

03,05

## Транспортные и магнитные свойства композита $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10wt.\%MnAs$ с магнитными кластерами при высоком давлении

© Р.К. Арсланов<sup>1</sup>, Т.Р. Арсланов<sup>1</sup>, У.З. Залибеков<sup>1</sup>, И.В. Федорченко<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт физики им. Х.И. Амирханова ДагНЦ РАН, Махачкала, Россия

<sup>2</sup> Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, Россия

E-mail: arslanovr@gmail.com

(Поступила в Редакцию 10 августа 2016 г.)

В композите  $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10wt.\%MnAs$  с температурой Кюри  $T_c = 310$  К измерены температурные ( $T = 77-420$  К) зависимости удельного электросопротивления и намагниченности, магнитополевые ( $H \leq 5$  кОе) и барические ( $P \leq 7$  ГПа) зависимости удельного электросопротивления, коэффициента Холла и намагниченности. При высоком гидростатическом давлении до 7 ГПа наблюдался магнитоинертивный эффект. На зависимости намагниченности от давления при температуре, близкой к комнатной, обнаружен переход из ферромагнитного состояния в парамагнитное состояние при  $P \sim 3.2$  ГПа, который сопровождается фазовым переходом полупроводник–металл.

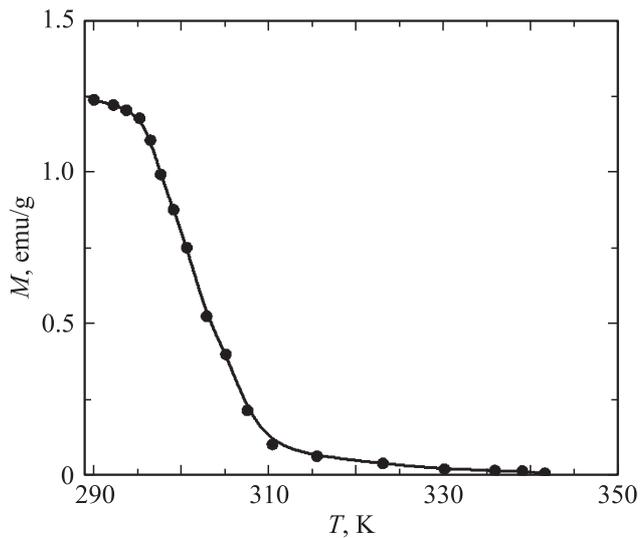
Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 16-02-00210а) и Президиума РАН (проект 1.11 П „Теплофизика высоких плотностей энергии. Материя при высоких давлениях. Фундаментальные проблемы удержания и нагрева плазмы в магнитных ловушках“).

DOI: 10.21883/FTT.2017.03.44155.322

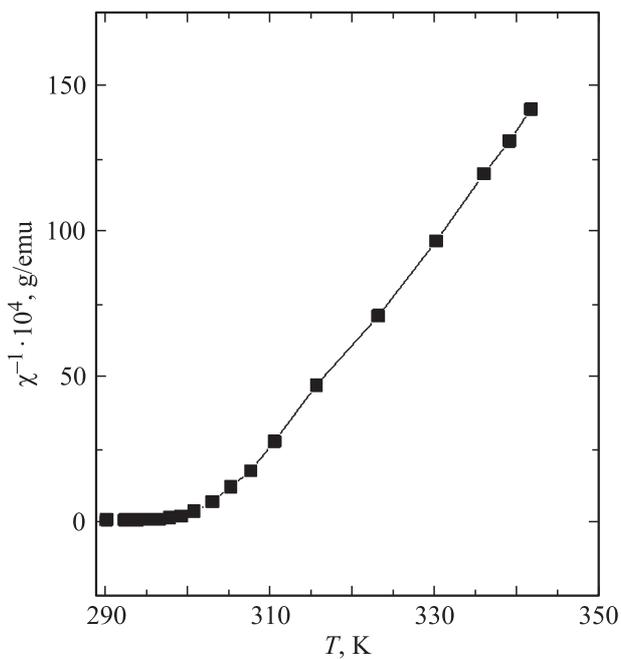
Ферромагнитные композиты имеют значительное преимущество по сравнению с хорошо известными Mn-легированными разбавленными магнитными полупроводниками III–V, IV–VI и II–VI групп, которые интенсивно изучаются в настоящее время [1,2]. Эти системы при комнатной температуре обладают ферромагнетизмом и вызывают значительный интерес, так как являются потенциальными материалами для спинтроники. Литературный обзор, посвященный изучению магнитных свойств этих систем, указывает на температуру Кюри значительно ниже 300 К. Неоднородные композитные системы являются более перспективными с точки зрения их практического применения [3]. Полупроводниковые композитные халькопириты II–IV–V<sub>2</sub>-соединений, легированные ионами переходных металлов, в последнее время интенсивно изучаются [4,5]. Было показано, что магнитное взаимодействие малого радиуса действия, связанное с наличием магнитных кластеров, ответственно за высокотемпературный ферромагнетизм в этих соединениях [6–8]. Большая растворимость ионов Mn в  $Zn_{1-x}Mn_xGeAs_2$  и  $Cd_{1-x}Mn_xGeAs_2$ , выращенных при термодинамических условиях равновесия, и довольно большие значения Mn-ионной проводимости магнитных констант обменного взаимодействия  $J_{pd} \sim 0.75 \pm 0.08$  eV указывают на то, что в этой группе полупроводников можно получить дальнедействующий спонтанный ферромагнетизм. В настоящей работе рассматривается проблема контроля магнитных и транспортных свойств ферромагнитного композита на основе халькопиритных II–IV–V<sub>2</sub>-соединений, легированных ионами Mn. Контроль свойств кластеров, связанных с

химическим составом полупроводниковой матрицы, позволит изменить физический механизм магнетосопротивления в композите. Целью настоящей работы является возможность управления знаком, абсолютной величиной магнетосопротивления и физическим механизмом, ответственным за магнетосопротивление.

Измерения проводились на поликристаллическом образце  $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10wt.\%MnAs$  в аппарате высокого давления типа „Тороид“ при гидростатическом давлении до  $P \leq 7$  ГПа в области комнатных температур при подъеме и сбросе давления. Аппарат „Тороид“ помещался в соленоид с напряженностью  $H \leq 5$  кОе. В качестве рабочей ячейки использовалась фторопластовая капсула полезным объемом  $\sim 80$  мм<sup>3</sup>, которая имела восемь электровводов, что позволяло измерять одновременно под давлением удельное сопротивление  $\rho$ , коэффициент Холла  $R_H$  и поперечное магнетосопротивление  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0$ . Давление контролировалось по манганиновому манометру, отградуированному по нескольким реперным точкам  $V_i$  во всем диапазоне давлений. Более подробно методика и техника эксперимента описаны в [9]. Синтез образцов и технологические режимы их выращивания представлены в [10]. Образцы для измерения удельного электросопротивления, коэффициента Холла и поперечного магнетосопротивления имели форму параллелепипеда размером  $3 \times 1 \times 1$  мм. Однородность образцов контролировалась по значениям удельного электросопротивления и коэффициента Холла четырехзондовым методом. Контакты изготавливались пайкой с помощью свинцово-оловянного припоя. Их линейность контролировалась по вольт-амперным харак-



**Рис. 1.** Температурная зависимость намагниченности при атмосферном давлении для  $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10 \text{ wt.}\%MnAs$ .



**Рис. 2.** Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости при атмосферном давлении для  $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10 \text{ wt.}\%MnAs$ .

теристикам. Образцы для измерения намагниченности имели цилиндрическую форму диаметром  $d = 1 \text{ mm}$  и высотой  $h = 3 \text{ mm}$ . Намагниченность  $M$  измерялась в переменном магнитном поле с частотой  $\omega = 700 \text{ Hz}$  ( $H = 100 \text{ Oe}$ ).

Температурная зависимость намагниченности была измерена в магнитном поле  $H = 100 \text{ Oe}$  в диапазоне температур  $270\text{--}350 \text{ K}$ . Результаты измерений представлены на рис. 1. Зависимость  $M(T)$  указывает на наличие магнитного фазового перехода при  $310 \text{ K}$ . Температура

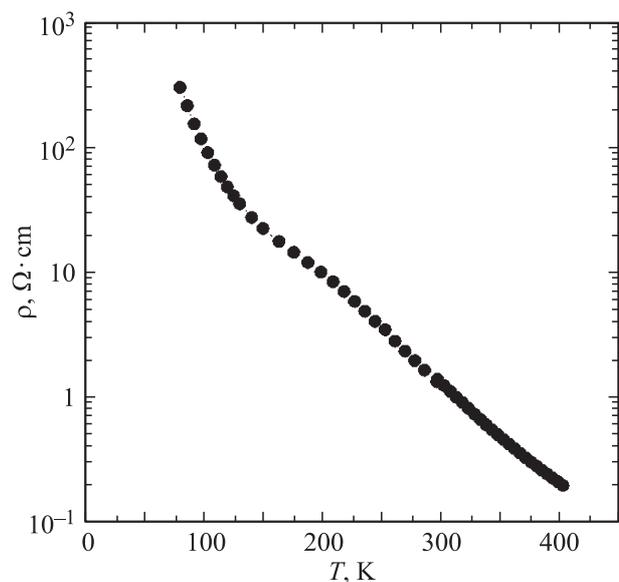
Кюри  $T_c$  определялась по точке перегиба кривой  $M(T)$ , т.е. там, где выполняется условие  $\partial^2 M / \partial T^2 \rightarrow 0$ . Магнитная восприимчивость  $\chi_{dc} = \partial M / \partial H_{\partial T} = \text{const}$  может быть рассчитана с использованием данных по намагниченности, выбранной при постоянной температуре и значении магнитной индукции  $B$ . Зависимость обратной магнитной восприимчивости показана на рис. 2 при температурах выше  $T_c$ , т.е. в парамагнитной области она должна подчиняться закону Кюри–Вейсса

$$\chi_{ac} = \frac{C}{T - \Theta} + \chi_{dia}, \quad (1)$$

где

$$C = \frac{N_0 g^2 \mu_B^2 S(S+1)}{3k_B}. \quad (2)$$

Здесь  $C$  — постоянная Кюри,  $\chi_{dia}$  — диамагнитный вклад магнитной восприимчивости решетки,  $N_0$  — число катионов на грамм,  $g$  —  $g$ -фактор магнитного иона (для  $Mn$   $g = 2$ ),  $S = 5/2$  — спин-магнитный момент иона  $Mn$ ,  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $k_B$  — постоянная Больцмана. Экспериментальные данные, полученные в диапазоне температур от  $290$  до  $350 \text{ K}$ , были использованы для расчета по уравнению (1) в предположении, что диамагнитный вклад в магнитную восприимчивость остается постоянным  $\chi_{dia} = -2 \cdot 10^{-7} \text{ emu/g}$  [11]. Расчетная кривая (сплошная линия) представлена вместе с экспериментальными данными (точки) на рис. 2, из которого видно, что магнитная восприимчивость образцов хорошо описывается выражением Кюри–Вейсса (1). С помощью экстраполяции зависимости  $\chi^{-1}(T)$  на ось температур была определена парамагнитная температура  $\Theta$ , которая оказалась равной  $\sim 308 \text{ K}$ . Значения  $\Theta$ , близкие к  $T_c$ , указывают на отсутствие магнитных разупорядочений в образце.



**Рис. 3.** Температурная зависимость удельного электросопротивления при атмосферном давлении для  $Zn_{0.1}Cd_{0.9}GeAs_2 + 10 \text{ wt.}\%MnAs$ .

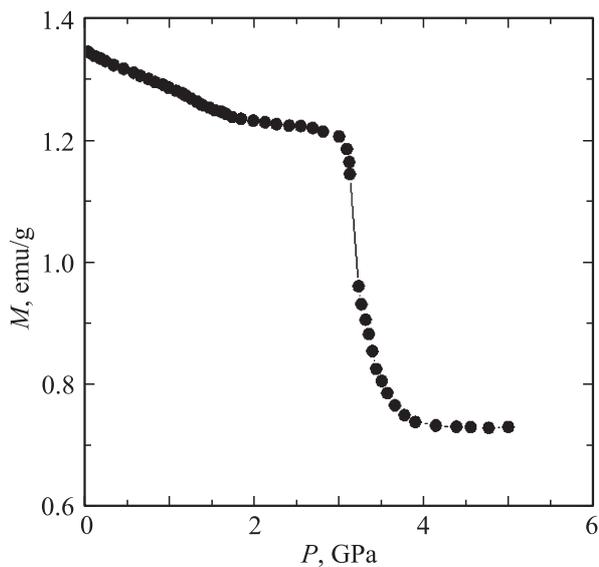


Рис. 4. Зависимость намагниченности от давления для  $\text{Zn}_{0.1}\text{Cd}_{0.9}\text{GeAs}_2 + 10 \text{ wt.}\% \text{ MnAs}$ .

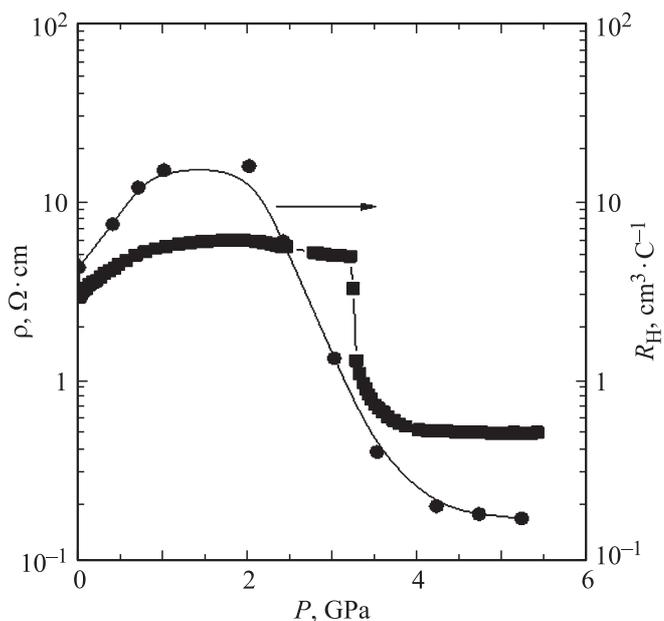


Рис. 5. Зависимость удельного электросопротивления и коэффициента Холла от давления, измеренного в магнитном поле  $H = 5 \text{ kOe}$  для  $\text{Zn}_{0.1}\text{Cd}_{0.9}\text{GeAs}_2 + 10 \text{ wt.}\% \text{ MnAs}$ .

На рис. 3 представлена зависимость удельного электросопротивления от температуры при атмосферном давлении для  $\text{Zn}_{0.1}\text{Cd}_{0.9}\text{GeAs}_2 + 10 \text{ wt.}\% \text{ MnAs}$ . Температурная зависимость удельного электросопротивления в парамагнитной области  $T > T_c$  с хорошей точностью описывается активационным законом  $\rho(T) \sim \exp(E_a/k_B T)$ . При этом рост удельного электросопротивления, наблюдаемый в низкотемпературной магнитоупорядоченной фазе ( $T < T_c$ ) (рис. 3), указывает на полупроводниковый характер основно-

го состояния образца. Результат измерения намагниченности в зависимости от давления при комнатной температуре представлен на рис. 4. Как следует из рис. 4, в области структурных изменений при давлении  $P > 3.2 \text{ GPa}$  наблюдается резкое уменьшение намагниченности, обусловленное магнитным фазовым переходом ферромагнетик–парамагнетик. На рис. 5 представлены зависимости удельного электросопротивления и коэффициента Холла от давления. Из рисунка видно, что удельное электросопротивление в зависимости от давления возрастает и при  $P \approx 2 \text{ GPa}$  достигает максимума, затем резко падает при  $P > 3.2 \text{ GPa}$  более чем на порядок. Коэффициент Холла возрастает до  $P \approx 2 \text{ GPa}$ , затем резко падает при  $P > 3.2$  почти на порядок. В области насыщения при  $P > 4 \text{ GPa}$   $\rho(P) \approx 0.5 \Omega \cdot \text{cm}$  и  $n(P) \approx 4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , т.е. при 3.2 GPa имеет место фазовый переход полупроводник–металл.

Магнетосопротивление (MR) рассчитывалось по формуле  $\text{MR} = (\rho_{xx}(H) - \rho_0)/\rho_0 \cdot 100\%$ , где  $\rho_{xx}(H)$  — сопротивление образца в магнитном поле,  $\rho_0$  — сопротивление образца в отсутствие магнитного поля. На рис. 6 представлены барические зависимости магнетосопротивления при различной напряженности магнитного поля. Увеличение давления и магнитного поля приводит к росту отрицательного магнетосопротивления (ОМС), а амплитуда ОМС при этом достигает максимума  $\sim 15\%$  в поле  $H = 5 \text{ kOe}$  при  $P \geq 1 \text{ GPa}$ . Дальнейшее увеличение давления и магнитного поля приводит к подавлению ОМС. В области фазового превращения при давлении  $P > 3.2 \text{ GPa}$  и поле  $H = 1 \text{ kOe}$  положительное магнетосопротивление составляет  $\sim 13\%$ . При сбросе давления на зависимостях  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$  обнаруживается

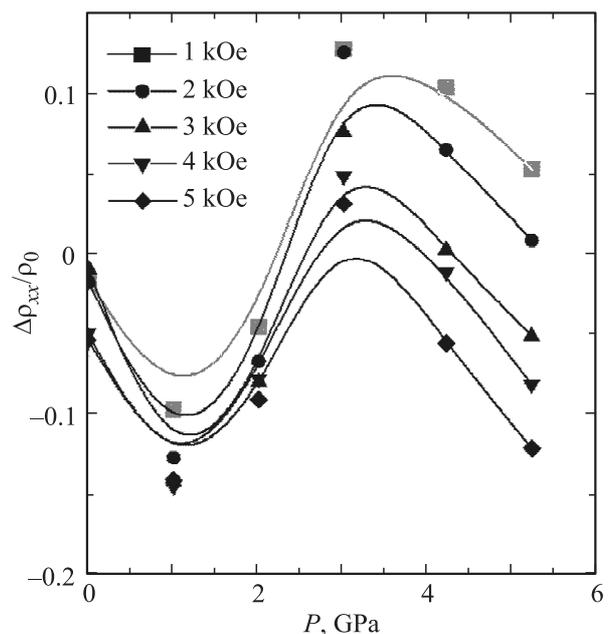


Рис. 6. Зависимости поперечного магнетосопротивления от давления в различных магнитных полях для  $\text{Zn}_{0.1}\text{Cd}_{0.9}\text{GeAs}_2 + 10 \text{ wt.}\% \text{ MnAs}$ .

гистерезис магнетосопротивления. Гистерезис магнетосопротивления, по-видимому, является характеристикой аномального рассеяния носителей заряда, возникающего при переходе в магнитоупорядоченное состояние при формировании ферромагнитных кластеров (ферронов).

## Список литературы

- [1] J. Kossut, W. Dobrowolski. Handbook of magnetic materials. North-Holland, Amsterdam (1993). P. 231–305.
- [2] W. Dobrowolski, J. Kossut, T. Story. Handbook of magnetic materials. Elsevier, Amsterdam (2003). Ch. II–VI. P. 28–377.
- [3] T. Dietl. Nature Mater. **9**, 965 (2010).
- [4] S.C. Erwin, I. Zutic. Nature Mater. **3**, 410 (2004).
- [5] S. Picozzi. Nature Mater. **3**, 349 (2004).
- [6] T.R. Arslanov, A.Yu. Mollaev, I.K. Kamilov, R.K. Arslanov, L. Kilanski, R. Minikaev, A. Reszka, S. López-Moreno, A.H. Romero, M. Ramzan, P. Panigrahi, R. Ahuja, V.M. Trukhan, T. Chatterji, S.F. Marenkin, T.V. Shoukavaya. Sci. Rep. **5**, 7720 (2015).
- [7] L. Kilanski, A. Zubiaga, F. Tuomisto, W. Dobrowolski, V. Domukhovski, S.A. Varnavskiy, S.F. Marenkin. J. Appl. Phys **106**, 013524 (2009).
- [8] L. Kilanski, M. Gorska, W. Dobrowolski, E. Dynowska, M. Wojcik, B.J. Kowalski, J.R. Anderson, C.R. Rotundu, D.K. Maude, S.A. Varnavskiy, I.V. Fedorchenko, S.F. Marenkin. J. Appl. Phys. **108**, 073925 (2010).
- [9] L.G. Khvostantsev, L.P. Vereshagin, A.P. Novikov. High Temp.High Press. **9**, 637 (1977).
- [10] I.V. Fedorchenko, A.N. Aronov, L. Kilanski, V. Domukhovski, A. Reszka, B.J. Kowalski, E. Lahderanta, W. Dobrowolski, A.D. Izotov, F. Marenkin. J. Alloys Compd. **599**, 121 (2014).
- [11] L. Kilanski, K. Szałowski, R. Szymczak, M. Gorska, E. Dynowska, P. Aleshkevych, A. Podgorni, A. Avdonin, W. Dobrowolski, I.V. Fedorchenko, S.F. Marenkin. J. Appl. Phys. **114**, 093908 (2013).