского магнитосопротивления в диамагнитно-разбавленных манганитах «легких» лантаноидов, имеющих перовскитоподобную кристаллическую решетку. Манганиты «тяжелых» лантаноидов менее исследованы с этой точки зрения.

Материалы и методы. Манганиты тулия $Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$ и иттербия $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$ с частичным замещением лантаноида на стронций, а марганца на железо приготовлены по керамической технологии. Исследованы их электропроводность и гальваномагнитные явления, в том числе гигантское магнитосопротивление, в широком интервале температур и магнитных полей.

Результаты. На температурной зависимости удельного сопротивления $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$ обнаружена точка перехода «металл–диэлектрик» (T_M), которая сдвигается в сторону высоких температур с ростом внешнего магнитного поля.

Выводы. Стронций-замещенные ферриманганиты «тяжелых» лантаноидов (Tm, Yb), также как и манганиты «легких» лантаноидов, являются полупроводниками, причем при тех же концентрациях диамагнитных ионов удельное сопротивление «ильменитов» на несколько порядков выше, чем «перовскитов». В магнитном поле происходит сдвиг температуры T_M в область высоких температур, что приводит к «биполярному» магнитосопротивлению. Абсолютная величина δ достигает нескольких десятков процентов при температурах, близких к комнатной.

Ключевые слова: ферриманганиты, электропроводность, магнитосопротивление, эффект Холла.

*A. R. Kharmatullin, I. F. Gil'mutdinov,
V. V. Parfenov, I. I. Nig'matullina*

ELECTRICAL PROPERTIES OF STRONTIUM-SUBSTITUTED FERRIMANGANITES OF THULIUM AND YTTERBIUM

Abstract.

Background. The essential interrelation of magnetic properties with conducting and ferroelectric properties of diamagnetic-substituted manganites of rare-earth elements can be used to create various spintronic devices. Most of the experimental studies to date have been devoted to the study of the giant magnetoresistance (GMR) effect in diamagnetically diluted manganites of "light" lanthanides having a perovskite-like crystal lattice. The manganites of the "heavy" lanthanides having a ilmenite-like crystal lattice are less investigated from this point of view.

Materials and methods. Manganites of thulium $Tm_{0.65}Sr_{0.35}Fe_{0.3}Mn_{0.7}O_3$ and ytterbium $Yb_{0.82}Sr_{0.18}Fe_{0.15}Mn_{0.85}O_3$ with partial replacement of lanthanide to strontium, and manganese to iron are prepared according to ceramic technology. Their electrical conductivity and galvanomagnetic phenomena, including GMR, were studied in a wide range of temperatures and magnetic fields.

Results. The temperature dependence of the resistivity, $Yb_{0.82}Sr_{0.18}Fe_{0.15}Mn_{0.85}O_3$, reveals a metal-insulator transition point (T_{MI}), which shifts toward higher temperatures with increasing external magnetic field.

Conclusions. Strontium-substituted ferrimanganites of "heavy" lanthanides (Tm, Yb) are semiconductors, but at the same concentrations of diamagnetic ions the resistivity of "ilmenites" is several orders of magnitude higher than "perovskites".

In a magnetic field, the T_{MI} temperature shifts to high temperatures, which leads to a "bipolar" magnetoresistance. The absolute value of δ reaches several tens of percent at temperatures close to room temperature.

Key words: ferrimanganites, electrical conductivity, magnetoresistance, Hall effect.

Введение

Магнитные полупроводники – диамагнитно-замещенные манганиты редкоземельных элементов – обладают рядом необычных гальваномагнитных свойств, в том числе гигантским магнитосопротивлением (ГМС), достигающим сотен процентов [1], нетривиальными термомагнитными свойствами [2]. Эти эффекты могут представлять практическую значимость для устройств записи/считывании информации, спинтронных устройств и т.п. Существенным недостатком манганитов следует признать то, что максимальные величины гальвано- и термомагнитных эффектов наблюдаются в них при температурах так называемого перехода «металл–диэлектрик» (T_{MI}), лежащих ниже комнатной температуры. Эта температура, в свою очередь, коррелирует, но не обязательно совпадает, с температурой магнитного фазового перехода T_C . Температуру T_C можно увеличить частичной заменой катионов Mn^{3+} ($S = 2$) на катионы с большим спином Fe^{3+} ($S = 5/2$). При этом магнитосопротивление (МС) ферриманганитов при температурах, близких к комнатной, становится «биполярным», т.е. может быть отрицательным при одних температурах и положительным при других, а абсолютная величина МС может составлять нескольких десятков процентов [3].

Методика эксперимента

Нами исследованы электрические и гальваномагнитные свойства керамических образцов стронций-замещенных ферриманганита тулия

$Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$ и иттербия $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$. В отличие от манганитов «легких» лантаноидов, кристаллизующихся в орторомбической перовскитоподобной структуре, манганиты «тяжелых» тулия и иттербия кристаллизуются в ильменито-подобной решетке с гексагональной симметрией. Однофазность образцов контролировалась методом рентгеноструктурного анализа. Установлено, что ферриманганит $Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$ кристаллизуется в решетке с гексагональной симметрией (пространственная группа $R\bar{6}_3cm$). Для ферриманганита иттербия при той же концентрации диамагнитного катиона Sr^{2+} однофазных образцов получить не удалось, что связано, по нашему мнению, с большой разницей ионных радиусов катионов иттербия и стронция [4]. При уменьшении концентрации иона-заместителя в 2 раза образцы $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$ на 95 % состоят из основной гексагональной фазы, хотя небольшое количество орторомбического ($Pbnm$) $Sr(Mn, Fe)O_3$ все же присутствует.

Для обоих образцов изучены температурные зависимости удельного сопротивления, магнитосопротивления образцов, а также зависимость электрического сопротивления от внешнего магнитного поля. Измерения проводились четырехзондовым методом Ван дер Пау на приборе Physical Property Measurement System (PPMS), омичность контактов из индий-галлиевой пасты проверялась по их вольт-амперным характеристикам. Диапазон температур составлял 180–350 К, магнитных полей 0–9 Тл.

Результаты и их обсуждение

В табл. 1 представлены некоторые электрические и гальваномагнитные параметры образцов.

Таблица 1

Электрические параметры ферриманганитов тулия и иттербия

Соединение	ρ , Ом·см (300 К)	E_A , эВ	δ_{max} , % ($B = 9$ Тл)
$Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$	22	0,33	-15 ($T = 264$ К)
$Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$	$8,4 \cdot 10^4$	0,24	+29 ($T = 309$ К)

На рис. 1 представлена зависимость удельного сопротивления от температуры для образца $Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$. Видно, что во всем диапазоне температур наблюдается типичная полупроводниковая зависимость, т.е. с увеличением температуры сопротивление падает, зависимость $\rho(T)$ имеет активационный характер и в нулевом магнитном поле, и в поле 9 Тл. При наложении поля удельное сопротивление образца увеличивается, т.е. наблюдается небольшое положительное магнитосопротивление.

На рис. 2 представлена зависимость удельного сопротивления от температуры для образца $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$. При сохранении в целом полупроводникового характера проводимости величина удельного сопротивления этого образца на три порядка больше удельного сопротивления ферриманганита тулия. Кроме того, на зависимости $\rho(T)$ при $T = 258$ К появляется область со сменой знака температурного коэффициента $\partial\rho/\partial T$, отвечающая переходу «металл–диэлектрик». При этом температура перехода в магнитно-упорядоченную фазу, как показали мессбауэровские измерения, у этого об-

разца существенно ниже [4]. Магнитная сверхтонкая структура в мессбауэровских спектрах отсутствует при $T = 180$ К и появляется при $T = 80$ К. Следовательно, в интервале температур 80–260 К магнитная микроструктура образца отвечает так называемой фазе Гриффитса [5]. Температура перехода (T_M) увеличивается при наложении внешнего магнитного поля, т.е. МС должно иметь отрицательную и положительную составляющие.

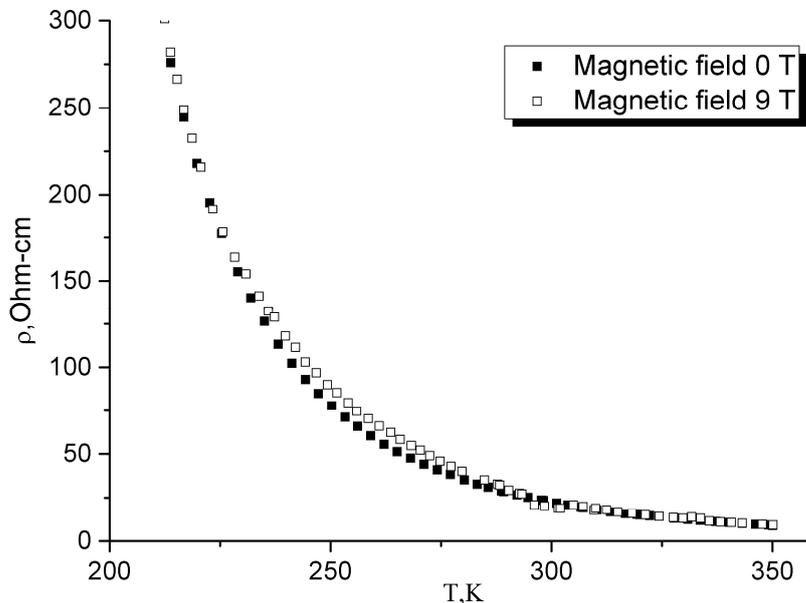


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления для образца $Tm_{0,65}Sr_{0,35}Fe_{0,3}Mn_{0,7}O_3$

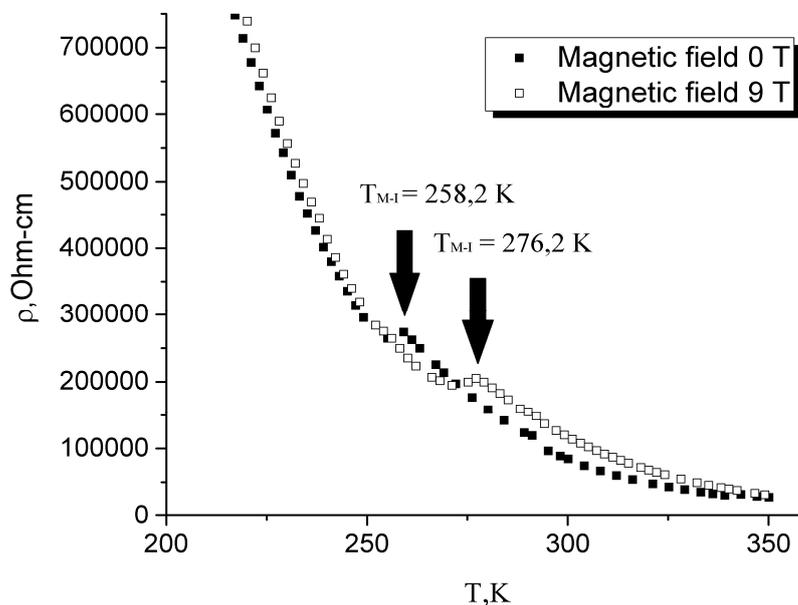


Рис. 2. Температурная зависимость удельного сопротивления для образца $Yb_{0,82}Sr_{0,18}Fe_{0,15}Mn_{0,85}O_3$

В качестве параметра, характеризующего эффект МС, нами выбрано отношение разности удельного сопротивления во внешнем магнитном поле и без него к сопротивлению в магнитном поле, как это принято для магнитных полупроводников:

$$\delta(H, T) = \frac{\rho(H, T) - \rho(0, T)}{\rho(H, T)}, \quad (1)$$

«Биполярное» магнитосопротивление $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$ представлено на рис. 3. Максимальное значение положительной составляющей магнитосопротивления достигается при температуре, близкой к комнатной (309,2 К) и составляет 29,3 %, что сравнимо со значениями, получаемыми в многослойных системах из ферромагнитных и немагнитных металлов. Максимум отрицательной составляющей магнитосопротивления – 15 % при температуре 264,2 К.

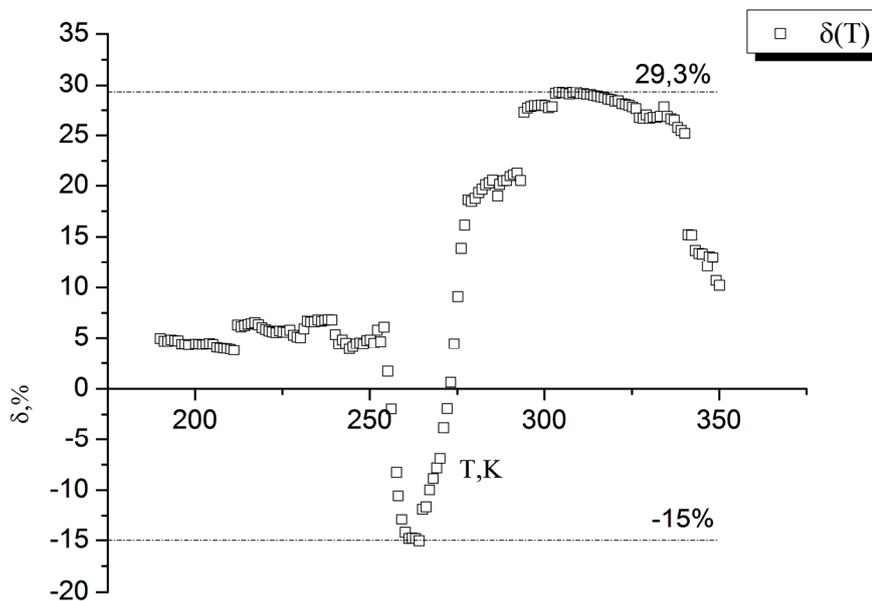
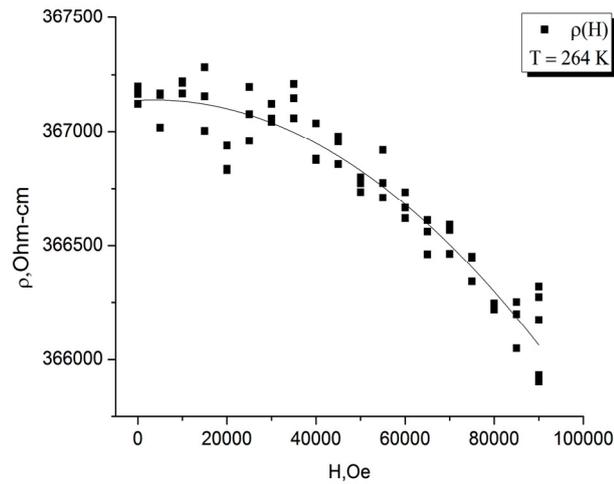


Рис. 3. Температурная зависимость магнитосопротивления $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$

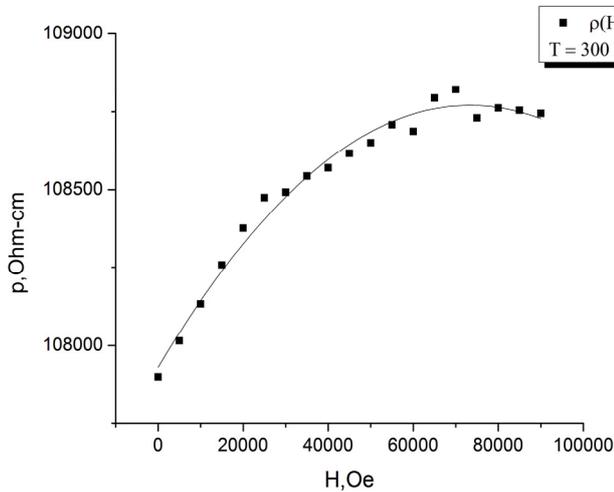
Полевые зависимости ρ для образца состава $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$ получены при температурах 264 К и 300 К (рис. 4), т.е. и для отрицательной, и для положительной составляющих МС.

Для образца $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$ были выполнены оценки подвижности и концентрации носителей заряда по холловским измерениям. Во всем температурном диапазоне холловские измерения провести не удалось из-за высокого сопротивления образца (и, соответственно, малого рабочего тока) при низких температурах. Поэтому в табл. 2 приведены холловские данные только при комнатной температуре.

По знаку коэффициента Холла видно, что носителями заряда являются электроны. Небольшая подвижность (менее $1 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$) является типичной для оксидных магнитных полупроводников.



a)



b)

Рис. 4. Зависимость удельного сопротивления образца $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$ от внешнего магнитного поля H при температурах 264 К (a), 300 К (б)

Таблица 2

Подвижность и концентрация носителей заряда для образца $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$

$R_H, \text{см}^3/\text{Кл}$	$\mu, \text{см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$	$n, \text{см}^{-3}$
$-0,6 \cdot 10^5$	0,76	$1 \cdot 10^{14}$

Заключение

В результате исследований электрических свойств стронций-замещенных ферриманганитов тулия $\text{Tm}_{0,65}\text{Sr}_{0,35}\text{Fe}_{0,3}\text{Mn}_{0,7}\text{O}_3$ и иттербия $\text{Yb}_{0,82}\text{Sr}_{0,18}\text{Fe}_{0,15}\text{Mn}_{0,85}\text{O}_3$ было установлено:

1. Стронций-замещенные ферриманганиты «тяжелых» лантаноидов (Tm, Yb), так же как и манганиты «легких» лантаноидов, являются полупроводниками.

2. При тех же концентрациях диамагнитных ионов удельное сопротивление «ильменитов» на несколько порядков выше, чем «перовскитов».

3. В магнитном поле происходит сдвиг температуры T_M в область высоких температур, что приводит к «биполярному» магнитосопротивлению.

4. Абсолютная величина δ достигает несколько десятков процентов при температурах, близких к комнатной.

Библиографический список

1. **Нагаев, Э. Л.** Манганиты лантана и другие магнитные проводники с гигантским магнитосопротивлением / Э. Л. Нагаев // *Успехи физических наук*. – 1996. – Т. 166, № 8. – С. 833–857.
2. **Asamitsu, T.** Thermoelectric effect in $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ / T. Asamitsu, Y. Moritomo, Y. Tokura // *Phys. Rev. B*. – 1996. – Vol. 53, № 6, – P. 2952–2955.
3. **Парфенов, В. В.** Электрические и магнитные свойства свинец-замещенных ферри-манганитов лантана / В. В. Парфенов, Ш. Ш. Башкиров, А. А. Валиуллин, А. В. Аверьянов // *Физика твердого тела*. – 2000. – Т. 42. – С. 1272–1274.
4. Исследование Sr-допированных ферроманганитов иттербия методами ЭПР и мессбауэровской спектроскопии / И. И. Нигьматуллина, В. В. Парфенов, Р. М. Еремина, Т. П. Гаврилова, И. В. Яцык // *Физика твердого тела*. – 2018. – Т. 60, № 5. – С. 933–939.
5. **Криворучко, В. Н.** Фаза Гриффитса, магнитные и транспортные свойства допированных манганитов / В. Н. Криворучко, М. А. Марченко // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2012. – Т. 142, № 1. – С. 138–150.

References

1. Nagaev E. L. *Uspekhi fizicheskikh nauk* [Progress of physical sciences]. 1996, vol. 166, no. 8, pp. 833–857.
2. Asamitsu T., Moritomo Y., Tokura Y. *Phys. Rev. B*. 1996, vol. 53, no. 6, pp. 2952–2955.
3. Parfenov V. V., Bashkirov Sh. Sh., Valiullin A. A., Aver'yanov A. V. *Fizika tverdogo tela* [Solid state physics]. 2000, vol. 42, pp. 1272–1274.
4. Nig'matullina I. I., Parfenov V. V., Eremina R. M., Gavrilova T. P., Yatsyk I. V. *Fizika tverdogo tela* [Solid state physics]. 2018, vol. 60, no. 5, pp. 933–939.
5. Krivoruchko V. N., Marchenko M. A. *Zhurnal eksperimental'noy i teoreticheskoy fiziki* [Journal of experimental and theoretical physics]. 2012, vol. 142, no. 1, pp. 138–150.

Харматуллин Айнура Рашитович
магистрант, Казанский федеральный
университет (Россия, г. Казань,
ул. Кремлевская, 16А)

Kharmatullin Aynur Rashitovich
Master's degree student, Kazan Federal
University (16A Kremlyovskaya street,
Kazan, Russia)

E-mail: kharmatullin@mail.ru

Гильмутдинов Ильдар Фаритович

младший научный сотрудник,
центр квантовых технологий,
Казанский федеральный университет
(Россия, г. Казань, ул. Кремлевская, 16А)

E-mail: IFGilmutdinov@kpfu.ru

Gil'mutdinov Il'dar Faritovich

Junior researcher, quantum technology
center, Kazan Federal University
(16A Kremlyovskaya street, Kazan, Russia)

Парфенов Виктор Всеволодович

доктор физико-математических наук,
профессор, кафедра физики твердого
тела, Казанский федеральный
университет (Россия, г. Казань,
ул. Кремлевская, 16А)

E-mail: Viktor.Parfenov@kpfu.ru

Parfenov Viktor Vsevolodovich

Doctor of physical and mathematical
sciences, professor, sub-department
of solid state physics, Kazan Federal
University (16A Kremlyovskaya street,
Kazan, Russia)

Нигьматуллина Ильсияр Илдусовна

аспирант, Казанский федеральный
университет (Россия, г. Казань,
ул. Кремлевская, 16А)

E-mail: Nigma@svel.ru

Nig'matullina Il'siyar Ildusovna

Postgraduate student, Kazan Federal
University (16A Kremlyovskaya street,
Kazan, Russia)

УДК 537.312.8

Харматуллин, А. Р.

Электрические свойства стронций-замещенных ферриманганитов тулия и иттербия / А. Р. Харматуллин, И. Ф. Гильмутдинов, В. В. Парфенов, И. И. Нигьматуллина // Известия высших учебных заведений. Поволжский регион. Физико-математические науки. – 2018. – № 3 (47). – С. 79–86. – DOI 10.21685/2072-3040-2018-3-7.