Особенности поведения магнитосопротивления и магнитных свойств в Bi_{95.69}Mn_{3.69}Fe_{0.62}

А.В. Терехов¹, К. Рогацкий², А.Л. Соловьев¹, А.Н. Блудов¹, А.И. Прохватилов¹, В.В. Мелешко¹, И.В. Золочевский¹, Е.В. Христенко¹, Я. Цвик², А. Лось², А.Д. Шевченко³, З.Д. Ковалюк⁴, О.М. Ивасишин³

> ¹ Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина E-mail: terekhov.andrii@gmail.com

> > ²W. Trzebiatowski Institute for Low Temperatures & Structure Research PAS, P.O. Box 1410, 50–950, Wroclaw, Poland

³Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины, пр. Вернадского, 36, г. Киев, 03142, Украина

⁴Институт Проблем материаловедения им. И.М. Францевича НАН Украины, Черновицкое отделение ул. И. Вильде, 5, г. Черновцы, 58001, Украина

Статья поступила в редакцию 16 апреля 2018 г., опубликована онлайн 26 сентября 2018 г.

Исследован текстурированный поликристалл $Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}$, содержащий две фазы — висмутовую матрицу и включения α -BiMn фазы. Показано, что аномальное поведение температурных зависимостей намагниченности может быть связано с переориентационным переходом магнитных моментов Mn в α -BiMn фазе вследствие изменения знака константы магнитной анизотропии. Установлено, что в магнитном поле температурные зависимости электросопротивления ведут себя немонотонным образом, а магнитосопротивление положительно во всей области температур и достигает максимальной величины 3033% в магнитном поле 140 кЭ для ориентации, когда магнитное поле перпендикулярно транспортному току. Выявлена сильная анизотропия электросопротивления при измерениях в магнитном поле. Предполагается, что аномальное поведение температурных зависимостей электросопротивления в $Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}$ по сравнению с чистым висмутом связано с изменением степени перекрытия между электронными и дырочными участками поверхности Ферми под влиянием магнетизма α -BiMn фазы, а также величины и направления внешнего магнитного поля.

Ключевые слова: магнитосопротивление, анизотропия электросопротивления, переориентационный переход, спиновое стекло, электронные и дырочные участки поверхности Ферми, α-BiMn фаза, висмут.

Введение

Висмут обладает уникальными электронными свойствами, поэтому интерес к его всестороннему изучению не ослабевает уже больше 100 лет. К таким свойствам можно отнести: малые эффективные массы носителей заряда (порядка $10^{-2}-10^{-1}$ массы свободного электрона), малое количество носителей заряда (порядка 10^{-5} электрон на атом), большая длина свободного пробега электронов (достигает 1 мм), энергия Ферми E_F — порядка нескольких сотых электронвольта (в простых металлах E_F составляет величину порядка нескольких эВ). Кроме того, висмут имеет большую диэлектрическую (порядка 10⁻⁵) и большую диамагнитную (~100) проницаемости, а также *g*-фактор, достигающий 200. Благодаря этим свойствам на висмуте впервые были экспериментально обнаружены: эффекты Шубникова–де Гааза и де Гааза–ван Альфена, большое положительное магнитосопротивление, циклотронный резонанс в металле, осциллирующая магнитострикция, незатухающие СВЧ волны, а также ряд размерных эффектов [1,2]. Долгое время считалось, что объемный висмут не переходит в сверхпроводящее состояние при нормальном давлении. Однако недавно группа индийских ученых

А.В. Терехов, К. Рогацкий, А.Л. Соловьев, А.Н. Блудов, А.И. Прохватилов, В.В. Мелешко, И.В. Золочевский, Е.В. Христенко,
 Я. Цвик, А. Лось, А.Д. Шевченко, З.Д. Ковалюк, О.М. Ивасишин, 2018

обнаружила такой переход в монокристаллическом висмуте при сверхнизких температурах ($T_c \approx 0.5$ мK) [3].

Не только чистый висмут представляет большой интерес, но и его соединения. Среди них, например, высокотемпературный сверхпроводник $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10+x}$ (BiSCCO, Bi-2223) с температурой сверхпроводящего перехода, достигающей 110 К [4], сплав состава 88% Ві и 12% Sb, который обнаруживает аномальный эффект магнитосопротивления в магнитном поле [5] и, наконец, ВіМп сплавы, которым отводится особое место среди постоянных магнитов [6,7].

ВіМп — ферромагнетик, имеющий высокую температуру перехода в ферромагнитное состояние $T_C \approx 640$ К. ВіМп твердые растворы интересны тем, что имеют высокие значения коэрцитивной силы при комнатной температуре. С увеличением температуры она растет до значений, превышающих коэрцитивную силу постоянных магнитов на основе редкоземельных элементов [6,7]. Это, а также дешевизна рассматриваемых материалов по сравнению с редкоземельными магнитами делает их привлекательными для практического применения в высокотемпературных приложениях.

В то же время обращает на себя внимание тот факт, что, несмотря на огромное количество работ, посвященных изучению магнитных свойств BiMn сплавов, исследования поведения электрического транспорта в них почти не проводились. Недавно нашей группой было впервые выявлено колоссальное положительное анизотропное магнитосопротивление в сплаве Bi95.69Mn_{3.69}Fe_{0.62} [8].

В настоящей работе мы продолжаем исследовать магнитосопротивление в Bi95,69Mn3,69Fe0,62 и параллельно проводим исследования структурных и магнитных свойств для выяснения природы аномалий, наблюдаемых на температурных зависимостях электросопротивления в магнитном поле.

Образцы и методики эксперимента

Исходными компонентами для получения образцов были висмут и марганец чистоты > 99,999%. Контейнерами для синтеза и выращивания материала служили графитизированные кварцевые ампулы Ø 16–18 мм, вакуумированные до остаточного давления ~10⁻² Па. Синтез проводили в горизонтальной трубчатой печи типа СУОЛ. Образцы сплава были получены кристаллизацией по методу Бриджмена при температуре 630 К со скоростью роста 1,5 мм/ч. При таком методе выращивания возможно получение монокристаллических или крупнокристаллических текстурированных образцов. Для выращивания качественных материалов необходима стабилизация температуры в печи (особенно на фронте кристаллизации), которая поддерживалась при помощи терморегулирующих устройств типа РИФ-101 с точностью $\pm 0,5$ °C.

Конечные слитки были получены в виде цилиндров. Для измерения электрического сопротивления вдоль основания цилиндра (условно перпендикулярно оси *с*) вырезались образцы в виде параллелепипедов с размерами приблизительно 7×2×2 мм. Для измерения магнитных свойств из этих же параллелепипедов вырезались небольшие образцы массой до 10 мг.

Тестирование выращенных образцов было проведено при комнатной температуре с помощью рентгеновского анализа на дифрактометре ДРОН-3 в K_{α} -излучении медного анода ($\lambda = 1,54178$ Å). Определение количественного элементного состава и наблюдение микроструктуры проводилось с использованием сканирующего электронного микроскопа (SEM).

Резистивные и магниторезистивные измерения выполнялись с использованием стандартной четырехзондовой схемы на автоматизированном комплексе Quantum Design PPMS. Токовые и потенциальные контакты были сделаны с помощью серебряной пасты. Измерения выполнялись на переменном токе (I = 30 мA, f = 17 Гц), направленном вдоль большего размера образца, как без поля, так и в поперечных и продольных по отношению к току магнитных полях вплоть до 140 кЭ в интервале температур 4,2–300 К.

Измерения намагниченности проводили на вибрационном магнитометре в интервале температур 4,2–300 К в двух режимах. В первом — образец охлаждался без поля до 4,2 К, затем включалось магнитное поле и измерялась намагниченность при нагреве (режим zero field cooling, ZFC). Во втором режиме сразу проводились измерения намагниченности в поле при охлаждении образца от комнатной температуры (режим field cooling, FC). Динамическая магнитная восприимчивость $\chi'(\omega, T)$ и $\chi''(\omega, T)$ измерялась в том же интервале температур, что и намагниченность, при частотах переменного поля от 100 Гц до 10 кГц и амплитуде 15 Э. Магнитное поле было направлено как вдоль основания цилиндра (условно **H** \perp **c**), так и перпендикулярно этому направлению (**H** || **c**).

В этих измерениях постоянное магнитное поле создавалось сверхпроводящим соленоидом.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Структурные исследования

Согласно результатам исследования с использованием сканирующего электронного микроскопа, количественный элементный состав полученного сплава был следующим: 95,69 ат.% Ві, 3,69 ат.% Мп и 0,62 ат.% Fe. К сожалению, не удалось сделать качественный шлиф поверхности на разломе для получения хорошей визуализации микроструктуры. Вместе с тем, принимая во внимание данные количественного анализа и соотнося их с фазовой диаграммой для твердых растворов Bi–Mn [9], с большой долей вероятности можно предположить, что образец представляет собой висмутовую матрицу, в которой имеются включения α-BiMn фазы.

С целью получения большей информации о структуре исследуемого сплава нами были также проведены рентгеноструктурные исследования на дифрактометре ДРОН-3 в K_{α} -излучении медного анода ($\lambda = 1,54178$ Å). Полученные нами рентгеновские дифрактограммы свидетельствуют о поликристалличности образцов. Установлено, что поликристалл имеет гексагональную решетку с параметрами a = 4,558 Å, c = 11,885 Å, $\beta = 120^{\circ}$, которые немного больше, чем для чистого висмута $(a = 4,54 \text{ Å}, c = 11,82 \text{ Å}, \beta = 120^\circ)$. Это позволяет говорить о том, что в твердом растворе может присутствовать не только чистый висмут, но и слабый раствор атомов Mn в гексагональной решетке висмута. Вместе с этим, присутствие на дифракционных картинках рефлекса (202), который отсутствует в чистом висмуте, может указывать и на наличие небольшого количества α-BiMn фазы [10]. Согласно фазовой диаграмме системы Bi-Fe [9], железо не создает интерметаллических фаз с висмутом, и, таким образом, в нашем соединении также присутствуют в незначительном количестве отдельные включения железа.

Возможная текстурированность исследованных нами образцов проверялась параллельным исследованием рентгенограмм как массивного сплошного поликристаллического сплава, так и его порошка. Порошок был получен при спиливании мелким напильником части массивного образца. Рентгенограммы сплошного и измельченного образцов приведены на рис. 1, а результаты их обработки представлены в табл. 1.

Видно, что рентгенограммы сплошного и порошкового образцов качественно подобны и довольно хорошо индицируются в гексагональной сингонии. Для поликристалла и порошка получены довольно близкие величины параметров гексагональной решетки a = 4,558 Å, c = 11,885 Å, $\beta = 120^{\circ}$ и a = 4,5647 Å, c = 11,893 Å, $\beta = 120^{\circ}$ соответственно. Интегральные интенсивности большинства дифракционных линий больше на 20–70%



Рис. 1. (Онлайн в цвете) Рентгеновские дифрактограммы поликристаллического и полученного из него порошкообразного образцов сплава $Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}$. Дифрактограммы получены при комнатной температуре в K_{α} -излучении медного анода.

для порошка, чем для сплошного образца. Интенсивность же линии (202) почти в 2,5 раза выше соответствующего отражения сплошного сплава. Более высокая интенсивность рассеяния на порошке частично обусловлена снятием при спиливании существовавших в сплошном образце макронапряжений. Наблюдаемая анизотропия и аномально большие различия интенсивностей отдельных линий (202), (104) и др. (см. табл. 1) свидетельствуют о наличии текстуры роста, тесно связанной с направлением движения фронта кристаллизации сплава.

Магнитные исследования

Проведенные нами измерения температурных и магнитополевых зависимостей соединения без железа $Bi_{88,08}Mn_{11,92}$ (будут опубликованы в ближайшее время) показывают, что эти зависимости качественно сходны с M(T) и M(H) для соединения с железом $Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}$, которое исследуется в настоящей

Таблица 1. Экспериментальные (θ_0) и расчетные (θ_C) углы отражения рентгеновских лучей от поликристаллического и порошкообразного образцов сплава Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}. Расчетные величины ($2\theta_C$) вычислены с использованием полученных параметров гексагональной решетки симметрии *P*6₃ /*mmm*. *I*_{area} и FWHM — величины интегральной интенсивности и полуширины рентгеновских отражений

| Поликристалл, полученный кристаллизацией расплава | | | | | | Порошок, полученный спиливанием мелким напильником | | | | | |
|---|-------------|-------------|------|-------------------|-------|--|-------------|-------------|------|-------|-------|
| по методу Бриджмена | | | | | | сплошного поликристаллического образца | | | | | |
| h k l | $2\theta_0$ | $2\theta_C$ | Δ | I _{area} | FWHM | h k l | $2\theta_0$ | $2\theta_C$ | Δ | Iarea | FWHM |
| 102 | 27,09 | 27,12 | 0,03 | 53,58 | 0,199 | 102 | 27 | 27,08 | 0,09 | 66,25 | 0,262 |
| 104 | 37,88 | 37,90 | 0,02 | 22,02 | 0,222 | 104 | 37,81 | 37,86 | 0,05 | 38,17 | 0,261 |
| 110 | 39,54 | 39,54 | 0,00 | 16,29 | 0,227 | 110 | 39,49 | 39,48 | 0,01 | 39,49 | 0,269 |
| 105 | 44,49 | 44,49 | 0,00 | 6,82 | 0,224 | 105 | 44,44 | 44,45 | 0,01 | 8,21 | 0,299 |
| 006 | 45,81 | 45,81 | 0,01 | 10,67 | 0,260 | 006 | 45,80 | 45,77 | 0,03 | 15,86 | 0,292 |
| 202 | 48,61 | 48,61 | 0,01 | 6,91 | 0,215 | 202 | 48,56 | 48,53 | 0,02 | 24,35 | 0,336 |

Low Temperature Physics/Фізика низьких температур, 2018, т. 44, № 11

работе. Поэтому мы не будем говорить о влиянии небольшого количества железа на объемные магнитные свойства Bi95.69Mn3.69Fe0.62 и будем считать, что магнетизм в нашем случае обусловлен исключительно включениями α-BiMn фазы. Измеренные нами зависимости M(T) и M(H) для направлений поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ совпадали. В то же время, согласно [7], эти зависимости, измеренные вдоль разных направлений в монокристаллах BiMn, заметно отличались по величине намагниченности. Возможным объяснением такого различия, является тот факт, что в нашем случае суммарный по объему образца магнитный вклад от включений α-ВіМп фазы аналогичен тому, что наблюдается в обычном нетекстурированном поликристалле BiMn, в котором все направления для намагничивания примерно равны. Из наших исследований также следует, что вклад α-BiMn в магнитные свойства соединения Bi95,69Mn3,69Fe0,62 является определяющим.

На рис. 2. представлены температурные зависимости намагниченности M(T), измеренные в магнитных полях 0,2, 4, 10 и 30 кЭ. С ростом магнитного поля зависимости М(Т) претерпевали существенные изменения. Так, при 0,2 и 4 кЭ (рис. 2(а), (б)) наблюдались максимумы при 105 и 85 К соответственно, которые отсутствовали для полей 10 и 30 кЭ (рис. 2 (в), (г)). Ранее авторы работ [7,11] исследовали магнитные свойства твердых растворов Bi-Mn с большим, чем в нашем случае содержанием α-BiMn фазы (40, 45 и 50 ат.% Mn) и обнаружили максимум на M(T) при температуре 90 К. Они объяснили наличие этой аномалии переориентацией магнитных моментов марганца с понижением температуры. Предполагается, что спины атомов Мп изменяют свое направление от перпендикулярной к параллельной ориентации относительно кристаллографической оси с в интервале температур 30-150 К. На наш взгляд, такое объяснение наличия максимума на M(T) может быть уместно и в нашем случае. Детальное изучение температурной зависимости намагниченности для поля 0,2 кЭ показывает расходимость кривых, измеренных в режиме FC и ZFC вблизи максимума. Часто такое поведение наблюдается в спиновых стеклах [12–14] (неупорядоченных магнетиках, в которых ориентация магнитных моментов не имеет пространственной периодичности, а сами магнитные моменты, в отличие от парамагнетиков, не флуктуируют во времени, т.е. являются как бы «замороженными»), кластерных спиновых стеклах [15-17] (системах с «замороженными» взаимодействующими между собой ферромагнитными кластерами) или фазово-сегрегированных системах с ферромагнитными включениями, формирующими суперпарамагнетик [14,17–19]. В нашем случае включения α-BiMn фазы в зависимости от их размеров и распределения по объему образца могут вести себя и как суперпарамагнитные частицы, и как кластерное стекло. В первом случае обменное взаимодействие между от-



Рис. 2. M(T) зависимости Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}, измеренные, в магнитных полях 0,2 (а), 4 (б), 10 (в) и 30 (г) кЭ. Символами обозначены измерения в режимах ZFC (\circ) и FC (\bullet).

дельными включениями минимально или отсутствует, во втором случае обменное взаимодействие существенно. При исследовании спиновых стекол и суперпарамагнетиков проводят измерения динамических свойств (например, магнитной восприимчивости в переменном магнитном поле), поскольку, как известно из литературы [12–14], положение и величина максимума на температурной зависимости динамической восприимчивости в этих материалах определенным образом зависят от частоты переменного магнитного поля. Установлено, что в спиновых стеклах с уменьшением частоты максимум смещается в область низких температур [12–14].



Рис. 3. Температурные зависимости реальной части динамической магнитной восприимчивости χ' образца Ві95,69Mn3,69Fe0,62, измеренные в переменном магнитном поле 15 Э на частотах 100 (○), 500 (□), 1000 (△), 4000 (∇) и 10000 (◊) Гц. На вставке представлена зависимость температуры максимума от логарифма частоты.

На рис. 3. представлены температурные зависимости динамической восприимчивости $\chi'(T)$ образца Ві95,69Мn3,69Fe0,62, измеренные в переменном магнитном поле 15 Э на частотах от 100 Гц до 10 кГц. Хорошо видно, что даже при измерении магнитной восприимчивости в слабых магнитных полях, вместо излома на $\chi'(T)$, характерного для спиновых стекол [14–16], наблюдается сильно размытый максимум. На вставке к рисунку построена зависимость температуры максимума T_{max} от логарифма частоты. Вплоть до ~ 4 кГц $T_{\rm max}$ почти не зависит от частоты, а затем резко уменьшается при увеличении f до 10 кГц. Такое поведение также является отличным от наблюдаемого в спиновых стеклах, в которых T_{max} с ростом частоты смещается в сторону более высоких значений температур, а зависимость является линейной [15,16,18,20,21].

В зависимости от технологии приготовления образцов BiMn коэрцитивная сила H_c при комнатной температуре может изменяться в диапазоне от 1,5 до 15 кЭ [6,7,11]. На рис. 4 представлены магнитополевые зависимости намагниченности Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62} при разных температурах. Хорошо видно, что при 300 К наблюдается заметный гистерезисный участок с коэрцитивной силой порядка 2 кЭ, что вписывается в вышеуказанный диапазон. В то же время при уменьшении температуры гистерезис практически исчезает.

На рис. 5 представлена зависимость коэрцитивной силы от температуры. Выше 200 К наблюдается существенный рост этой величины, в то время как при низких температурах 77 и 5 К $H_c \approx 0,074$ кЭ и практически не зависит от температуры. Такое поведение характерно для ранее исследованных твердых растворов BiMn и объясняется тем, что ниже 90 К константа магнитной анизотропии меняет знак (анизотропия изменяется от



Рис. 4. Магнитополевые зависимости намагниченности $Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}$, измеренные при температурах 300 (а), 200 (б), 77 (в) и 5 (г) К. На вставке представлены начальные участки M(H) кривых.

легкоосной при высоких температурах до легкоплоскостной при низких) [6,11,22–23] и происходит спинпереориентационный переход. Отметим также тот факт, что в спиновых стеклах ниже температуры максимума



Рис. 5. Температурная зависимость коэрцитивной силы H_c в Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62}.

на восприимчивости коэрцитивная сила обнаруживает резкое возрастание с понижением температуры [20–21]. В нашем случае, как показано выше, значения H_c при низких температурах очень малы и от температуры практически не зависят.

Таким образом, и расхождение зависимостей M(T)для режимов ZFC и FC в слабых полях, и зависимости M(H) в наших образцах не могут объясняться переходом в состояние спинового стекла. Наиболее вероятно они обусловлены изменениями констант анизотропии, которые происходят ниже 90 К. Вместе с тем не исключено, что отдельные включения α -BiMn фазы могут вести себя при низких температурах как суперпарамагнитные кластеры.

Резистивные исследования

На рис. 6 представлены зависимости $\rho(T)$, измеренные в отсутствие магнитного поля и в магнитных полях вплоть до 140 кЭ для двух направлений Н || І (рис. 6(a)) и **H** \perp **I** (рис. $6(\delta)$). В отсутствие магнитного поля отношение $\rho(300 \text{ K})/\rho(4,2 \text{ K}) \approx 7,5$, а $\rho(300 \text{ K}) \approx$ ≈ 450 мкОм·см. В то же время, в чистом висмуте отношение $\rho(300 \text{ K}) / \rho(4, 2 \text{ K})$ может принимать значения почти на два порядка выше, а $\rho(300 \text{ K}) \approx$ ≈ 40–140 мкОм см [24–28]. В сплавах Bi–Te, Bi–Sb отношение р(300 К)/р(4,2К) ≈ 10 при концентрации Те 2 ат.% и $\rho(300 \text{ K})/\rho(4,2 \text{ K}) \approx 8,3$ при концентрации Sb 0,1 ат.% [27]. С дальнейшим ростом концентрации Те и Sb отношение электросопротивлений еще больше уменьшается. Отношение р(300 К)/р(4,2 К) в нашем случае для Mn_{3,69}Bi_{95,69}Fe_{0,62}, а также в несколько раз более высокое значение р(300 К), по-видимому, обусловлены присутствием в материале дополнительной магнитной фазы α-BiMn, а также отдельных атомов железа. В отсутствие внешнего магнитного поля мы наблюдаем металлическое поведение $\rho(T)$, подобное $\rho(T)$ для чистого висмута [25,29,30], а именно: с понижением температуры электросопротивление уменьшается ($d\rho/dT > 0$). Детальный анализ этой зависимости показывает, что



Рис. 6. Температурные зависимости удельного электросопротивления без магнитного поля (●) и в магнитных полях *H*, кЭ: 10 (○), 30 (□), 60 (△), 90 (∇) и 140 (◊) для направлений **H** || **I** (а) и **H** ⊥ **I** (б).

выше 50 К на ней наблюдается небольшой перегиб. В области температур 5-50 К электросопротивление хорошо описывается зависимостью $\rho \sim T^{1,3}$, а выше 50 К и вплоть до 300 К наблюдается линейная зависимость $\rho \sim T$ (вставка на рис. 6(а)). Вместе с тем, как было показано в [25,30], даже при небольших добавках к висмуту примесных атомов возможно появление ярко выраженных аномалий на $\rho(T)$ (могут появляться максимумы или зависимость становится полупроводниковой). Также известно, что нередко наличие магнитных атомов приводит и к появлению на температурной зависимости при низких температурах минимума, связанного с рассеянием носителей заряда на магнитных атомах (эффект Кондо) [31-33]. В нашем случае в качестве таких магнитоактивных центров могут выступать атомы железа и включения α-ВіМп фазы. В то же время вышеупомянутые аномалии на $\rho(T)$ в исследуемом материале отсутствуют, а наличие металлического хода во всей области температур может свидетельствовать о том, что в отсутствие магнитного поля основной вклад в проводимость вносит фаза, состоящая из висмута. В работах [26,28] было показано, что с понижением температуры линейный участок на $\rho(T)$ для чистого висмута может наблюдаться вплоть до температур 12 К. По данным других авторов [27] эта граничная температура несколько выше и может достигать приблизительно 25 К. При более низких температурах в чистом висмуте $\rho \sim T^n$, где показатель степени *n* меняется от 2 до 2,75 в различных работах. Если высокотемпературная линейная зависимость объясняется достаточно легко в рамках стандартной модели электронфононного рассеяния [27,34], то однозначного толкования низкотемпературной зависимости пока еще нет. Так, согласно ранним работам, степенная зависимость $\rho \sim T^2$ объяснялась либо за счет появления специфического механизма электрон-фононного рассеяния, присущего висмуту и некоторым другим полуметаллам (междолинное электрон-фононное рассеяние) [27], либо за счет процессов электрон-дырочного рассеяния [26,27]. В нашем случае, как мы показали выше, так же, как и в чистом висмуте имеется два температурных участка с различными зависимостями $\rho(T)$. Однако линейный участок заканчивается при более высокой температуре, порядка 50 К, а для более низких температур $\rho \sim T^n$ с показателем степени *n* = 1,35, отличающимся от показателя в чистом висмуте, что мы связываем с дополнительным влиянием на проводимость магнитной фазы α-BiMn.

Включение магнитного поля приводит к заметному изменению характера зависимостей $\rho(T)$, а величина электросопротивления существенно возрастает. В случае, когда **H** || **I** (рис. 6(а)), электросопротивление с понижением температуры уменьшается. В районе 100 К на рисунке наблюдается своеобразный кроссовер, где скорость снижения электросопротивления достаточно резко увеличивается, причем с увеличением поля температура кроссовера также увеличивается, а сам эффект размывается. Совсем другой вид имеют зависимости в случае, когда **H** \perp **I** (рис. 6(б)). С понижением температуры электросопротивление возрастает, достигает максимума при температуре Тр и затем наблюдается его спад, продолжающийся вплоть до гелиевых температур, т.е. с понижением температуры на $\rho(T)$ наблюдается переход диэлектрик-металл (insulator-metal transformation IMT). Величина $\rho_{H\perp I}$ (300 K) / $\rho_{H\parallel I}$ (300 K) \approx 1,1 и 3,1 для полей 10 кЭ и 140 кЭ соответственно, а ρ_{**H**+**I**}(5 K) / ρ_{**H**||**I**}(5 K) ≈ 5,3 и 16,5 для полей 10 и 140 кЭ. Эти соотношения говорят о том, что с понижением температуры анизотропия свойств исследуемого соединения увеличивается.

С уменьшением температуры для направления $\mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ все кривые $\rho(T)$ для магнитных полей выше 10 кЭ постепенно сходятся на одной линии с металлическим ходом сопротивления. При низких температурах зависимости $\rho(T)$ для различных магнитных полей практически совпадают, и лишь при более высоких температурах наблюдается отклонение от «общей» зависимости $\rho(T)$. Другими словами, при низких температурах скорость увеличения удельного сопротивления Bi95,69Mn3,69Fe0,62 с ростом температуры одинакова для всех приложенных нами магнитных полей. С ростом температуры наблюдается резкое уменьшение скорости увеличения $\rho(T)$ для различных приложенных магнитных полей (своеобразный кроссовер), причем с ростом внешнего магнитного поля температура начала этого резкого изменения скорости увеличения $\rho(T)$ также увеличивается. Такая же тенденция наблюдается и для направления **H** \perp **I**, но с большим разбросом значений ρ . Такое поведение электросопротивления коррелирует с температурной зависимостью намагниченности, которая постепенно выходит на насыщение ниже 100 К для полей выше 30 кЭ.

Поведение $\rho(T)$ в магнитных полях несколько отличается от наблюдаемого ранее в чистом висмуте, в котором, согласно [35], также могут наблюдаться максимумы на $\rho(T)$ в магнитном поле, но с понижением температуры зависимости не сходятся в линию, как в нашем случае, а с ростом поля смещаются параллельно относительно друг друга в область более высоких полей. К тому же температуры максимумов по значению также отличны от наблюдаемых в чистом висмуте. Согласно данным работы [35], при 90 кЭ в чистом висмуте $T_p \approx 90$ К, а в нашем случае $T_p \approx 144$ К.

На рис. 7 представлена зависимость температуры T_p максимума (пика) $\rho(T)$ от магнитного поля для конфигурации **H** \perp **I**. С ростом магнитного поля T_p увеличивается и постепенно выходит на насыщение. В нашем случае $T_p \sim H^{0,37}$.

На рис. 8 представлены температурные зависимости относительного магнитосопротивления $\Delta \rho / \rho_0 =$ = [$\rho(H) - \rho(H = 0)$]/ $\rho(H = 0)$ от температуры для **H** || **I** (а) и **H** \perp **I** (б). В обоих случаях, начиная с комнатной температуры, магнитосопротивление с понижением температуры растет (положительное магнитосопротивление) и при температурах ниже 100 К выходит на плато в малых полях (10 и 30 кЭ) или обнаруживает максимум в полях больше 30 кЭ. На рисунке также видно, что качественно поведение зависимостей $\Delta \rho / \rho_0$ с ростом поля отличается для случаев **H** || **I** и **H** \perp **I**. Для более детального обсуждения на рис. 9 построены зависимости величин $\Delta \rho / \rho_0$ взятые при температурах максимумов от магнитного поля для **H** || **I** и **H** \perp **I**. Обращает



Рис. 7. Зависимость температуры T_p максимума (пика) $\rho(T)$ от магнитного поля для направления **H** \perp **I**.



Рис. 8. Температурные зависимости относительного магнитосопротивления $\Delta \rho / \rho_0$ в магнитных полях 10 (○), 30 (□), 60 (Δ), 90 кЭ (∇) и 140 кЭ (◊) для направлений **H** || **I** (а) и **H** ⊥ **I** (б).

на себя внимание тот факт, что для направления **H** \perp **I** с ростом поля величина относительного магнитосопротивления монотонно растет вплоть до $\Delta\rho/\rho_0 \approx 3033\%$ при 140 кЭ с замедлением скорости роста в высоких магнитных полях. В то же время для **H** || **I** наблюдается немонотонное поведение зависимости $\Delta\rho/\rho_0(H)$: имеется рост до 30 кЭ ($\Delta\rho/\rho_0 \approx 261\%$), за которым следует спад вплоть до значения $\Delta\rho/\rho_0 \approx 224\%$ при 140 кЭ.

Отличия в поведении зависимостей $\Delta \rho / \rho_0(H)$ и $\Delta \rho / \rho_0(T)$ для различных конфигураций магнитного поля свидетельствуют о сильной анизотропии магнитотранспортных свойств в наших образцах. Отметим также, что, в отличие от нашего случая, в чистом висмуте величина магнитосопротивления в хороших образцах (малое содержание примесей и структурных дефектов) на несколько порядков выше [24,36,37].

Согласно современным представлениям, висмут имеет достаточно сложную зонную структуру. Поверхность Ферми состоит из трех сильно вытянутых электронных участков близких к эллипсоидам и одного дырочного эллипсоида вращения. Величина энергии Ферми порядка нескольких сотых электронвольта. Любые внешние возмущения (температура, магнитное поле, деформации и т.д.) могут влиять на степень перекрытия электронных и дырочных участков и, как следствие, на кинетические свойства (в нашем случае электропроводность). Например, в случае наложения электронных и дырочных поверхностей Ферми наблюдается пере-



Рис. 9. Магнитополевые зависимости относительного магнитосопротивления $\Delta \rho / \rho_0$. Значения $\Delta \rho / \rho_0$ взяты при температурах максимумов на зависимостях $\Delta \rho / \rho_0$ для направлений $\mathbf{H} \perp \mathbf{I} (\bullet)$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{I} (\circ)$.

ход металл-диэлектрик, а также возможны промежуточные состояния [1,2]. В работе [38] было показано, что в висмуте даже в относительно небольших полях (до 30 кЭ) при измерениях вдоль выделенных направлений могут наблюдаться явления, сходные с магнитным пробоем (квантовое туннелирование носителей заряда в магнитном поле между разными энергетическими зонами).

Как было показано выше, в нашем случае в отсутствие магнитного поля при низких температурах зависимость $\rho \sim T^{1,3}$, что отличается от зависимости для чистого висмута, в котором чаще всего $\rho \sim T^2$ [27,28]. Отметим, что при рассеянии на магнонах часто появляется зависимость $\rho \sim T^2$ [39,40]. В нашем случае такая зависимость отсутствует, что может свидетельствовать об отсутствии таких процессов рассеяния, несмотря на наличие магнитных включений α -BiMn фазы. Кроме того, в исследуемом материале $T_p \sim H^{0,37}$, а для висмута $T_p \sim H^{0,45}$ [35]. Далее в чистом висмуте, а также других немагнитных полуметаллах [35,41] наблюдается связь между ρ_0 и T_p : $\rho_0 \sim T^n$, $T_p \sim H^{1/n}$. Такие отличия в поведении электросопротивления относительно чистого висмута могут быть связаны с влиянием на проводящие свойства магнетизма α-BiMn фазы и дополнительно внешнего магнитного поля. Такое влияние может вызывать некоторые изменения в степени перекрытия электронных и дырочных участков поверхности Ферми, и, как следствие, изменение количества разных типов носителей заряда (электронов и дырок), их подвижностей. Все это вносит существенную корректировку в поведение электросопротивления исследуемого материала по сравнению с чистым висмутом. Изменение угла наклона магнитного поля относительно кристаллографических направлений может приводить к дополнительному изменению степени перекрытия электронных и дырочных участков и как к появлению отклонения поведения электросопротивления от уже имеющегося в отсутствие магнитного поля, так и возникновению

сильной анизотропии температурных зависимостей электро- и магнитосопротивления, обнаруженной в наших измерениях. Такое объяснение, хорошо коррелирует с объяснением аномалий в висмуте в рамках многозонной модели [42].

Параллельно с этим не исключаются и другие механизмы, приводящие к аномальному поведению электросопротивления. Например, изменение магнитной структуры α-BiMn фазы ниже 100 К может приводить к появлению заметной магнитострикции и как, следствие, изменению проводящих свойств всего материала Bi95,69Mn3,69Fe0,62. Для проверки данного механизма в ближайшем времени будут проведены магнитострикционные исследования.

Не исключены и более экзотические механизмы появления на $\rho(T)$ в магнитном поле перехода изоляторметалл, например, связанные с появлением так называемого металлического состояния Бозе, в котором сосуществуют экситонные и сверхпроводящие неустойчивости [35,43,44].

В заключение отметим, что в ближайшее время также планируется провести исследования магнитополевых зависимостей электросопротивления при различных температурах, что, вероятно, позволит более детально изучить особенности поведения электросопротивления в магнитном поле. Также важным является исследование эффекта Холла, которое может дать ответы на ряд вопросов, связанных с взаимодействием в магнитном поле носителей заряда из разных подзон, подобно тому, как это было сделано в работах [41,42]. Большой интерес также представляет теоретическое и экспериментальное изучение изменений в зонной структуре висмута, которые имеют место в твердых растворах Bi–Mn при понижении температуры и под действием магнитных полей разной ориентации.

Авторы статьи выражают благодарность профессору Ю.Г. Найдюку и профессору С.И. Бондаренко за полезные обсуждения и замечания, которые были учтены при ее доработке.

Выводы

1. Установлено, что исследуемый твердый раствор имеет состав: 95,69 ат.%Ві, 3,69 ат.%Мп и 0,69 ат.%Fe, содержит две фазы — висмутовую матрицу с включениями α-BiMn, а также имеет текстуру.

2. Показано, что аномальное поведение температурной зависимости намагниченности связано с переориентационным переходом магнитных моментов Mn в α -BiMn фазе ниже ≈ 100 K (при $T \leq 100$ K), который возникает вследствие изменений, происходящих с константами магнитной анизотропии при понижении температуры. Это подтверждают и результаты исследований динамической восприимчивости и магнитополевых зависимостей намагниченности.

3. Установлено, что в магнитном поле зависимость $\rho(T)$ сплава Bi_{95,69}Mn_{3,69}Fe_{0,62} ведет себя немонотонным образом, в то время как в отсутствие поля эта зависимость является монотонной.

4. Показано, что магнитосопротивление положительно во всей области температур, однако поведение температурных зависимостей магнитосопротивления качественно отличается для ориентаций магнитного поля $\mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{I}$. Величина магнитосопротивления примерно на порядок выше для направления $\mathbf{H} \perp \mathbf{I}$, чем для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{I}$, и достигает 3033% в магнитном поле 140 кЭ.

5. Аномальное поведение температурной зависимости электросопротивления в отсутствие и в различных магнитных полях может быть объяснено изменением степени перекрытия между электронными и дырочными участками поверхности Ферми под влиянием магнетизма α-BiMn фазы и величины внешнего магнитного поля.

6. Высказано предположение, что изменение угла наклона магнитного поля приводит к различной степени перекрытия электронных и дырочных участков вдоль разных направлений, вследствие чего появляется анизотропия.

- 1. Л.А. Фальковский, *УФН* 94, 3 (1968).
- 2. В.С. Эдельман, *УФН* 123, 257 (1977).
- Om Prakash, Anil Kumar, A. Thamizhavel, and S. Ramakrishnan, Science 355, 52 (2017).
- P. Lejay, P. de Rango, A. Sulpice, B. Giordanengo, R. Tournier, R. Retoux, S. Deslandes, C. Michel, M. Hervieu, and B. Raveau, *Rev. Phys. Appl.* 24, 485 (1989).
- N.B. Brandt, E.A. Svistova, Yu.G. Kashirskii, and L.V. Lyn'ko, Sov. Phys. JETP 29, 35 (1969).
- Yong-Sheng Liu, Jin-Cang Zhang, Zhong-Ming Ren, Min-An Gu, Jing-Jing Yang, Shi-Xun Cao, and Zheng-Long Yang, *Chin. Phys. Lett.* 27, 0975024–1 (2010).
- N.V. Rama Rao, A.M. Gabay, and G.C. Hadjipanayis, J. Phys. D 46, 062001 (2013).
- В.Н. Светлов, А.В. Терехов, В.Б. Степанов, А.Л. Соловьев, Е.В. Христенко, О.М. Ивасишин, А.Д. Шевченко, З.Д. Ковалюк, *ФНТ* **41**, 405 (2015) [*Low Temp. Phys.* **41**, 314 (2015)].
- Katsunari Oikawa, Yoshifuru Mitsui, Keiichi Koyama, and Koichi Anzai, *Mater. Transact.* 52, 2032 (2011).
- F. Yin, N. Gu, T. Shigematsu, and N. Nakanishi, *J. Mater. Sci. Technol.* 12, 335 (1996).
- J.B. Yang, W.B. Yelon, W.J. James, Q. Cai, M. Kornecki, S. Roy, N. Ali, and Ph. l'Heritier, *J. Phys.: Condens. Matter* 14, 6509 (2002).
- 12. K. Binder and A.P. Young, Rev. Mod. Phys. 58, 801 (1986).
- 13. И.Я. Коренблит, Е.Ф. Шендер, УФН 157, 267 (1989).
- 14. H. Kawamura, and T. Taniguchi, *Handbook of Magnetic Materials. Spin Glasses* 24, Elsevier, Amsterdam (2015).
- 15. I.G. Deac, J.F. Mitchell, and P. Schiffer, *Phys. Rev. B* 63, 172408 (2001).
- 16. Y. Wang and H.J. Fan, *Phys. Rev. B* 83, 224409 (2011).
- 17. P.E. Jönsson, Adv. Chem. Phys. 128, 191 (2004).

- В.А. Десненко, А.И. Рыкова, В.А. Сиренко, А.В. Федорченко, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.В. Еременко, *ФНТ* 38, 261 (2012) [*Low Temp. Phys.* 38, 206 (2012)].
- А.И. Рыкова, А.В. Терехов, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.В. Еременко, А. Залеский, ФНТ 38, 674 (2012) [Low Temp. Phys. 38, 529 (2012)].
- A. Haldar, K.G. Suresh, and A.K. Nigam, *EPL* 91, 67006 (2010).
- 21. J. Dho, W.S. Kim, and N.H. Hur, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 027202 (2002).
- 22. B.W. Roberts, Phys. Rev. 104, 607 (1956).
- 23. Tu Chen and W.E. Stutius, *IEEE Trans. Magn.* 10, 581 (1974).
- 24. P. Kapitza, Proc. R. Soc. London A 119, 358 (1928).
- 25. A.B. Focke and J.R. Hill, *Phys. Rev.* 50, 179 (1936).
- 26. G.K. White and S.B. Woods, *Philos. Mag.* 3, 342 (1957).
- V. Chopra, R.K. Ray, and S.M. Bhaga, *Phys. Status Solidi A* 4, 205 (1971).
- 28. C.A. Kukkonen and K.F. Sohnt, J. Phys. F 7, L193 (1977).
- 29. G.W.C. Kaye, Proc. R. Soc. London A 170, 561 (1939).
- 30. N. Thompson, Proc. R. Soc. London A 155, 111 (1936).
- 31. W.J.de Haas, J.de Boer, and G.J.van dën Berg, *Physica* 1, 1115 (1934).
- 32. J. Kondo, Prog. Theor. Phys. 32, 37 (1964).
- А.А. Абрикосов, Основы теории металлов, Наука, Москва (1987).
- 34. E.H. Sondheimer, Proc. Phys. Soc. A 65, 561 (1952).
- Y. Kopelevich, J.C. Medina Pantoja, R.R. da Silva, and S. Moehlecke, *Phys. Rev. B* 73, 165128 (2006).
- 36. F.B. Jewett, Phys. Rev. I 16, 51 (1903).
- 37. P.B. Alers and R.T. Qebber, Phys. Rev. 91, 1060 (1953).
- 38. Yu.A. Bogod and E.E. Eremenko, JETP Lett. 3, 113 (1966).
- 39. Е.А. Туров, ФММ 6, 203 (1958).
- 40. С.В. Вонсовский, Магнетизм, Наука, Москва (1971).
- J. Xu, D.E. Bugaris, Z.L. Xiao, Y.L. Wang, D.Y. Chung, M.G. Kanatzidis, and W.K. Kwok, *Phys. Rev. B* 96, 115152 (2017).
- 42. Xu Du, Shan-Wen Tsai, D.L. Maslov, and A.F. Hebard, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 166601 (2005).
- Y. Kopelevich, J.H.S. Torres, R.R. da Silva, F. Mrowka, H. Kempa, and P. Esquinazi, *Phys. Rev. Lett.* 90, 156402 (2003).
- 44. D. Das and S. Doniach, Phys. Rev. B 64, 134511 (2001).

Особливості поведінки магнітоопору та магнітних властивостей в Ві95,69Mn3,69Fe0,62

А.В. Терехов, К. Рогацький, А.Л. Соловйов,
О.М. Блудов, А.І. Прохватілов, В.В. Мелешко,
І.В. Золочевський, Е.В. Христенко, Я. Цвік, А. Лось,
А.Д. Шевченко, З.Д. Ковалюк, О.М. Івасішин

Досліджено текстурований полікристал Ві95,69Мn3,69Fe0,62, що містить дві фази — вісмутову матрицю та включення α-ВіМп фази. Показано, що аномальна поведінка темпера-

турних залежностей намагніченості може бути пов'язана з переорієнтаційним переходом магнітних моментів Мп в α-BiMn фазі внаслідок зміни знака константи магнітної анізотропії. Встановлено, що у магнітному полі температурні залежності електроопору поводяться немонотонним чином, а магнітоопір є позитивним у всій області температур та досягає максимальної величини 3033% у магнітному полі 140 кЕ для орієнтації, коли магнітне поле є перпендикулярним транспортному електричному струму. Виявлено сильну анізотропію електроопору при вимірюваннях у магнітному полі. Припускається, що аномальна поведінка температурних залежностей електроопору в Ві95,69Мn3,69Fe0,62 в порівнянні з чистим вісмутом пов'язана зі зміною ступеня перекриття між електронними і дірковими ділянками поверхні Фермі під впливом магнетизму α-BiMn фази, а також величини та напрямку зовнішнього магнітного поля.

Ключові слова: магнітоопір, анізотропія електроопору, переорієнтаційний перехід, спінове скло, електронні та діркові ділянки поверхні Фермі, α-ВіМп фаза, вісмут.

Features of magnetoresistance behavior and magnetic properties in Bi_{95.69}Mn_{3.69}Fe_{0.62}

A.V. Terekhov, K. Rogacki, A.L. Solovjov, A.N. Bludov, A.I. Prokhvatilov, V.V. Meleshko, I.V. Zolochevskii, E.V. Khristenko, J. Cwik, A. Los, A.D. Shevchenko, Z.D. Kovalyuk, and O.M. Ivasishin

The textured polycrystalline Bi95.69Mn3.69Fe0.62 containing two phases: the bismuth matrix and the α -BiMn phase inclusions, was studied. It is shown that the anomalous behavior of the temperature dependences of the magnetization can be associated with a reorientational transition of the magnetic moments of Mn in the α -BiMn phase due to a change in the sign of the magnetic anisotropy constant. It is established that in the magnetic field the temperature dependences of the electrical resistivity behave nonmonotonically, and the magnetoresistance is positive in the entire temperature range and reaches a maximum value of 3033% in a magnetic field of 140 kOe for orientation, when the magnetic field is perpendicular to the transport current. A strong anisotropy of the electrical resistivity is revealed in measurements in the magnetic field. It is assumed that the anomalous behavior of the electrical resistivity temperature dependences as compared to are related to change the degree of overlapping between electron and hole regions of the Fermi surface under the influence of the α -BiMn phase magnetism, as well as the magnitude and direction of the external magnetic field.

Keywords: magnetoresistance, anisotropy of electrical resistance, reorientation transition, spin glass, electron and hole regions of the Fermi surface, α -BiMn phase, bismuth.