

11,05

Особенности поведения электро- и магнитосопротивления Cd_3As_2 —30 mol.% MnAs при высоких давлениях

© Л.А. Сайпулаева¹, К.Ш. Хизриев¹, Н.В. Мельникова², А.В. Тебеньков², А.Н. Бабушкин², В.С. Захвалинский³, А.И. Риль⁴, С.Ф. Маренкин^{4,5}, М.М. Гаджалиев¹, З.Ш. Пирмагомедов¹

¹ Институт физики ДФИЦ РАН, Махачкала, Россия

² Уральский федеральный университет, Институт естественных наук и математики, Екатеринбург, Россия

³ Белгородский государственный национальный исследовательский университет, Белгород, Россия

⁴ Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, Россия

⁵ Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“, Москва, Россия

E-mail: l.saypulaeva@gmail.com

Поступила в Редакцию 24 января 2021 г.

В окончательной редакции 30 марта 2021 г.

Принята к публикации 30 марта 2021 г.

Представлены результаты исследования электро- и магнитосопротивления (МС) композита, состоящего из дираковского полуметалла Cd_3As_2 и 30 mol.% ферромагнетика MnAs при давлениях до 50 GPa. В диапазоне давлений 16–50 GPa наблюдалось гистерезисное поведение транспортных свойств при двух последовательных циклах приложения и снятия давления. Измерения МС в режиме подъема и сброса давления выявили особенности в виде максимумов отрицательного и положительного МС, величины относительного магнитосопротивления ($\Delta R/R_0$) достигали ~ 20 и $\sim 5.3\%$ соответственно. Установлена нестабильность моноклинной структуры Cd_3As_2 в результате ее частичного разложения при декомпрессии.

Ключевые слова: высокое давление, композит, удельное электросопротивление, отрицательное магнитосопротивление, структурный фазовый переход.

DOI: 10.21883/FTT.2021.08.51169.061

1. Введение

Ранее нами было установлено наличие индуцированного давлением отрицательного магнитосопротивления (ОМС) в структуре Cd_3As_2 +MnAs с содержанием 20, 30 и 44.7 mol.% MnAs [1–4]. Исследования магнитосопротивления Cd_3As_2 +MnAs в области давлений до 9 GPa позволили обнаружить интервалы давлений, в которых проявляется ОМС. Так, в образце Cd_3As_2 + MnAs (44.7 mol.% MnAs) в области давлений 7.8 GPa максимальное значение ОМС составляло $\sim 0.36\%$. Обнаружено, что в композитах Cd_3As_2 + MnAs на барических зависимостях удельного электросопротивления, коэффициента Холла и магнитосопротивления в окрестности давлений 3–4 GPa проявляются особенности поведения транспортных свойств [1–4], которые связаны с фазовым переходом. Этот переход можно рассматривать, как результат совмещенных фазовых переходов — структурного фазового перехода в матрице Cd_3As_2 и спин-переро- ориентационного магнитного фазового перехода в нанокластерах MnAs, оказывающих влияние на транспорт носителей и МС композита.

Поведение транспортных свойств композитов при давлениях, превышающих 9 GPa, недостаточно подробно изучено. Исследования транспортных свойств компо-

зитов Cd_3As_2 + MnAs при более высоких давлениях также представляют интерес в связи с обнаружением возможных фазовых переходов. Так в композитах в Cd_3As_2 + 44.7 mol.% MnAs по исследованиям термоэдс, как одного из наиболее чувствительного к фазовым превращениям параметра, была установлена особенность поведения коэффициента Зеебека в районе $P \sim 33$ GPa, которая интерпретировалась как проявление второго фазового перехода [5]. По этой причине огромный интерес представляет исследование МС в области давлений, близкой к области второго фазового превращения [5].

В настоящей работе рассматривается влияние давления до 50 GPa на электрические и магнитотранспортные свойства композита Cd_3As_2 + 30% MnAs.

Полученные результаты отмечают проявление максимумов и минимумов на полевой зависимости МС, природа которых может быть интерпретирована с точки зрения нестабильности композита при циклировании давления.

2. Образцы и методика эксперимента

Синтез кристаллов Cd_3As_2 + 30 mol.% MnAs проводился вакуумно-ампульным методом из соединений

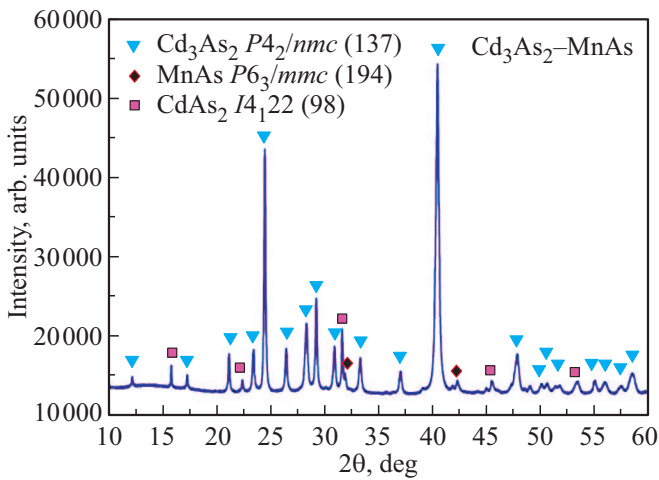


Рис. 1. Рентгенограмма образца $Cd_3As_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$.

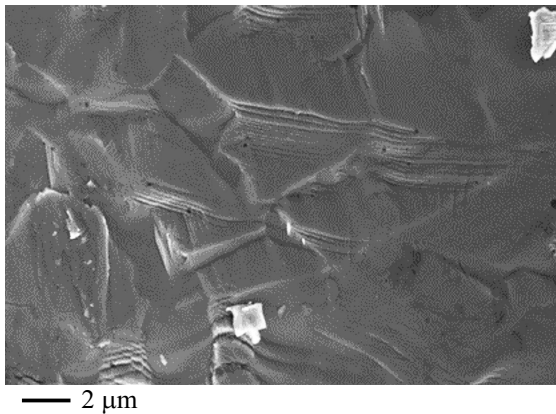


Рис. 2. СЭМ изображения скола образца $Cd_3As_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$

Cd_3As_2 и MnAs при температуре плавления арсенида марганца [6]. Образцы представляли собой композит, состоящий из наноразмерных ферромагнитных гранул MnAs, хаотически расположенных в объеме полупроводниковой матрицы Cd_3As_2 . Полученные образцы характеризовались методами рентгеновской дифракции и сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Элементный анализ композитов $Cd_3As_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$, показал, что большая часть объема составляет фаза Cd_3As_2 . Доля включений фазы MnAs занимают менее 5%. При расшифровке рентгенограмм обнаружены пики, соответствующие двум основным фазам исследуемого материала: Cd_3As_2 — тетрагональная и MnAs — магнитная, гексагональная (рис. 1). Кроме того, установлено присутствие незначительного количества фазы $CdAs_2$. На микроструктурах наблюдалась фаза Cd_3As_2 и эвтектика Cd_3As_2 . Особенностью $Cd_3As_2 + \text{MnAs}$ является наличие расплавов фаз Cd_3As_2 и MnAs. При значениях 30 мол.% MnAs гранулы при электронно-микроскопических исследованиях (рис. 2) не удается визуализировать, возможно, из-за характерных малых размеров.

Влияние высокого давления на электрофизические свойства композитов исследовалось в камере высокого давления (КВД) с алмазными наковальнями типа „закругленный конус-плоскость“. Принцип создания давлений до 50 GPa, технические характеристики и градуировка КВД описаны в деталях в [7–9]. Используемое оборудование позволяет измерять электрические характеристики материала непосредственно в процессе деформаций при приложении высоких давлений. В связи с особенностями используемой КВД минимальное давление, при котором возможно измерение электрофизических характеристик сжимаемых образцов, не может быть меньше 15 GPa. Кроме того, известно, что при смене (возрастании или снижении) давления, требуется некоторое время для установления, не меняющегося во времени значения электросопротивления. Толщина образцов при сжатии составляла $\sim 15 \mu\text{m}$, диаметр образца в КВД около $\sim 200 \mu\text{m}$.

При измерении МС камеру высокого давления помещали в панцирный магнит для создания поперечного магнитного поля ($0 \leq B \leq 1 \text{ T}$), при этом изменение и контроль величин давления и магнитного поля осуществляли непосредственно в ходе эксперимента. При каждом фиксированном значении давления относительное магнитосопротивление $\Delta R/R_0$ в процентах оценивали по формуле

$$\frac{\Delta R}{R_0} = 100 \frac{R(B) - R(0)}{R(0)}, \quad (1)$$

где $R(B)$ — электросопротивление в поперечном магнитном поле с индукцией B , $R(0)$ — электросопротивление в отсутствии магнитного поля.

3. Результаты эксперимента и обсуждение

На рис. 3. показана зависимость электросопротивления R композита $Cd_3As_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ от давления P при двух последовательных циклах измерений (подъем и сброс давления) в области комнатных температур. В барическом интервале 15–25 GPa первого цикла преобладает значительное понижение R с повышением P , что в целом находится в хорошем согласии с результатами исследований для Cd_3As_2 [10]. Сопротивление в этой области давлений меняется почти линейно со средним темпом $dR/dP = -24.9 \Omega/\text{GPa}$ (вставка к рис. 3). Величина барического коэффициента при $P > 34 \text{ GPa}$ составляет $-1.1 \Omega/\text{GPa}$, что говорит о слабой зависимости R от P до давлений 50 GPa. При сбросе P с 50 GPa зависимость $R(P)$ в обоих циклах измерений демонстрировала гистерезисное поведение. Преобладание гистерезиса R в $Cd_3As_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ в диапазоне давлений 15–50 GPa представляется весьма интересным, поскольку это может свидетельствовать в пользу структурного перехода, происходящего в Cd_3As_2 , структура которого выше давлений 4.67 GPa является

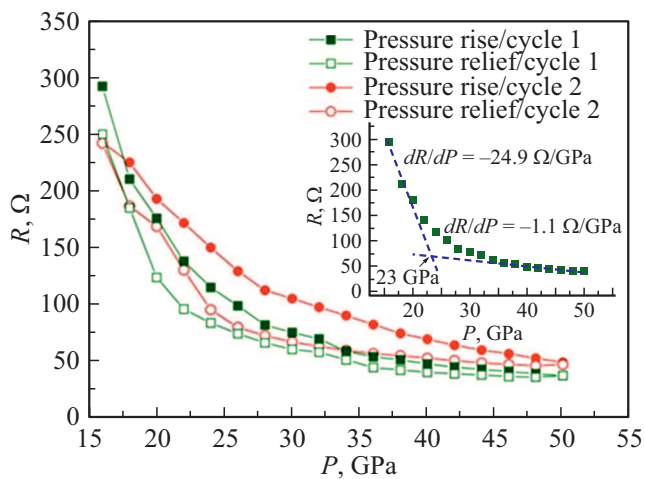


Рис. 3. Зависимости электрического сопротивления $\text{Cd}_3\text{As}_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ от давления при двух последовательных циклах измерений. На вставке показана зависимость $R(P)$ первого цикла при подъеме давления. Штриховые линии соответствуют определению наклонов dR/dP .

уже моноклинной ($P2_1/C$) [10]. Однако, исходя из данных рентгеновской дифракции, приведенных в работе [10], моноклинная фаза регистрировалась до давлений 17.8 GPa, в то время как ее преобладание до давлений 50 GPa носит лишь гипотетический характер. Поскольку в настоящей работе *in-situ* рентгеновские исследования при высоком давлении для $\text{Cd}_3\text{As}_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ не проводились, можно предположить, что наличие в композите незначительной фазы CdAs_2 может также оказывать определенную роль на появление гистерезиса зависимости $R(P)$. В настоящее время известно, что соединение CdAs_2 исследовано до давлений 9 GPa и в области 5.5 GPa по данным удельного сопротивления и коэффициента Холла сообщалось об обратимом структурном превращении [11]. С другой стороны, отметим, что возникновение гистерезисного поведения электро-транспорта может быть ассоциировано скорее всего с частичным разложением композита $\text{Cd}_3\text{As}_2 + \text{MnAs}$ (барическим разложением), чем с возникновением структурного перехода в области давлений выше 17.8 GPa. В пользу этого предположения также может свидетельствовать тот факт, что значение R после первого цикла не восстанавливается к исходному, а ширина гистерезиса увеличивается на втором цикле, как показано на рис. 3.

Отметим, что в качестве одного из структурно-чувствительных параметров к структурным превращениям или к барическому разложению в композитах может выступать магниторезистивный эффект [12,13]. На рис. 4 и 5 приведены полевые зависимости МС, измеренные при различных давлениях до 50 GPa и в магнитных полях до 1 Т при комнатной температуре. Измерения проводились в режимах подъема и сброса давления, что позволило качественно установить связь между

наблюдаемым гистерезисом на зависимости $R(P)$ и поведением МС. Величина поперечного МС рассчитывалась по формуле (1). Как следует из рис. 4 при $P = 16 \text{ GPa}$ в композите наблюдается положительное МС. Похожее положительное МС в $\text{Cd}_3\text{As}_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ ранее отмечалось при сравнительно небольшом давлении 7.7 GPa, которое объяснялось конкуренцией между влиянием силы Лоренца и спин-зависимого рассеяния носителей заряда на MnAs кластерах [2]. Это положительное МС, по-видимому, распространяется до давлений 16 GPa, однако, его величина постепенно понижается. Дальнейший рост P приводит к смене знака МС и максимальная величина отрицательного МС $\sim 20\%$ регистрируется при 22 GPa в поле 1 Т. Следует заметить, что в данной области давления происходит резкое изменение темпа dR/dP на зависимости $R(P)$ и пресечение линий аппроксимаций областей низкого и высокого давления соответствуют значению $\sim 23 \text{ GPa}$ (вставка к рис. 1).

При этом максимум индуцированного давлением отрицательного МС реализуется в сравнительно узкой

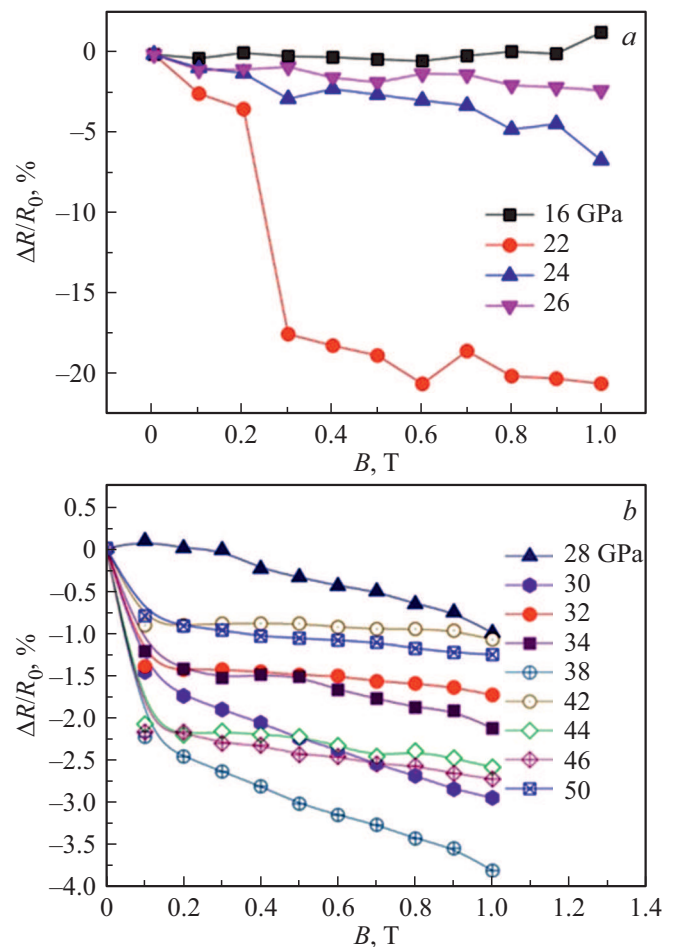


Рис. 4. Зависимости магнитосопротивления $\text{Cd}_3\text{As}_2 + 30 \text{ mol.}\% \text{ MnAs}$ от индукции магнитного поля в диапазоне давлений 16–26 GPa (a) и 28–50 GPa (b), измеренные в режиме повышения давления.

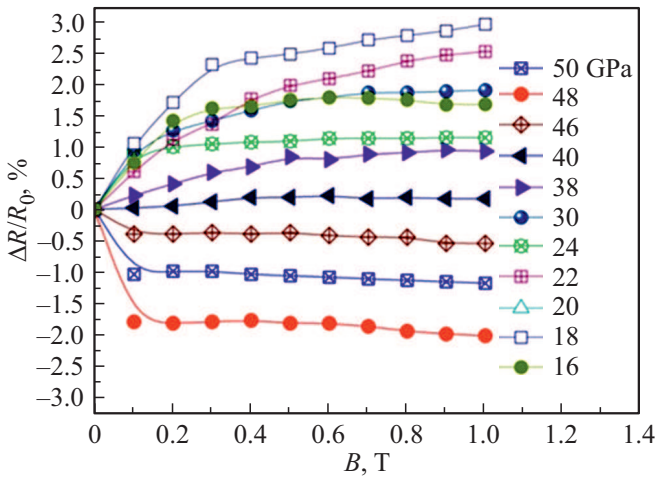


Рис. 5. Зависимости магнитосопротивления $Cd_3As_2 + 30\text{ mol.}\% MnAs$ от индукции магнитного поля при некоторых фиксированных значениях давления, измеренные в режиме сброса давления.

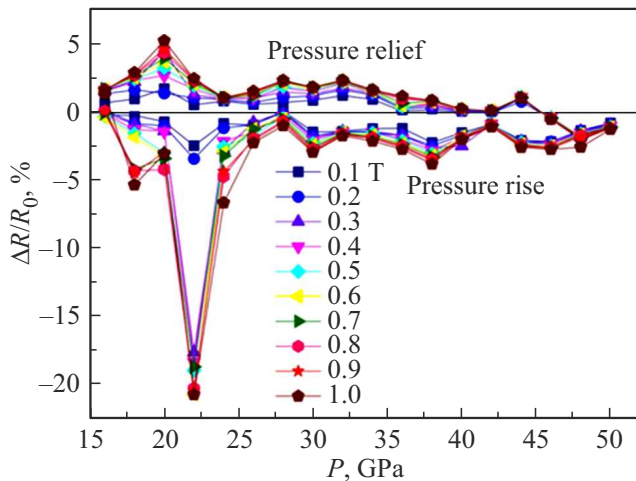


Рис. 6. Зависимости магнитосопротивления композита $Cd_3As_2 + 30\text{ mol.}\% MnAs$ от давления при различных значениях индукции поперечного магнитного поля до $B = 1\text{ T}$.

области давлений 22–26 GPa, как наглядно показано на рис. 6, и далее при $P > 26\text{ GPa}$ отрицательное МС не превышает 4% при 38 GPa. Динамика изменения этого отрицательного МС при подъеме давления представляется неоднозначной, поскольку имеет место несколько локальных минимумов на зависимости $\Delta R/R_0(P)$. В режиме сброса давления полевая зависимость МС отмечает инверсию знака при $P > 40\text{ GPa}$ (рис. 5) и в районе 20 GPa (рис. 6) наблюдается максимальное положительное МС $\sim 5.3\%$. Таким образом, смена знака МС в процессе подъема и сброса давления может указывать на то, что в $Cd_3As_2 + 30\text{ mol.}\% MnAs$ имеет место необратимость структурных свойств, обусловленная частичным разложением композита после декомпрессии.

В то же время наличие максимумов отрицательного и положительного МС предположительно связано с природой фазовых превращений в электронной подсистеме композита [5].

4. Заключение

В композите $Cd_3As_2 + 30\text{ mol.}\% MnAs$ исследовано сопротивление и особенность МС при высоком давлении до 50 GPa. Измерение R при циклировании P показала гистерезисную характеристику в широком диапазоне давлений, которая может быть связана с нестабильностью моноклинной структуры Cd_3As_2 при $P > 16\text{ GPa}$, с ее частичным разложением после сброса давления. Такое поведение подтверждается результатами измерения МС при подъеме и сбросе давления, которые отмечают смену знака МС с отрицательного на положительный. На зависимости $\Delta R/R_0(P)$ также обнаружены выраженные максимумы МС, в частности, при повышении давления максимум отрицательного МС $\sim 20\%$ и в режиме сброса давления максимум положительного МС $\sim 5.3\%$, происхождение которых, скорее всего, вызвано влиянием магнитной примеси Mn в результате топологического фазового превращения.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Л.А. Сайпулаева, М.М. Гаджалиев, А.Г. Алибеков, Н.В. Мельникова, В.С. Захвалинский, А.И. Риль, А.Ю. Моллаев. Неорган. материалы **55**, 9, 927 (2019).
- [2] А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев, Л.А. Сайпулаева, С.Ф. Маренкин, И.В. Федорченко, А.И. Риль. Журн. неорган. химии **62**, 1, 1 (2017).
- [3] А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев, Л.А. Сайпулаева, С.Ф. Маренкин, И.В. Федорченко. Неорган. материалы **52**, 4, 1 (2016).
- [4] Л.А. Сайпулаева, М.М. Гаджалиев, А.Г. Алибеков, Н.В. Мельникова, В.С. Захвалинский, А.И. Риль, С.Ф. Маренкин, А.Н. Бабушкин. ФТТ **62**, 6, 834 (2018)
- [5] Н.В. Мельникова, А.В. Тебеньков, Г.В. Суханова, А.Н. Бабушкин, Л.А. Сайпулаева, В.С. Захвалинский, С.Ф. Габибов, А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев. ФТТ **60**, 3, 490 (2018)
- [6] А.И. Риль, А.В. Кочура, С.Ф. Маренкин, А.Е. Кузько, Б.А. Аронзон. Изв. Юго-Зап. гос. ун-та. Серия. Техника и технологии **7**, 2(23), 120 (2017).
- [7] L.F. Vereshchagin, E.N. Yakovlev, B.V. Vinogradov, G.N. Strpanov, K.Kh. Bibaev, T.I. Alaeva, V.P. Sakun. High Temperatur.–High Press. **6**, 499 (1974).

- [8] A.N. Babushkin, G.I. Pilipenko, F.F. Gavrilov. *J. Phys.: Condens. Matter.* **5**, 8659 (1993).
- [9] A.N. Babushkin. *High Press. Res.* **6**, 349 (1992).
- [10] L. He, Y. Jia, S. Zhang, X. Hong, Ch. Jin, S. Li. *Quantum Mater.* **1**, 16014 (2016).
- [11] A.Y. Mollaev, L.A. Saypulaeva, R.K. Arslanov, S.F. Gabibov, S.F. Marenkin. *High Press. Res.* **22**, 181 (2002).
- [12] T.R. Arslanov, L. Kilanski, S. López-Moreno, A.Yu. Mollaev, R.K. Arslanov, I.V. Fedorchenko, T. Chatterji, S.F. Marenkin, R.M. Emirov. *J. Phys. D* **49**, 12, 125007 (2016).
- [13] T.R. Arslanov, U.Z. Zalibekov, L. Kilanski, I.V. Fedorchenko, T. Chatterji, R. Ahuja. *J. Appl. Phys.* **128**, 21, 213903 (2020).

Редактор Д.В. Жуманов