Гигантское магнитосопротивление и кинетические явления в *n*-Ag₄SSe в окрестности фазового перехода

© Ш.М. Алекперова, И.А. Ахмедов, Г.С. Гаджиева, Х.Д. Джалилова

Институт физики Национальной академии наук Азербайджана, AZ-1143 Баку, Азербайджан

E-mail: sh_alekperova@physics.ab.az

(Поступила в Редакцию 29 марта 2006 г.)

Впервые в процессе исследования кинетических явлений и магниторезистивного эффекта в сульфоселениде серебра (*n*-Ag₄SSe) в окрестности фазового перехода I рода обнаружено изотропное гигантское отрицательное магнитосопротивление: -(42-52)% в магнитном поле 6-9 kOe. Явление переноса и магниторезистивный эффект в *n*-Ag₄SSe исследуются впервые.

PACS: 75.47.De, 75.47.Pq

Нам не удалось обнаружить работы по исследованию кинетических явлений и магниторезистивного эффекта в узкозонных тройных халькогенидах I^B группы и гигантского магнитосопротивления (ГМС) в немагнитных полупроводниках. О наблюдении отрицательного магнитосопротивления (ОМС) в ряде сильнолегированных полупроводников (*n*-InSb, *p*-InSb, *n*-GaAs, *n*-InAs, Si, Ge) сообщалось в [1–3]. При 4.2 К и более высоких температурах (77 и 300 К) ОМС имело место в Ge(:As) [4]. Отмечается, что ОМС наблюдается при таких концентрациях примеси и таких температурах, когда основной вклад в удельное сопротивление вносит проводимость по примесной зоне. Известно не так много материалов, обладающих гигантским магнитосопротивлением (ГМС) при температурах, близких к 300 К.

Цель настоящей работы — изучение влияния напряженности магнитного поля до 9 kOe на кинетические явления и магниторезистивный эффект в n-Ag₄SSe. Ширина запрещенной зоны α -Ag₄SSe, определенная из оптических исследований [5] и из настоящих электрических измерений, оказалась равной 0.28 eV. В интервале температур 290-413 К и в магнитном поле 0-9 kOe измерены удельное сопротивление (ρ), коэффициент Холла (R) и магнитосопротивление (MC) *n*-Ag₄SSe. Погрешности измерения МС не превышали 4-6%. Исследованы также зависимости коэффициента Холла (R) и магнитосопротивления ($\Delta \rho / \rho_0$) при разных температурах от напряженности магнитного поля. Самым неожиданным в этих исследованиях оказался эффект ГМС, который впервые обнаружен в немагнитном полупроводнике n-Ag₄SSe в окрестности фазового $\alpha \leftrightarrow \beta$ перехода.

Тройное соединение n-Ag₄SSe получено как сплавлением отдельных компонентов (Ag — 99.999, Se — чистоты B-5, S — особой чистоты), так и из эквимолярных составов Ag₂S и Ag₂Se. После гомогенизирующего отжига образцы выборочно подвергнуты рентгеновскому микроанализу на металлографическом микроскопе MMP-4. Удельная электропроводность (σ) и коэффициент Холла (R) измерялись компенсационным методом. Образец прямоугольной формы $12 \times 5 \times 3$ mm для электрических измерений вырезался из поликристаллического слитка. Исследования $\sigma(T, K)$, R(T, K) *n*-Ag₄SSe показали явную аномалию в окрестности 348 K, что сделало необходимым снятие термограммы *n*-Ag₄SSe в интервале 290–1110 К. Термограммы сняты на дериватографе венгерской фирмы Паулик–Паулик–Эрдей. На термограмме (рис. 1) наблюдаются две эндотермические остановки: при 348 и 1108 К, соответствующая температуре плавления *n*-Ag₄SSe. Эндотермическая остановка при 348 K указывает на фазовый $\alpha \leftrightarrow \beta$ переход I рода. Резкое изменение $\sigma(T)$ и R(T) и возникновение сингулярной точки именно при 348 К также подтверждают наличие фазового перехода I рода при данной температуре (рис. 2). Характер изменения $\sigma(T)$ и R(T) при $\alpha \leftrightarrow \beta$ переходе связано не только с перестройкой решетки, но



Рис. 1. Термограмма *n*-Ag₄SSe.



Рис. 2. Зависимость электропроводности σ (1) и коэффициента Холла *R* (2) от температуры.

и с изменением типа химической связи: если в α-Ag₄SSe предполагается связь ковалентно-металлическая, то в β -Ag₄SSe, имеющей более высокую проводимость, преимущественно ионная. Кроме того, ход зависимости $\sigma(T, K), R(T, K)$ в температурном интервале 340–355 К позволяет утверждать, что переход низкотемпературной α -фазы *n*-Ag₄SSe в высокотемпературную β -фазу происходит не мгновенно, а через промежуточную метастабильную β' -фазу, т.е. в некотором температурном интервале, что наблюдалось ранее в Ag₂Se [6,7]. Это также находит подтверждение в зависимостях удельного сопротивления (рис. 3) и коэффициента Холла (рис. 4) при разных температурах от магнитного поля в диапазоне 0-9 kOe. Электронный тип проводимости *n*-Ag₄SSe сохраняется до и после фазового перехода. Удельное сопротивление α-фазы *n*-Ag₄SSe в интервале 290-338 K (кривые 1-3 на рис. 3) уменьшается с ростом магнитного поля, что говорит об ОМС, свидетельствующем о проявлении эффекта Кондо, выражающегося в том, что фиксация спинов примесных атомов внешним магнитным полем уменьшает (ρ) [8]. Сопротивление β -Ag₄SSe (температура 378-413 К; кривые 5, 6 на рис. 3) почти постоянно в интервале $0-9\,\mathrm{kOe}$ и на порядок меньше, чем удельное сопротивление α -Ag₄SSe. Известно, что МС состоит из двух компонент: обычной, предполагающей возрастание сопротивления кристалла в магнитном поле, и аномальной компоненты $\Delta \rho < 0$. Это явление базируется на модели дополнительного рассеяния носителей заряда на локализованных спинах электронов частично изолированных примесных атомов [1]. Верхний предел слабого поля существенно отличается для этих двух компонент: аномальная компонента достигает насыщения, в то время как обычная компонента еще проявляет зависимость от поля. Влияние экранирования ионов свободными электронами препятствует дальнейшему уменьшению сопротивления, хотя с увеличением концентрации носителей вклад рассеяния ионами безусловно увеличивается. Резко отличается характер зависимости $\rho(H)$ для α -Ag₄SSe при 348 K (кривая 4 на рис. 3): в диапазоне $0-7 \, \mathrm{kOe} \, \rho$ уменьшается от $6.25 \cdot 10^{-3}$ до $4.5 \cdot 10^{-3} \Omega \cdot cm$, начиная с 7 kOe ρ возрастает и достигает значения, равного ρ при H = 0. Ход зависимости $R(T) \sim f(H)$ при всех температурах кроме 348 К почти идентичен (рис. 4). При 348 К (кривая 2 на рис. 4) коэффициент Холла уменьшается от 0.68 cm³/С при 5.3 kOe до 0.44 cm³/К1 при 8.0 kOe, затем резко растет до 0.55 cm³/С в поле 9.0 kOe. Фактически полевая зависимость зависимость коэффициента Холла при температуре фазового перехода (348 К)



Рис. 3. Зависимость удельного сопротивления ρ от магнитного поля при разных температурах.



Рис. 4. Зависимость коэффициента Холла от напряженности магнитного поля при разных температурах.



Рис. 5. Зависимости от температуры: a — удельного сопротивления ρ при H = 0, b — ОМС при разных магнитных полях.

повторяет ход зависимости удельного сопротивления (кривая 4 на рис. 3).

Исследование магнитосопротивления было выполнено в полях 0-9 kOe в интервале температур от комнатной до 413 К. Для количественного описания магниторезистивного эффекта взято отношение разности удельного сопротивления во внешнем магнитном поле и без него к сопротивлению во внешнем поле $\Delta \rho / \rho = (\rho_H - \rho_0) / \rho_H$, применяемое обычно в экспериментах по ГМС. Температурные зависимости ρ (при H = 0) и MC в различных магнитных полях представлены на рис. 5. Поведение удельного сопротивления и МС характерно для двухфазного состояния. Наблюдается резкий максимум абсолютной величины МС (рис. 5, b), достигающий 42, 50, 51 и 52% в магнитных полях 6.0, 7.6, 8.5 и 9.0 kOe соответственно. Пики ГМС n-Ag₄SSe в магнитных полях 6.0-9.0 kOe расположены при температуре 338 K. Согласно [9], пик ГМС обычно находится на левой стороне пика сопротивления при H = 0 при температуре, где ρ составляет примерно половину своего пикового значения. Пик ρ в отсутствие поля (H = 0) (рис. 5, *a*) находится при температуре $T_{\rho} = 348$ K, пики ГМС сдвинуты к 338 К. Действительно, половина пикового значения сопротивления $\rho(T)$ оказывается при 338 К (рис. 5, *a*). Это находится в хорошем согласии с основным свойством отрицательного изотропного ГМС, заключающимся в том, что оно максимально в районе пика (ρ) при H = 0. Пики MC в магнитном поле 4.0 и 5.3 kOe (кривые 1, 2 на рис. 5, b) совпадают с Т_р в отсутствие поля (т.е. величина магнитного поля меньше 6.0 kOe недостаточна для возникновения ГМС). По-видимому, это можно объяснить тем, что электроны поляризуются по спину в сравнительно сильных полях. Ход зависимости MC n-Ag₄SSe аналогичен характеру температурной зависимости МС антиферромагнитного полупроводника, где колоссальное (-27%) отрицательное изотропное MC в слабом магнитном поле 8.4 kOe наблюдалось при температуре Кюри [10]. Температура фазового перехода I рода, так же как и температура Кюри, является точкой раздела двух фаз. Поведение удельного сопротивления (р) и магнитосопротивления $(-\Delta \rho / \rho)$ *n*-Ag₄SSe (рис. 5) характерно для двухфазного проводящего состояния. В приведенной литературе результаты, аналогичные нашим, получены на манганитах при ферро-антиферромагнитном разделении фаз в точке Кюри, т.е. при фазовом переходе второго рода [9-11]. Таким образом, можно утверждать, что в немагнитных полупроводниках, имеющих фазовый переход I рода, возникает гигантское изотропное отрицательное МС аналогично ГМС в магнитных полупроводниках в точке Кюри. Насколько можно судить, наши результаты являются первым экспериментальным наблюдением ГМС в немагнитном полупроводнике.

Список литературы

- [1] В.И. Фистуль. Сильнолегированные полупроводники. Наука, М. (1967). С. 179.
- [2] О.В. Емельяненко, З.Ш. Яновицкая. Тр. Всесоюз. конф. по физике полупроводников. Т. 1. Баку (1982). С. 169.
- [3] Т.А. Полянская, И.И. Сайдашев. Тр. Всесоюз. конф. по физике полупроводников. Т. 1. Баку (1982). С. 270.
- [4] М. Мирзабаев, В.М. Тучкевич, Ю.В. Шмарцев. ФТТ 5, 1625 (1963).
- [5] Ш.М. Алекперова, Н.Н. Абдул-заде, И.А. Ахмедов, Г.С. Гаджиева. Изв. НАН Азербайджана 20, 54 (2000).
- [6] Ш.М. Алекперова, Г.С. Гаджиева. Изв. АН СССР. Неорган. материалы 23, 158 (1987).
- [7] Г.А. Эфендиев, И.Р. Нуриев, Ф.Б. Шафизаде. Кристаллография 14, 915 (1969).
- [8] А.А. Абрикосов. Введение в теорию нормальных металлов. Наука, М. (1972).
- [9] Э.А. Нагаев. УФН 166, 833 (1996).
- [10] А.И. Абрамович, А.В. Мичурин. ФТТ 42, 2052 (2000).
- [11] K. Chahara, T. Ohno, M. Kasai, Y. Kozono. Appl. Phys. Lett. 63, 1290 (1993).