

Caracterização magnética do monocristal DyRhIn₅

J. C. Silva & N. O. Moreno

Núcleo de Pós-graduação em Física, Universidade Federal de Sergipe, 49100-000, São Cristóvão-Se, Brasil

jonasdaninha@hotmail.com

nomorenos@gmail.com

(Recebido em 31 de janeiro de 2012; aceito em 22 de março de 2012)

Neste trabalho apresentamos a síntese em forma monocristalina do composto intermetálico DyRhIn₅ pelo método do auto-fluxo, a caracterização estrutural através de medidas de difração de pó de raios X à temperatura ambiente e a caracterização magnética através de medidas de magnetização *dc* em função da temperatura e do campo magnético aplicado. As medidas magnéticas foram realizadas, com a utilização de um magnetômetro comercial MPMS-7, com detecção SQUID, aplicando o campo magnético paralelo e perpendicularmente ao eixo *c* dos monocristais. O composto formou-se em fase única com estrutura tetragonal tipo HoCoGa₅, pertencente ao grupo espacial *P4/mmm*, com parâmetros de rede iguais a $a = b = 4,585\text{Å}$ e $c = 7,359\text{Å}$. Este composto apresentou uma ordem antiferromagnética com temperatura de Néel de 28K quando um campo magnético de 1 kOe foi aplicado ao longo do eixo *c*, sendo que, a partir da transição, um comportamento típico Curie-Weiss foi observado. Nas curvas de histerese magnética em $T = 2$ e 5 K, com o campo magnético aplicado paralelamente ao eixo *c* do cristal, um comportamento metamagnético foi observado.

Palavras-chave: intermetálicos; monocristais; metamagnetismo.

In this work we present the synthesis of intermetallic compound DyRhIn₅ in single crystalline shape by self-flux method, the structural characterization through of powder X-ray diffraction measurements at room temperature and the magnetic characterization by *dc* magnetization measurements as a function of temperature and magnetic field applied. The magnetic measurements were carried out using a commercial magnetometer MPMS-7 with SQUID detection, applying the magnetic field along and perpendicular to the *c*-axis of single crystals. The compound was formed in a single phase with tetragonal structure HoCoGa₅-type, belonging to the space group *P4/mmm*, with lattice parameters equals to $a = b = 4.585\text{Å}$ and $c = 7.359\text{Å}$. This compound showed an antiferromagnetic order with Néel Temperature of 28K when the magnetic field of 1 kOe was applied along to the *c*-axis, of which a typical Curie-Weiss behavior above Néel Temperature was observed. In the magnetic hysteresis curves at $T = 2$ and 5 K, with the magnetic field applied parallel to the *c*-axis, a metamagnetic behavior was observed.

Keywords: intermetallics; single crystal; metamagnetism

1. INTRODUÇÃO

O grupo de intermetálicos R_nTX_{3n+2} ($n = 1$ ou 2), sendo R = elementos terras raras, T = Co, Rh e Ir e X = In e Ga tem sido largamente estudado nas últimas décadas. [1-8]. Os compostos RRhIn₅ cristalizam-se com estrutura cristal tetragonal tipo HoCoGa₅, pertencendo ao grupo espacial *P4/mmm*, com camadas alternadas de RIn₃ e RhIn₂, empilhadas sequencialmente ao longo do eixo *c*. [5]. A estrutura magnética no estado fundamental destes compostos, reportada por [5] é mostrada na Figura 1.

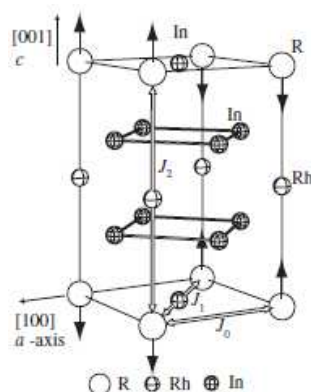


Figura 1: estrutura cristalina de $RRhIn_5$ (R = terras raras). As setas indicam a direção dos momentos magnéticos. J_0 , J_1 e J_2 representam a interação de troca entre os íons

Os estudos mais intensos das famílias R_nTX_{3n+2} ($n = 1$ ou 2) têm sido em compostos à base de cério, uma vez que estes apresentam supercondutividade. Materiais intermetálicos com terras raras exibem interessantes propriedades físicas, dentre as quais podemos destacar comportamento férmion pesado, supercondutividade sob pressão induzida, flutuação de valência, entre outras. [9]

O composto $CeRhIn_5$ é um antiferromagneto à pressão ambiente com $T_N = 3,8$ K e apresenta coeficiente do calor específico eletrônico $\gamma = 400$ mJ/molK². [10]. À pressão ambiente, $CeRhIn_5$ ordena-se antiferromagneticamente abaixo de $T_N = 3,8$ K; aplicando pressão, o composto exibe uma transição para o estado superconductor com $T_C = 2$ K à $P = 1,6$ GPa. [11]. Já o composto $CeIrIn_5$ mostra resistividade zero próximo de 1 K. [12].

Os compostos férmions pesados apresentam enorme valor experimental do coeficiente do calor específico eletrônico, o que indica a presença de elétrons fortemente correlacionados, com massa efetiva da ordem de $10^2 - 10^3$ vezes a massa do elétron livre. Os estados eletrônicos $4f$ e $5f$ estão relativamente próximos ao nível de Fermi e apresentam um caráter ambíguo entre localizado e itinerante.

Neste artigo apresentamos resultados experimentais da caracterização estrutural, obtidos por difração de raios X pelo método do pó à temperatura ambiente em um difratômetro *Rigaku* com radiação $Cu K\alpha$ e também resultados de magnetização, obtidos em um magnetômetro comercial MPMS7, com detector SQUID para o composto $DyRhIn_5$.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

Os monocristais de $DyRhIn_5$ foram crescidos pela técnica conhecida como autofluxo, usando índio como fluxo. Os elementos químicos com pureza maior que 99.99% foram pesados estequiometricamente e colocados em um cadinho de alumina, o qual foi selado dentro de uma ampola de quartzo com vácuo, para evitar que os reagentes oxidassem. A ampola foi aquecida em um forno até 1100°C por um período de 24 horas, com aquecimento controlado. Depois desse tempo, a temperatura foi baixada lentamente até 500°C. Nesta temperatura, a ampola foi removida do forno, invertida e centrifugada, para favorecer a expulsão do fluxo, que ainda permanece líquido. Após atingir a temperatura ambiente, a ampola foi quebrada para a remoção dos monocristais.

Para confirmar a fase pura dos compostos crescidos, foi realizado experimento de difração de raios X pelo método do pó à temperatura ambiente utilizando um difratômetro *Rigaku* com radiação $Cu K\alpha$. Para a obtenção de amostras policristalinas, os cristais foram triturados com a utilização de almofariz e pistilo de ágata.

Para a caracterização magnética do monocristal foram realizadas medidas de magnetização *dc* em função da temperatura e do campo magnético aplicado. Para o primeiro caso, enquanto o campo magnético permaneceu fixo em 1 kOe, a temperatura varreu um intervalo entre 2 e 300 K. Já no segundo, o campo magnético variou entre ± 70 kOe para as temperaturas de 2, 5, 20 e 50 K. Essas medidas foram realizadas aplicando-se campo magnético paralela e

perpendicularmente ao eixo c do composto. Tanto para as medidas de magnetização em função da temperatura quanto em função do campo magnético, as curvas obtidas foram do tipo ZFC (*Zero Field Cooled* – Resfriado a Campo Zero).

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na Figura 2 está mostrado o padrão de difração de raios X à temperatura ambiente para o monocrystal DyRhIn_5 . Os picos mais intensos aparecem com os índices de Miller associados. O composto cresceu em fase única com estrutura tetragonal pertencente ao grupo espacial $P4/mmm$ e os valores dos parâmetros de rede, obtidos pelo método dos mínimos quadrados, são $a = b = 4,585\text{\AA}$ e $c = 7,359\text{\AA}$, os quais estão de acordo com àqueles já reportados na literatura. [4].

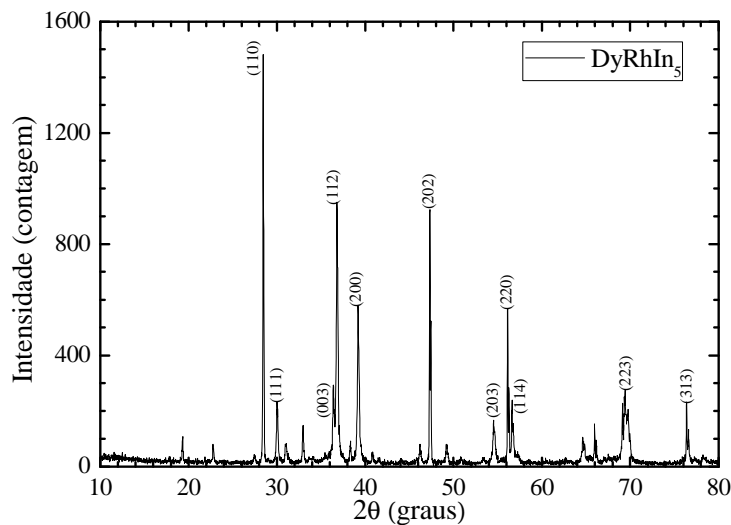


Figura 2: padrão de difração de raios X à temperatura ambiente do DyRhIn_5

As curvas da susceptibilidade magnética em função da temperatura quando o campo magnético de 1 kOe foi aplicado paralela e perpendicularmente ao eixo c do monocrystal são mostradas na Figura 3.

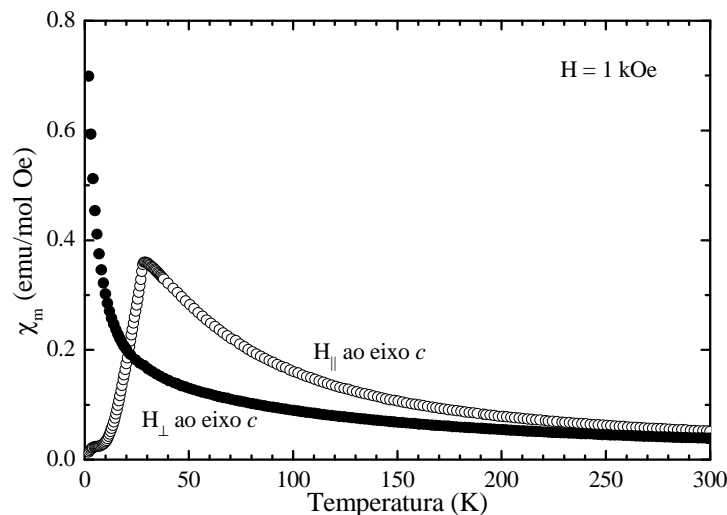


Figura 3: susceptibilidade magnética em função da temperatura para um campo magnético de 1 kOe aplicado paralela e perpendicularmente ao eixo c do monocrystal DyRhIn_5

Para o caso em que o campo foi aplicado perpendicularmente ao eixo c , percebe-se que a curva não exibe nenhum sinal ou anomalia que possa ser associada a uma ordem magnética até 2 K, ou seja, a susceptibilidade decresce monotonicamente com o aumento da temperatura.

Quando o campo magnético foi aplicado paralelamente ao eixo c do monocristal, uma transição típica de um material antiferromagnético é observada em 28 K, sendo que, a partir desta temperatura, a curva segue um comportamento Curie-Weiss.

A anisotropia expressa pelos resultados da susceptibilidade magnética para as duas direções em que o campo magnético foi aplicado em relação ao eixo c do monocristal é um indicativo da influência do campo cristalino do íon Dy^{+3} .

Na Figura 4 são mostradas as curvas do inverso da susceptibilidade magnética em função da temperatura para as duas direções em que o campo magnético foi aplicado no monocristal.

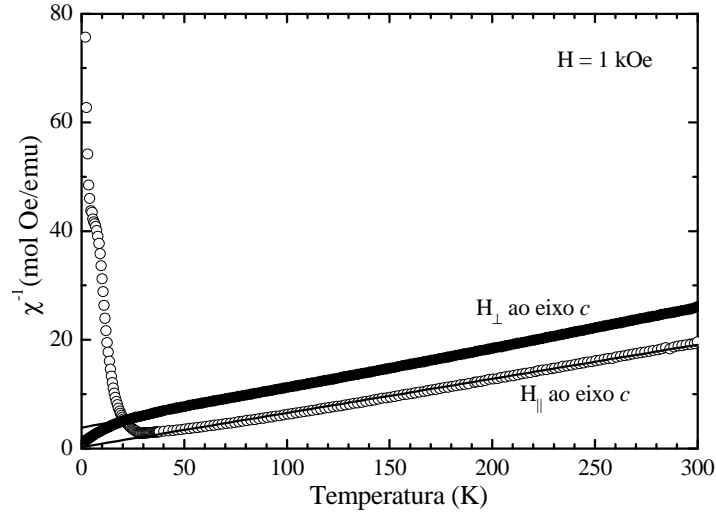


Figura 4: curvas do inverso da susceptibilidade magnética em função da temperatura para um campo magnético de 1 kOe aplicado paralela e perpendicularmente ao eixo c do monocristal DyRhIn_5

Para altas temperaturas, fazendo um ajuste pela lei de Curie-Weiss, encontramos que o valor do momento magnético efetivo quando o campo magnético foi aplicado perpendicular e paralelamente, respectivamente, ao eixo c do material é de $\mu_{\text{ef}} = 10,43 \mu_{\text{B}}/\text{Dy}^{+3}$ e $\mu_{\text{ef}} = 11,2 \mu_{\text{B}}/\text{Dy}^{+3}$, os quais são muito próximos do valor teórico do íon Dy^{+3} , com momento angular total no estado fundamental $J = 15/2$, que é de $10,63 \mu_{\text{B}}$. A diferença existente entre o momento magnético efetivo teórico daquele obtido pelo ajuste, pode ser explicada pelo fato de que, enquanto o valor teórico considera o íon totalmente livre, o ajuste é feito com resultados de um material real, o qual apresenta várias contribuições, tais como a interação RKKY e efeitos de campo cristalino.

Do ajuste, também obtivemos o valor da temperatura de Curie paramagnética para campos magnéticos aplicados perpendicular e paralelamente ao eixo c do composto. No primeiro caso este valor foi de $\theta_{w\perp} = -52 \text{ K}$, enquanto que no segundo foi de $\theta_{w\parallel} = -4 \text{ K}$. Estes valores negativos indicam um ordenamento antiferromagnético.

As curvas de histerese magnética do composto para as duas direções em que o campo magnético foi aplicado são mostradas nas Figuras 5 e 6.

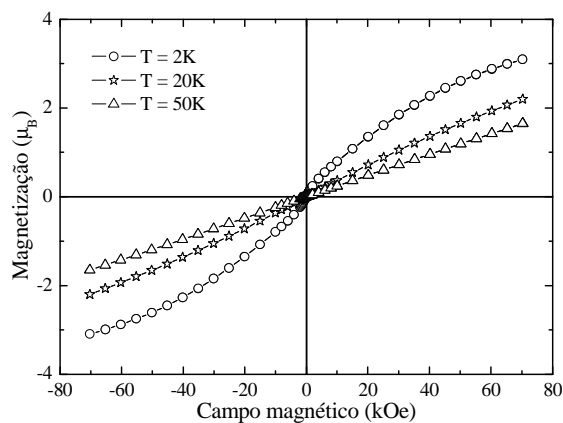


Figura 5: curvas de histerese magnética para as temperaturas de 2, 5 e 50 K quando o campo magnético foi aplicado paralelamente ao eixo *c* do monocristal

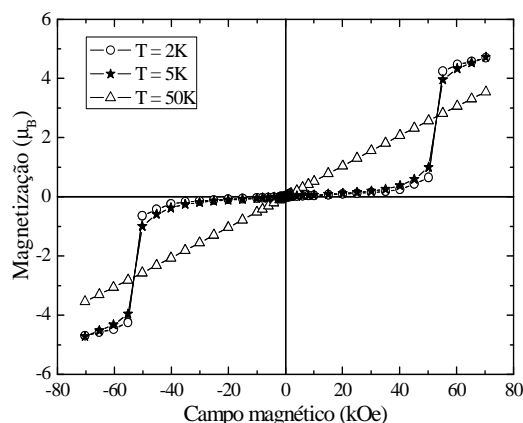


Figura 6: curvas de histerese magnética para as temperaturas de 2, 20 e 50 K quando o campo magnético foi aplicado perpendicularmente ao eixo *c* do monocristal

Da Figura 5, para as três temperaturas medidas, com o campo magnético máximo aplicado, não se atingiu a saturação do material, cujo valor teórico para o íon do Dy^{+3} é de $10 \mu_B$. Para a temperatura mais baixa medida, 2 K, percebe-se um comportamento não linear dos dados obtidos, uma vez que o material não está no estado paramagnético. Para a temperatura de 20 K, a curva tem um comportamento não retilíneo menos acentuado, mas ainda assim apresenta certo alinhamento dos spins. Já para a temperatura de 50 K o comportamento é retilíneo.

Da Figura 6, para as temperaturas de 2 e 5 K, percebe-se que a magnetização aumenta vagarosamente conforme o campo magnético vai sendo aumentado, no entanto, para um campo magnético crítico, o qual está em torno de 50 kOe, ocorre um salto abrupto no valor desta magnetização, o que caracteriza um ordenamento metamagnético. [3-6]. Para a temperatura de 50 K o material já está no estado paramagnético. Para os campos magnéticos mais altos atingidos nos experimentos também não foi atingida a saturação do material.

4. CONCLUSÃO

Os valores dos parâmetros de rede obtidos para o composto $DyRhIn_5$ foram de $a = b = 4,585 \text{ \AA}$ e $c = 7,359 \text{ \AA}$. Da curva da susceptibilidade magnética em função da temperatura quando o campo magnético de 1 kOe foi aplicado perpendicularmente ao eixo *c* do cristal, percebemos que o composto não exibe nenhuma anomalia que possa ser associada a uma ordem magnética até 2 K. Quando o campo magnético foi aplicado paralelamente ao eixo *c* do monocristal, uma transição típica de um material antiferromagnético foi observada em 28 K. Das curvas de histerese magnética para as temperaturas de 2 e 5 K quando o campo magnético foi aplicado paralelamente ao eixo *c* do cristal, percebemos uma transição metamagnética para um campo crítico de aproximadamente 50 kOe.

5. AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem à CAPES pelo auxílio financeiro.

1. C. Petrovic, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, R. Movshovich, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk, P. Monthoux. Heavy-fermion superconductivity in $CeCoIn_5$ at 2.3K. *Journal of Physics: Condensed Matter* 13, 2001.
2. R. Lora-Serrano, C. Giles, E. Granado, D. J. Garcia, E. Miranda, O. Agüero, L. M. Ferreira, J. G. S. Duque, P. G. Pagliuso. Magnetic Structure and enhanced T_N of rare-earth intermetallic compound $TbRhIn_5$: experiment and mean-field model. *Physical Review B* 74, 2006.

3. N. V. Hieu, H. Shishido, T. Takeuchi, A. Thamizhavel, H. Nakashima, K. Sugiyama, R. Settai, T. D. Matsuda, Y. Haga, M. Hagiwara, K. Kindo, Y. Ōnuki. Unique magnetic properties of NdRhIn₅, TbRhIn₅, DyRhIn₅ and HoRhIn₅. *Journal of the Physical Society of Japan* 75, 2006.
4. N. V. Hieu, H. Shishido, H. Nakashima, K. Sugiyama, R. Settai, T. Takeuchi, T. D. Matsuda, Y. Haga, M. Hagiwara, K. Kindo, Y. Ōnuki. Magnetic properties in RRhIn₅ (R = rare earth). *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 310, 2007.
5. N. V. Hieu, T. Takeuchi, H. Shishido, C. Tonohiro, T. Yamada, H. Nakashima, K. Sugiyama, R. Settai, T. D. Matsuda, Y. Haga, M. Hagiwara, K. Kindo, S. Araki, Y. Nozue, Y. Ōnuki. Magnetic properties and crystalline electric field scheme in RRhIn₅ (R: rare earth). *Journal of the Physical Society of Japan* 76, 2007.
6. N. V. Hieu, T. Takeuchi, T. Ōnuki. Study the magnetic structure of RRhIn₅ single crystal compounds in low temperature. *Advances in Natural Sciences* 8, 2008.
7. R. Lora-Serrano, C. Giles, E. Granado, D. J. Garcia, E. Miranda, O. Agüero, L. M. Ferreira, J. G. S. Duque, P. G. Pagliuso. Physical properties and magnetic structure of TbRhIn₅ intermetallic compound. *Condense Matter*, 2006.
8. H. Hegger, C. Petrovic, E. G. Moshopoulou, M. F. Hundley, J. L. Sarrao, Z. Fisk, J. D. Thompson. Pressure-induced superconductivity in quse-2D CeRhIn₅. *Physical Review Letters* 84, 2000.
9. J. Sereni. Las variadas facetas del magnetismo incipiente en compuestos de Cerio. *Revista Española de Física* 13, 1999.
10. P. G. Pagliuso, J. D. Thompson, M. F. Hundley, J. L. Sarrao. Crystal-field-induced magnetic frustration in NdMIn₅ and Nd₂MIn₈ (M = Rh, Ir) antiferromagnets. *Physical Review B* 62, 2000.
11. S. Ohara, Y. Shomi, I. Sakamoto. Effect of pressure on the electrical resistivity of heavy fermion antiferromagnet Ce₂RhIn₈. *Physica B* 329-333, 2003.
12. C. Petrovic, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, R. Movshovich, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk, P. Monthoux. Heavy-fermion superconductivity in CeCoIn₅ at 2.3K. *Journal of Physics: Condensed Matter* 13, 2001.