01,05

Магнитосопротивление и квантовые осцилляции в полуметалле WTe₂

© А.Л. Пирозерский¹, Е.В. Чарная^{1,¶}, М.К. Lee^{2,3}, L.-J. Chang³, С.В. Наумов⁴, А.Н. Доможирова⁴, В.В. Марченков^{4,5}

 ¹ Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия
² MOST Instrument Center at NCKU, Tainan, Taiwan
³ Department of Physics, National Cheng Kung University, Tainan, Taiwan
⁴ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия
⁵ Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия
Е-mail: e.charnaya@spbu.ru

Поступила в Редакцию 21 июля 2021 г. В окончательной редакции 21 июля 2021 г. Принята к публикации 23 июля 2021 г.

Обнаружение экстремального магнитосопротивления в немагнитных материалах привлекло внимание к полуметаллу WTe₂. Мы провели исследования магнитосопротивления в монокристалле дителлурида вольфрама в диапазоне магнитных полей до 14 Т. Магнитосопротивление возрастало с ростом поля по близкому к квадратичному закону без насыщения. Наблюдались осцилляции Шубникова-де Гааза. Найдены четыре фундаментальные частоты в спектре осцилляций, соответствующие двум электронным и двум дырочным карманам, обусловленным сильным спин-орбитальным взаимодействием.

Ключевые слова: полуметалл WTe₂, магнитосопротивление, осцилляции Шубникова-де Гааза, спектр осцилляций.

DOI: 10.21883/FTT.2021.12.51662.173

1. Введение

Слоистые кристаллы дителлурида вольфрама WTe₂ являются полуметаллами со структурой Td (ромбическая пространственная группа *Pmn2*₁) [1], которая остается стабильной при изменении температуры [2,3]. Недавно в WTe₂, как и в ряде других соединений с металлической проводимостью, был обнаружен экстремальный рост сопротивления при приложении постоянного магнитного поля [4-7]. Величина магнитосопротивления, определяемого как отношение изменения сопротивления к значению сопротивления в нулевом поле, была приблизительно пропорциональна квадрату индукции магнитного поля. Особенностью магнитосопротивления в WTe₂ является отсутствие насыщения вплоть до полей 60 Т [4]. На полевой зависимости магнитосопротивления также наблюдались осцилляции Шубникова-де Гааза [8-11]. Спектр осцилляций дает непосредственную информацию об энергии Ферми электронных и дырочных карманов в WTe2. Эти данные представляют особый интерес в связи с тем, что дителлурид вольфрама рассматривается в качестве возможного полуметалла Вейля на основе теоретических предсказаний и экспериментальных результатов, полученных различными методами (см, например, [12-14] и ссылки в этих работах). Измерения магнитосопротивления и осцилляций Шубникова-де Гааза при разных температурах позволяют изучать температурную эволюцию электронных и дырочных карманов, что важно при анализе трансформации топологии электронных зон [15]. Имеющиеся в литературе данные о частотах квантовых осцилляций, их температурной зависимости и величине магнитосопротивления не всегда согласуются друг с другом, что возможно связано с различием электронных свойств кристаллов, выращенных в различных условиях и различными методами. В настоящей работе мы представляем результаты исследования магнитосопротивления и осцилляций Шубникова-де Гааза в монокристалле WTe₂, выращенном в Институте физики металлов УрО РАН, Екатеринбург.

2. Образцы и эксперимент

Монокристалл дителлурида вольфрама WTe₂ был получен методом химического транспорта. В качестве газообразного реагента использовался бром. Рост кристалла осуществлялся в вакуумированной и запаянной кварцевой ампуле в течение трех недель. Образец для исследований был выколот из выращенного кристалла в форме тонкой пластины толщиной порядка 0.2 mm, ориентированной перпендикулярно оси *с*. Кристаллическая структура, монокристалличность и направления кристаллографических осей контролировались методом рентгеновской дифракции. Трехкратные слои атомов Te-W-Te (связь W-Te является ковалентной) образуют плоскости, перпендикулярные оси c, и связаны между собой слабым взаимодействием Ван-дер-Ваальса. Атомы вольфрама формируют внутри слоев цепочки, ориентированные вдоль кристаллографической оси a.

Измерение сопротивления образца в направлении оси *а* кристалла производилось с помощью системы PPMS-16 производства Quantum Design с использованием встроенной четырехконтактной методики. Температурная зависимость сопротивления в нулевом магнитном поле была получена в диапазоне от 2 до 300 К. Зависимость сопротивления от магнитного поля до 14 Т измерялась при температурах 2 и 5 К. Магнитное поле было направлено вдоль оси *с* кристалла. В этой геометрии согласно [9] магнитосопротивление имеет наибольшую величину.

3. Результаты и обсуждение

Изменение сопротивления с температурой в нулевом магнитном поле показано на рис. 1. Увеличение сопротивления с ростом температуры имеет металлический характер. В диапазоне от 90 до 200 К сопротивление образца демонстрирует линейную зависимость от температуры. Несмотря на сильный рост сопротивления при повышении температуры, отношение *RRR* значений сопротивлений при 300 К и при 2 К равно 31, что значительно меньше, чем было получено в других работах [4,8–10]. Это, по-видимому, связано с несколько большим количеством дефектов в исследуемом нами образце.

Кривые магнитосопротивления MR, измеренные при температурах 2 и 5 К, представлены на рис. 2. Магнитосопротивление в процентах рассчитывалось по формуле



Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления в нулевом внешнем магнитном поле. Прямая линия показывает линейную зависимость.



Рис. 2. Зависимость магнитосопротивления от внешнего магнитного поля при температурах 2 и 5 К.

 $MR = [R(B) - R(0)]/R(0) \times 100$, где R(B) и R(0) сопротивление образца в поле В и в нулевом поле соответственно. При 14Т магнитосопротивление достигает величины 3.45 · 10³% для температуры 2 К и 3.31 · 10³% для температуры 5 К. Полученные величины магнитосопротивления меньше, чем в работах [4,8–10], что коррелирует с меньшим отношением RRR. Как и в предыдущих исследованиях магнитосопротивления в полуметалле WTe₂, на зависимости MR от поля не наблюдается насыщения. Для обеих температур во всем диапазоне полей монотонный рост MR при усилении магнитного поля без учета осцилляций описывается степенной функцией, близкой к квадратичной, MR $\propto B^{1.78}$. Квадратичная зависимость предсказана теоретически для металлов, полуметаллов и полупроводников в области слабых магнитных полей. Она также наблюдается для компенсированных проводников с замкнутой поверхностью Ферми в области сильных эффективных магнитных полей [16]. Отсутствие насыщения магнитосопротивления свидетельствует о компенсации электронов и дырок [4,17]. В рамках двухзонной модели [18], в которой рассматривается одна электронная и одна дырочная зоны, удельное продольное сопротивление в магнитном поле описывается следующим соотношением:

$$\rho = \frac{1}{e} \frac{(n_e \mu_e + n_h \mu_h) + (n_e \mu_e \mu_h^2 + n_h \mu_h \mu_e^2) B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + (n_h - n_e)^2 \mu_e^2 \mu_h^2 B^2}, \quad (1)$$

в котором n_e и n_h — концентрации электронов и дырок, а μ_e и μ_h — соответствующие подвижности. При условии компенсации $n_e = n_h$, вводя среднюю подвижность $\overline{\mu}$, получаем для магнитосопротивления

$$MR = (\overline{\mu}B)^2.$$
(2)

Двухзонная модель была использована для объяснения большого магнитосопротивления в висмуте и графите, в которых однако наблюдалось насыщение уже в поле Частоты компонент спектра F, их относительная интенсивность I_{rel} и площадь A поперечного сечения поверхности Ферми электронных и дырочных карманов, рассчитанные для 2 и 5 К

	2 K			5 K		
	F(T)	I _{rel}	$A(\mathrm{nm}^{-2})$	F(T)	I _{rel}	$A(\mathrm{nm}^{-2})$
h_1	90.5	1	0.86	88.5	0.41	0.85
e_1	120.2	0.27	1.15	121.2	0.18	1.16
e_2	137.3	0.49	1.31	136.8	0.20	1.30
h_2	158.5	0.26	1.51	158.5	0.10	1.51
*	172	0.32		173.5	0.15	

порядка нескольких Т, что говорит о неполной компенсации электронов и дырок [19,20].

По полученным в настоящей работе данным можно найти среднюю подвижность $\overline{\mu}$. При 2 К средняя подвижность равна $4.2 \cdot 10^3 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$. Это близко к подвижности, полученной в [21]. Таким образом, в рамках двухзонной модели за большую величину магнитосопротивления отвечает высокая подвижность электронов и дырок при условии равенства их концентраций.

Отметим, что для интерпретации экстремального магнитосопротивления привлекались также модели, учитывающие особенность топологии электронных зон в топологических материалах, приводящую к ограничению обратного рассеяния носителей зарядов [6,22–25]. Однако для кандидата в полуметаллы Вейля WTe₂ дополнительные исследования свидетельствуют в пользу справедливости компенсации электронов и дырок [26].

На кривых магнитосопротивления, полученых при 2 и 5К (рис. 2), видны квантовые осцилляции Шубниковаде Гааза (ШдГ). Как и следует ожидать, осцилляции ШдГ ослабевают с ростом температуры. Анализ квантовых осцилляций магнитосопротивления проводился с помощью дискретного преобразования Фурье. Для выделения осцилляций на фоне зависимости магнитосопротивления от магнитного поля при обеих температурах монотонный рост магнитосопротивления аппроксимировался полиномом четвертого порядка и вычитался из экспериментальных кривых. На рис. 3 показаны осцилляции ШдГ в зависимости от обратной индукции магнитного поля. Рис. 4 и 5 демонстрируют преобразования Фурье, полученные при температурах 2 и 5К соответственно. Наряду с расчетом показаны вклады отдельных компонент спектра и их сумма. Пять частот F, соответствующих отдельным компонентам, и интенсивности компонент приведены в таблице. Следуя [9,10] найденные первые четыре частоты следует соотнести с электронным и дырочным карманами, расщепленными за счет спин-орбитального взаимодействия. Этим частотам в спектре осцилляций ШдГ соответствуют в таблице индексы h_1 , e_1 , e_2 и h_2 , где h и e обозначают дырочные и электронные карманы. Цифры 1 и 2 соответствуют двум возможным ориентациям спина. Пятая частота,



Рис. 3. Осцилляции Шубникова-де Гааза в зависимости от обратной индукции поля при температурах 2 и 5 К.



Рис. 4. Спектр осцилляций при температуре 2 К. Точки — результат Фурье-пребразования, тонкие сплошные линии — рассчитанные отдельные компоненты спектра, толстая сплошная линия — суммарный вклад компонент спектра.



Рис. 5. Спектр осцилляций при температуре 5 К. Точки — результат Фурье-пребразования, тонкие сплошные линии — рассчитанные отдельные компоненты спектра, толстая сплошная линия — суммарный вклад компонент спектра.

отмеченная символом *, по-видимому, является второй гармоникой самой низкой частоты. Соотношение Онзагера

$$F = (\Phi_0/2\pi^2)A,\tag{3}$$

позволяет по рассчитанным частотам квантовых осцилляций оценить размер A максимального сечения поверхности Ферми электронных и дырочных карманов, перпендикулярного направлению магнитного поля. В (3) Φ_0 — квант магнитного потока. Площади сечений также приведены в таблице. Сумма сечений для электронных карманов отличается от суммы сечений для дырочных карманов всего на 3%, что соответствует близкой концентрации электронов и дырок в исследуемом кристалле.

Частоты осцилляций ШдГ, полученные в настоящей работе, можно сравнить с частотами квантовых осцилляций, приведенными в опубликованных исследованиях кристалла WTe₂ [8,9,10,21,27,28]. В большинстве работ, за исключением [21], было выявлено четыре фундаментальные частоты квантовых осцилляций, разброс значений которых перекрывает различие с полученными нами частотами (таблица). Таким образом, наличие дефектов в исследованном кристалле, которые приводят к снижению *RRR*, не сказывается заметным образом на величине сечения поверхности Ферми электронных и дырочных карманов.

Осцилляции ШдГ могут быть интерпретированы на основе теории Лифшица-Косевича [10]. Согласно этой теории температурная зависимость интенсивности осцилляций позволяет оценить эффективную массу электронов *m*^{*}. Однако, в нашем случае по измерениям при двух температурах оценки для эффективной массы имеют большую погрешность.

4. Заключение

Исследованный нами монокристаллический образец полуметалла WTe₂ характеризуется отношением RRR = 31, что свидетельствует о присутствии заметного количества дефектов. Магнитосопротивление при температурах 2 и 4 К достигает величин, превышающих $3 \cdot 10^3$ %. Спектр осцилляций Шубникова-де Гааза содержит четыре фундаментальные частоты, согласующиеся с результатами опубликованных исследований магнитосопротивления в дителлуриде вольфрама. Таким образом, дефекты кристаллической структуры, приводящие к снижению магнитосопротивления, не сказываются заметным образом на топологии электронных зон в WTe₂.

Финансирование работы

Исследования финансировались РФФИ, грант 19-57-52001 МНТ-а. Рост кристаллов выполнен в рамках государственного задания МИНОБРНАУКИ России (тема "Спин", № АААА-А18-118020290104-2) при частичной поддержке Правительства РФ (постановление № 211, контракт № 02.А03.21.0006).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] B.E. Brown. Acta Cryst. 20, 268 (1966).
- [2] D. Kang, Y. Zhou, W. Yi, C. Yang, J. Gou, Y. Shi, S. Zhang, Z. Wang, C. Zhang, S. Jiang, A. Li, K. Yang, Q. Wu, G. Zhang, L. Sun, Z. Zhao. Nature Commun. 6, 7804 (2015).
- [3] X.-C. Pan, X. Chen, H. Liu, Y. Feng, Z. Wei, Y. Zhou, Z. Chi, L. Pi, F. Yen, F. Song, X. Wan, Z. Yang, B. Wang, G. Wang, Y. Zhang. Nature Commun. 6, 7805 (2015).
- [4] M.N. Ali, J. Xiong, S. Flynn, J. Tao, Q.D. Gibson, L.M. Schoop, T. Liang, N. Haldolaarachchige, M. Hirschberger, N.P. Ong, R.J. Cava. Nature 514, 205 (2014).
- [5] E. Mun, H. Ko, G.J. Miller, G.D. Samolyuk, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield. Phys. Rev. B 85, 035135 (2012).
- [6] T. Liang, Q. Gibson, M.N. Ali, M. Liu, R.J. Cava, N.P. Ong. Nature Mater. 14, 280 (2015).
- [7] K. Wang, D. Graf, L. Li, L. Wang, C. Petrovic. Sci. Rep. 4, 7328 (2014).
- [8] Z. Zhu, X. Lin, J. Liu, B. Fauqué, Q. Tao, C. Yang, Y. Shi, K. Behnia. Phys. Rev. Lett. 114, 176601 (2015).
- [9] D. Rhodes, S. Das, Q.R. Zhang, B. Zeng, N.R. Pradhan, N. Kikugawa, E. Manousakis, L. Balicas. Phys. Rev. B 92, 125152 (2015).
- [10] P.L. Cai, J. Hu, L.P. He, J. Pan, X.C. Hong, Z. Zhang, J. Zhang, J. Wei, Z.Q. Mao, S.Y. Li. Phys. Rev. Lett. **115**, 057202 (2015).
- [11] Y. Wang, K. Wang, J. Reutt-Robey, J. Paglione, M.S. Fuhrer. Phys. Rev. B 93, 121108(R) (2016).
- [12] C. Wang, Y. Zhang, J. Huang, S. Nie, G. Liu et al. Phys. Rev. B 94, 241119(R) (2016).
- [13] P.K. Das, D.D. Sante, F. Cilento, C. Bigi, D. Kopic et al. Electron. Struct. 1, 014003 (2019).
- [14] A.O. Antonenko, E.V. Charnaya, A.L. Pirozerskii, D.Yu. Nefedov, M.K. Lee, L.J. Chang, J. Haase, S.V. Naumov, A.N. Domozhirova, V.V. Marchenkov. Res. Phys. 21, 103793 (2021).
- [15] Y. Wu, N.H. Jo, M. Ochi, L. Huang, D. Mou, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, N. Trivedi, R. Arita, A. Kaminski. Phys. Rev. Lett. 115, 166602 (2015).
- [16] И.М. Лифшиц, М.Я. Азбель, М.И. Каганов. Электронная теория металлов. Наука, М. (1971).
- [17] Y.K. Luo, H. Li, Y.M. Dai, H. Miao, Y.G. Shi, H. Ding, A.J. Taylor, D.A. Yarotski, R.P. Prasankumar, J.D. Thompson. Appl. Phys. Lett. **107**, 182411 (2015).
- [18] J. Singleton. Band Theory and Electronic Properties of Solids. Oxford University Press, (2001).
- [19] P.B. Alers, R.T. Webber. Phys. Rev. 91, 1060 (1953).
- [20] Y. Kopelevich, J.H.S. Torres, R.R. da Silva, F. Mrowka, H. Kempa, P. Esquinazi. Phys. Rev. Lett. 90, 156402 (2003).
- [21] D. Fu, X. Pan, Z. Bai, F. Fei, G.A. Umana-Membreno, H. Song, X. Wang, B. Wang, F. Song. Nanotechnology 29, 135705 (2018).
- [22] H. Weng, C. Fang, Z. Fang, B.A. Bernevig, X. Dai. Phys. Rev. X 5, 011029 (2015).

- [23] Y. Zhao, H. Liu, C. Zhang, H. Wang, J. Wang, Z. Lin, Y. Xing, H. Lu, J. Liu, Y. Wang, S.M. Brombosz, Z. Xiao, S. Jia, X.C. Xie, J. Wang. Phys. Rev. X 5, 031037 (2015).
- [24] B.Q. Lv, H.M. Weng, B.B. Fu, X.P. Wang, H. Miao, J. Ma, P. Richard, X.C. Huang, L.X. Zhao, G.F. Chen, Z. Fang, X. Dai, T. Qian, H. Ding. Phys. Rev. X 5, 031013 (2015).
- [25] N.J. Ghimire, Y. Luo, M. Neupane, D.J. Williams, E.D. Bauer, F. Ronning, J. Phys.: Condens. Matter 27, 152201 (2015).
- [26] Y. Wang, L. Wang, X. Liu, H. Wu, P. Wang, D. Yan, B. Cheng, Y. Shi, K. Watanabe, T. Taniguchi, S.-J. Liang, F. Miao. Nano Lett. 19, 3969 (2019).
- [27] K. Tsumura, R. Yano, H. Kashiwaya, M. Koyanagi, S. Masubuchi, T. Machida, H. Namiki, T. Sasagawa, S. Kashiwaya. J. Phys.: Conf. Ser. 969, 012134 (2018).
- [28] Y. Luo, H. Li, Y.M. Dai, H. Miao, G. Shi, H. Ding, A.J. Taylor, D.A. Yarotski, R.P. Prasankumar, J.D. Thompson. Appl. Phys. Lett. 107, 182411 (2015).

Редактор К.В. Емцев