

03,05

Магнитосопротивление на постоянном и переменном токе в селениде марганца, замещенного тулием

© С.С. Аплеснин, А.М. Харьков, М.Н. Ситников

Сибирский государственный университет науки и технологий им. М.Ф. Решетнева, Красноярск, Россия

E-mail: apl@iph.krasn.ru

Поступила в Редакцию 12 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 12 апреля 2024 г.

Принята к публикации 24 июня 2024 г.

Исследуется масштаб электрической неоднородности в селениде марганца, замещенного тулием, на магнитосопротивлении на постоянном и переменном токе с использованием вольт-амперных характеристик (ВАХ), измеренных без поля и в магнитном поле в парамагнитной фазе. Найдена корреляция нелинейности ВАХ с магнитосопротивлением на постоянном токе. Обнаружено уменьшение сопротивления в магнитном поле на переменном токе с ростом концентрации ионов тулия. Отличие магнитосопротивления на постоянном и переменном токе объясняется учетом вклада диэлектрической проницаемости в модели магнитодиэлектрического резонанса.

Ключевые слова: полупроводники, селениды, сопротивление в магнитном поле, нелинейность ВАХ.

DOI: 10.61011/FTT.2024.08.58596.89

1. Введение

Полупроводники с магниторезистивным эффектом находят широкое практическое применение и с теоретической точки зрения представляют интерес исследования механизма влияния магнитного поля на полупроводники в парамагнитном состоянии [1–3]. Например, в пленках окиси цинка смена знака магнитосопротивления (MR) по полю объясняется конкурирующими вкладами $s-d$ -взаимодействия в многозонной модели (зона проводимости и примесная зона) [4–6]. В топологических изоляторах Bi_2Te_3 магнитосопротивление достигает величины порядка 400% в широкой области температур 3–300 К, и при 340 К достигает максимума 600% без признаков насыщения MR в магнитном поле, что объясняется спин-орбитальным взаимодействием [7–9]. В полупроводниках $\text{Ag}_{2\pm\delta}\text{Se}$ и $\text{Ag}_{2\pm\delta}\text{Te}$ магнитосопротивление объясняется за счет неоднородности [10] и дисперсий в функции распределения подвижности носителей, что приводит к Холловской проводимости от примесных центров [11–14]. Многократное рассеивание электронов в областях с низкой подвижностью в неоднородных полупроводниках, приводит к индуцированному беспорядку, где свободные носители замораживаются в каналах с высокой подвижностью при низких температурах. Для магнитосопротивления, обусловленного беспорядком, бесщелевой линейный закон дисперсии не является обязательным условием его возникновения [15]. Магнитосопротивление, индуцируемое беспорядком, резко зависит от температуры, имеет немонотонную температурную зависимость и наблюдается при высоких температурах.

Электрическую неоднородность можно варьировать в халькогенидах марганца при замещении ионов мар-

ганца редкоземельными ионами с переменной валентностью [16–18]. В результате химического давления при нагревании возможно изменение валентности, которое сопровождается изменением потенциала рассеяния и подвижности носителей тока [19]. Нестехиометрия может вызвать дополнительный канал передачи заряда, в котором носители тока замораживаются при низких температурах. Валентность ионов тулия меняется от трехвалентного в TmS [20] до двухвалентного в TmTe [21] через промежуточную валентность в TmSe [22]. Селенид марганца с замещенным тулием является перспективным материалом для изучения магниторезистивных эффектов.

В таких системах магниторезистивные эффекты определяются электрической неоднородностью и подвижностью носителей тока, которая зависит от времени изменения. Масштаб электрической неоднородности при наличии в системе миграционной поляризации по-разному проявится в магнитосопротивлении на постоянном и переменном токе; обнаружению этих эффектов посвящена настоящая работа.

2. Магнитосопротивление на постоянном токе

Твердые растворы селенида марганца, замещенного тулием, приготовлены с учетом нестехиометрии по катионам, чтобы увеличить валентность ионов тулия. Образцы $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$, $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ получены методом твердофазной реакции в вакуумированных кварцевых ампулах. Подробно методика синтеза описана в [23]. Рентгеноструктурный анализ селенидов подтверждает, что при замещении сохраняется гранцентрированная

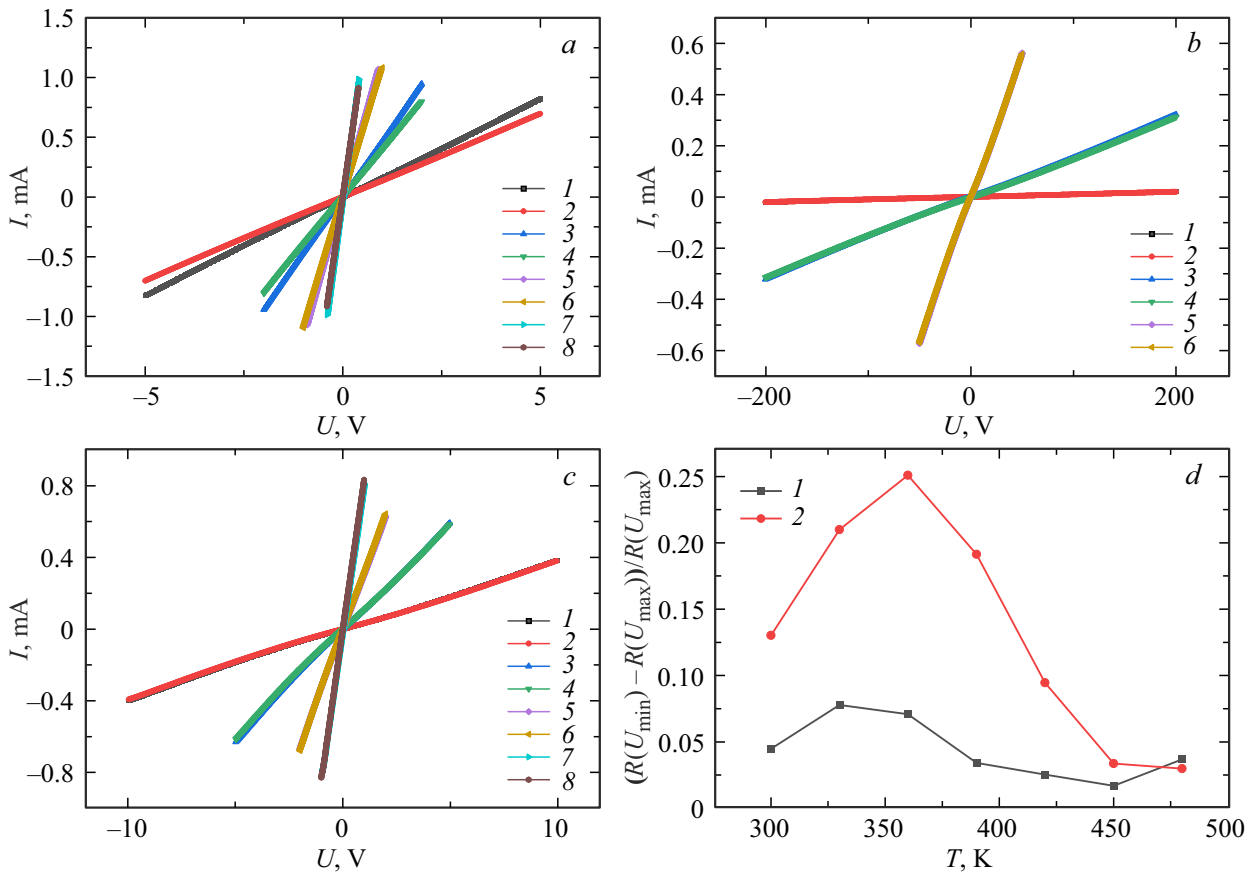


Рис. 1. Характеристика $I(V)$: *a* — при $T = 390$ К (кривые 1, 2), 420 (3, 4), 450 (5, 6), 480 (7, 8) для образца $Tm_{0.04}Mn_{0.95}Se$; *b* — при $T = 300$ К (1, 2), 330 (3, 4), 360 (5, 6) для $Tm_{0.08}Mn_{0.9}Se$; *c* — при $T = 390$ К (1, 2), 420 (3, 4), 450 (5, 6), 480 (7, 8) для $Tm_{0.08}Mn_{0.9}Se$; без поля (1, 3, 5, 7) и в магнитном поле $H = 8$ кОе (2, 4, 6, 8). *d* — температурная зависимость $(R(U_{min}) - R(U_{max}))/R(U_{max})$ для образцов $Tm_{0.04}Mn_{0.95}Se$ (1) и $Tm_{0.08}Mn_{0.9}Se$ (2).

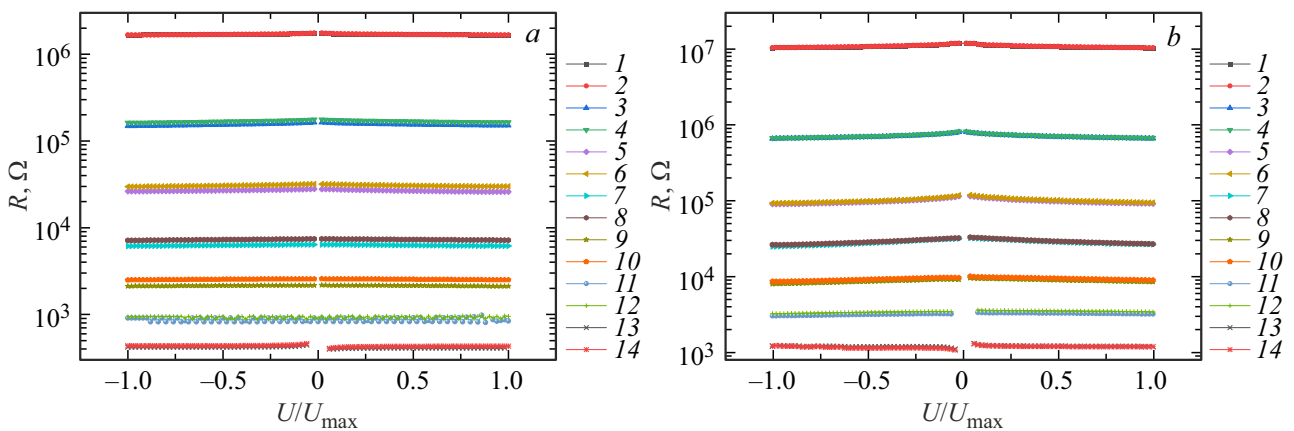


Рис. 2. Электросопротивление от нормированного напряжения U/U_{max} для образцов $Tm_{0.04}Mn_{0.95}Se$ (*a*) и $Tm_{0.08}Mn_{0.9}Se$ (*b*), измеренных без поля и в магнитном поле $H = 8$ кОе при температурах $T = 300$ К (кривые 1, 2), 330 (3, 4), 360 (5, 6), 390 (7, 8), 420 (9, 10), 450 (11, 12), 480 (13, 14); без поля (1, 3, 5, 7, 9, 11, 13) и в магнитном поле $H = 8$ кОе (2, 4, 6, 8, 10, 12, 14).

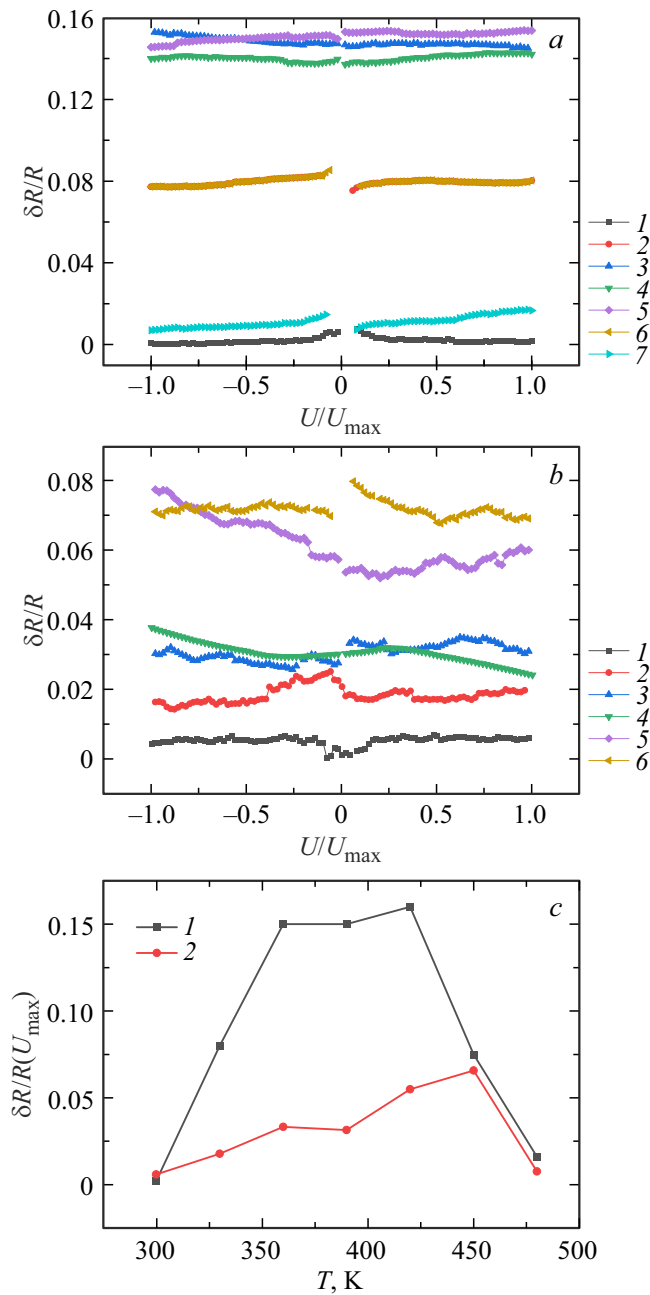


Рис. 3. Зависимости магнитосопротивления от нормированного напряжения U/U_{\max} для образцов $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$ (a) и $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ (b) при температурах $T = 300, 330, 360, 390, 420, 450, 480$ К — кривые 1–7 соответственно; c — температурная зависимость $\delta R/R(U_{\max})$ для $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$ (1) и $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ (2).

кубическая решетка типа NaCl. Магнитосопротивление на постоянном токе найдем из вольт-амперных характеристик (ВАХ), измеренных без поля и в магнитном поле. На рис. 1 приведены ВАХ для двух образцов.

Зависимость тока от напряжения является нелинейной, и отклонение от закона Ома определим в виде относительной разности сопротивления при максимальном и минимальном напряжении по абсолютной величине

$(R(U_{\min}) - R(U_{\max}))/R(U_{\max})$, изображенной на рис. 1, d. Нелинейность ВАХ возрастает при нагревании и проходит через максимум в интервале температур 340–360 К.

При нагревании сопротивление экспоненциально падает и ток резко растет, поэтому верхний предел тока ограничим значением 1 мА. На рис. 2 представлены зависимости сопротивления от нормированного напряжения, измеренные без поля и магнитном поле $H = 8$ кОе, направленном перпендикулярно току.

Изменение сопротивления в магнитном поле определим в виде $\delta R/R = (R(H) - R(0))/R(0)$, которое представлено на рис. 3. Величина магнитосопротивления практически не зависит от напряжения. Для образца $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ при $T = 390$ и 420 К наблюдается асимметрия магнитосопротивления.

Магнитосопротивление при нагревании проходит через максимум и коррелирует с ростом нелинейности ВАХ. Квадратичная зависимость тока от напряжения (закон Мотта) вызвана наличием нескомпенсированного заряда, электростатическое поле которого приводит к возникновению тока. Степенная зависимость $I = AU^n$ реализуется в полупроводниках, имеющих доноры и глубокие ловушки. Степенной рост контролируется уровнем энергии примеси [24] и эффектом Френкеля, а именно снижением энергии ионизации внешним электрическим полем, которое экранируется свободными зарядами [25]. Степенной закон завершается, когда все ловушки и примеси заполняются, как это допускается термическим равновесием, за которым следует режим Мотта–Герни [26].

В магнитном поле увеличивается радиус электрической неоднородности в результате локализации заряда на ловушках вблизи ионов тулия, что приводит к росту электросопротивления в магнитном поле на постоянном токе. Неоднородность играет важную роль в DC-магнитотранспортных свойствах в неупорядоченных средах, так как здесь смешиваются холловское сопротивление с продольными компонентами проводимости, что приводит к линейной зависимости магнетосопротивления от магнитного поля [27].

3. Магнитосопротивление на переменном токе

Проводимость на постоянном и переменном токе принципиально отличается в полупроводниках с электрической неоднородностью. Проводимость обнаруживает частотную зависимость $\sigma = A\omega^s$ в полупроводниках с прыжковым типом проводимости [28]. Кроме того, необходимо учитывать комплексный характер проводимости $\sigma(\omega, H)$, которая в поперечном магнитном поле имеет вид

$$\sigma(\omega, H) = \frac{\sigma}{1 + \beta^2} \begin{pmatrix} 1 & \beta \\ -\beta & 1 \end{pmatrix} + i\omega\varepsilon(\omega, H). \quad (1)$$

Здесь σ является скаляром DC-проводимости, ε — диэлектрическая проницаемость, которая тоже зависит

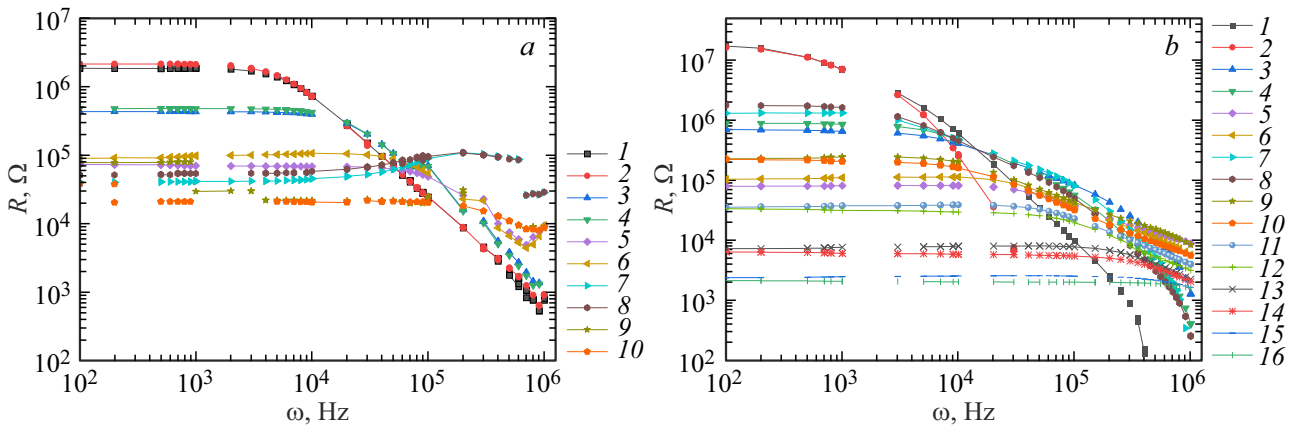


Рис. 4. Зависимость сопротивления от частоты для $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$ (а) при $T = 300$ К (кривые 1, 2), 330 (3, 4), 360 (5, 6), 390 (7, 8), 420 (9, 10) и $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ (b) при $T = 300$ К (1, 2), 310 (3, 4), 320 (5, 6), 330 (7, 8), 360 (9, 10), 390 (11, 12), 420 (13, 14), 450 (15, 16); без поля (1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15) и в магнитном поле $H = 8$ кОе (2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16).

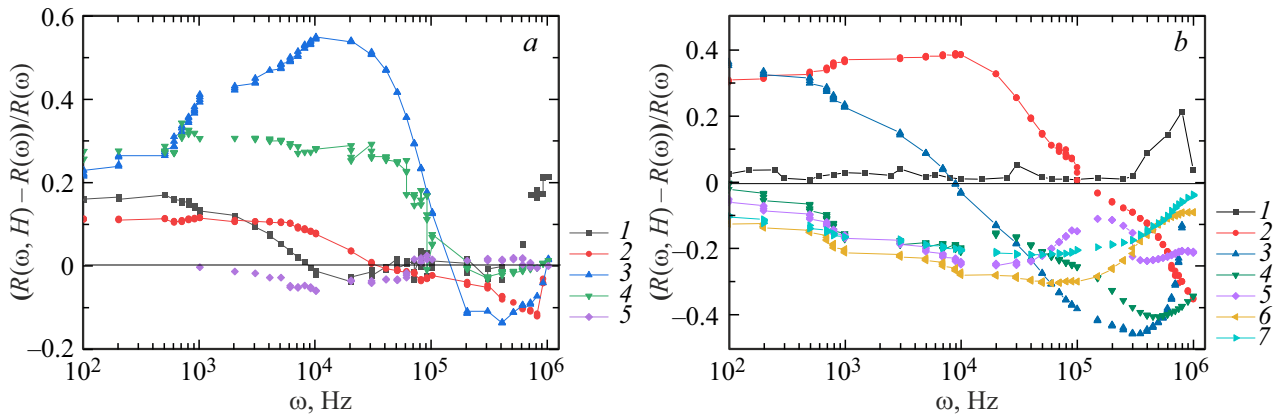


Рис. 5. Частотная зависимость магнитосопротивления для $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$ (а) при $T = 300, 330, 360, 390, 420$ К — кривые 1–5 соответственно и $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ (b) при $T = 300, 320, 330, 360, 390, 420, 450$ К — кривые 1–7 соответственно.

от частоты и магнитного поля, и $\beta = \mu H$, где μ — подвижность носителей заряда в магнитном поле.

Сопротивление на переменном токе приведено на рис. 4. При низких частотах $\omega\tau < 1$ сопротивление не зависит от частоты, так как доминирует емкостное сопротивление, тогда как на высоких частотах $\omega\tau > 1$ напряжение в основном падает на резисторе, поскольку не хватает времени для зарядки конденсатора.

Влияние магнитного поля на проводимость на переменном токе обусловлено дополнительным вкладом в результате магнитоёмкостного эффекта. На рис. 5 приведено относительное изменение АС-сопротивления в магнитном поле $H = 8$ кОе. Для состава $\text{Tm}_{0.04}\text{Mn}_{0.95}\text{Se}$ магнитосопротивление меняет знак выше 10^5 Hz, и для $\text{Tm}_{0.08}\text{Mn}_{0.9}\text{Se}$ выше 360 К проводимость уменьшается в магнитном поле.

Изменение магнитоёмкости образцов качественно описывается моделью магнитоэлектрического резонанса. В двухфазной двумерной композитной среде с предельными параметрами с $\sigma_1 = 0$, $\varepsilon = \varepsilon_1$, с концентрацией x и с $\sigma_2 = \sigma$, $\varepsilon = 0$ с $(1-x)$ найдено численное ре-

шение для диэлектрического отклика от частоты при фиксированных магнитных полях в двумерной двухкомпонентной среде [29]. В области частот $\omega\tau = (0.04-0.2)$ с концентрацией $x = 0.5$ найдено увеличение диэлектрической проницаемости в магнитном поле в результате смешивания холловского сопротивления с продольными компонентами проводимости [30].

В однородной системе $\varepsilon(\omega)$ в магнитном поле уменьшается. Наличие электрически неоднородных состояний приводит к росту диэлектрической проницаемости в магнитном поле [31]. В интервале времени $10^{-2}-10^{-6}$ с в образце с $x = 0.1$ существуют электрически неоднородные состояния выше 330 К.

4. Заключение

В твердых растворах нестехиометричного селенида марганца, замещенного тулием, из ВАХ обнаружены электрически неоднородные состояния, нелинейность которых проходит через максимум и коррелирует по температуре с положительным магнитосопротивлением

на постоянном токе. Рост электрической неоднородности приводит к смене знака магнитосопротивления по частоте и температуре на переменном токе. Уменьшение электросопротивления в магнитном поле связывается с ростом диэлектрической проницаемости в результате смешивания холловского сопротивления с продольными компонентами проводимости.

Благодарности

Авторы выражают благодарность А.И. Галясу из Научно-практического центра материаловедения НАН, г. Минск, за синтез образцов нестехиометричного селенида марганца, замещенного тулием.

Финансирование работы

Работа поддержана Российским научным фондом, Правительством Красноярского края и проектом Красноярского научного фонда № 23-22-10016.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A.G. Balanov, D. Fowler, A. Patanè, L. Eaves, T.M. Fromhold. *Phys. Rev. E* **77**, 2, 026209 (2008).
- [2] L. Ejsing, M.F. Hansen, A.K. Menon, H.A. Ferreira, D.L. Graham, P.P. Freitas. *Appl. Phys. Lett.* **84**, 23, 4729 (2004).
- [3] С.С. Аплеснин, М.Н. Ситников Письма в ЖЭТФ **100**, 2, 104 (2014). [S.S. Aplesnin, M.N. Sitnikov. *JETP Lett.* **100**, 2, 95 (2014)].
- [4] X.L. Wang, Q. Shao, A. Zhuravlyova, M. He, Y. Yi, R. Lortz, J.N. Wang, A. Ruotolo. *Sci. Rep.* **5**, 1, 9221 (2015).
- [5] X.L. Wang, C.Y. Luan, Q. Shao, A. Pruna, C.W. Leung, R. Lortz, J.A. Zapien, A. Ruotolo. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 10, 102112 (2013).
- [6] E.A. Fadeev, E. Lähderanta, B.A. Aronzon, A.B. Mekhiya, Yu.E. Kalinin, V.A. Makagonov, S.Yu. Pankov, V.A. Foshin, A.B. Granovsky. *J. Magn. Magn. Mater.* **535**, 167963 (2021).
- [7] S.X. Zhang, R.D. McDonald, A. Shekhter, Z.X. Bi, Y. Li, Q.X. Jia, S.T. Picraux. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 20, 202403 (2012).
- [8] B. Bhattacharyya, B. Singh, R.P. Aloysius, R. Yadav, C. Su, H. Lin, S. Auluck, A. Gupta, T.D. Senguttuvan, S. Husale. *Sci. Rep.* **9**, 1, 7836 (2019).
- [9] В.Н. Зверев, Н.А. Абдуллаев, З.С. Алиев, И.Р. Амрасланов, М.М. Отроков, Н.Т. Мамедов, Е.В. Чулков. Письма в ЖЭТФ **118**, 12, 902 (2023). [V.N. Zverev, N.A. Abdullayev, Z.S. Aliyev, I.R. Amiraslanov, M.M. Otrovkov, N.T. Mamedov, E.V. Chulkov. *JETP Lett.* **118**, 12, 905 (2023)].
- [10] R. Xu, A. Husmann, T.F. Rosenbaum, M.-L. Saboungi, J.E. Enderby, P.B. Littlewood. *Nature* **390**, 6655, 57 (1997).
- [11] M. von Kreutzbruck, B. Mogwitz, F. Gruhl, L. Kienle, C. Korte, J. Janek. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 7, 072102 (2005).
- [12] I.S. Chuprakov, K.H. Dahmen. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 17, 2165 (1998).
- [13] Z. Ogorelec, A. Hamzić, M. Basletić. *Europhys. Lett.* **46**, 1, 56 (1999).
- [14] H.S. Schnyders, M.-L. Saboungi, T.F. Rosenbaum. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 13, 1710 (2000).
- [15] A.A. Abrikosov. *Phys. Rev. B* **58**, 5, 2788 (1998).
- [16] S.S. Aplesnin, M.N. Sitnikov, O.B. Romanova, A.M. Kharkov, O.B. Begisheva, F.V. Zelenov. *Eur. Phys. J. Plus* **137**, 2, 226 (2022).
- [17] O.B. Romanova, S.S. Aplesnin, M.N. Sitnikov, L.V. Udod, A.M. Kharkov. *Appl. Phys. A* **128**, 2, 124 (2022).
- [18] S.S. Aplesnin, A.M. Kharkov, M.N. Sitnikov. *Eur. Phys. J. Plus* **139**, 3, 247 (2024).
- [19] W. Reim, P. Wachter. *Phys. Rev. Lett.* **55**, 8, 871 (1985).
- [20] J. Derr, G. Knebel, G. Lapertot, B. Salce, M.-A. Méasson, J. Flouquet. *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 6, 2089 (2006).
- [21] I. Jarrige, J.-P. Rueff, S.R. Shieh, M. Taguchi, Y. Ohishi, T. Matsumura, C.-P. Wang, H. Ishii, N. Hiraoka, Y.Q. Cai. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 12, 127401 (2008).
- [22] S. Lebégue, G. Santi, A. Svane, O. Bengone, M.I. Katsnelson, A.I. Lichtenstein, O. Eriksson. *Phys. Rev. B* **72**, 24, 245102 (2005).
- [23] O.B. Romanova, S.S. Aplesnin, M.N. Sitnikov, L.V. Udod, A.V. Shabanov, K.I. Yanushkevich, A.I. Galyas, A.M. Zhivulko. *Ceram. Int.* **48**, 20, 29822 (2022).
- [24] Y. Zhang, P.W.M. Blom. *Organ. Electron.* **11**, 7, 1261 (2010).
- [25] D. Sun, L. Yin, C. Sun, H. Guo, Z. Gai, X.-G. Zhang, T.Z. Ward, Z. Cheng, J. Shen. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 23, 236602 (2010).
- [26] J.A. Röhr, D. Moia, S.A. Haque, T. Kirchartz, J. Nelson. *J. Phys.: Condens. Matter* **30**, 10, 105901 (2018).
- [27] M.M. Parish, P.B. Littlewood. *Nature* **426**, 6963, 162 (2003).
- [28] E. Lampin, C. Delerue, M. Lannoo, G. Allan. *Phys. Rev. B* **58**, 18, 12044 (1998).
- [29] M.M. Parish, P.B. Littlewood. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 16, 166602 (2008).
- [30] M.M. Parish. *Phil. Trans. R. Soc. A* **372**, 2009, 20120452 (2014).
- [31] S.S. Aplesnin, M.N. Sitnikov, A.M. Kharkov, H. Abdelbaki. *J. Mater. Sci.: Mater. Electr.* **34**, 284 (2023). <https://doi.org/10.1007/s10854-022-09731-3>

Редактор Е.В. Толстякова