

03,05,07

## Влияние высокого давления на кинетические характеристики гетерогенного сплава $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$

© Л.А. Сайпулаева<sup>1</sup>, А.И. Риль<sup>2</sup>, С.Ф. Маренкин<sup>2</sup>, Ш.Б. Абдулвагидов<sup>1</sup>, У.З. Залибеков<sup>1</sup><sup>1</sup> Институт физики ДФИЦ РАН,  
Махачкала, Россия<sup>2</sup> Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН,  
Москва, Россия

E-mail: uzvideo@inbox.ru

Поступила в Редакцию 20 марта 2024 г.

В окончательной редакции 26 марта 2024 г.

Принята к публикации 27 марта 2024 г.

Представлены результаты экспериментального исследования удельного электросопротивления  $\rho(P)$ , коэффициента Холла  $R_H(P)$  и поперечного магнетосопротивления  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$  гетерогенного сплава  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  при гидростатическом давлении до 9 ГПа при комнатной температуре. В диапазоне давлений  $P \approx (1.6-2.7)$  ГПа наблюдались особенности поведения  $\rho(P)$ ,  $R_H(P)$  и  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$   $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$ , которые связаны с фазовыми переходами в  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  и  $\text{MnAs}$ . Измерения магнетосопротивления (МС) в режимах подъема и сбавления давления выявили особенности в виде максимумов отрицательного и положительного МС. С ростом магнитного поля наблюдается значительное увеличение отрицательного МС. В барической области 1.6–2.8 ГПа наблюдалась максимальное отрицательное МС  $\approx 10\%$  при  $P \approx 2.2$  ГПа.

**Ключевые слова:** высокие давления, удельное сопротивление, коэффициент Холла, магнетосопротивление, фазовый переход.

DOI: 10.61011/FTT.2024.05.58074.62

### 1. Введение

В настоящее время достаточное внимание уделяется исследованию отрицательного магнетосопротивления (ОМС) в магнитных и немагнитных материалах. Предложены различные модели для описания этого явления, как учитывающие, так и не учитывающие наличие примесей в материалах. Механизм большого ОМС, наряду с традиционными моделями, в работах, посвященных изучению ОМС в графене, связываются с разупорядочением, а не с магнетизмом [1,2].

В узкозонных полупроводниках зависимость степени упорядоченности или разупорядоченности подвижных электронов от магнитного поля определяет тип МС [3]: магнитное поле упорядочивает почти свободные электроны, то есть выстраивает их спины в „ферромагнитном“ порядке, что приводит к появлению отрицательного характера МС. Отрицательное МС в топологическом изоляторе  $\text{TlBi}_{0.15}\text{Sb}_{0.85}\text{Te}_2$  вызвано эффектом Зеемана [3], приводящему к появлению кластерообразного изменения электронной структуры. В этих кластерах спины электронов сонаправлены, благодаря чему сопротивление в них немного уменьшается и возникает отрицательное МС.

Ряд авторов связывают проявление ОМС с тем, что электроны будут испытывать меньшее рассеяние в полукристаллах или материалах с большим количеством дефектов в виде, например, пластинчатых поверхностей и др., в том случае, если при увеличении индукции магнитного поля радиус кривизны траектории электрона

будет меньше и, следовательно, меньше будет вероятность столкнуться с плоскостями рассеяния, длина пробега будет возрастать [4].

Большое количество исследователей связывает проявление ОМС, что близко к нашей точке зрения, с наличием фазовых переходов [5–7]. В настоящей работе в качестве перспективного направления исследований рассматривается гетерогенный сплав  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$ . Соединение  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  впервые рассматривалось как узкозонный полупроводник с аномально высокой подвижностью электронов. Совсем недавно  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  был переоткрыт как 3D топологический полуметалл, позиционируемый как объемный аналог графена, обладающий ОМС и сверхпроводимостью. Зона проводимости и валентная зона  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  имеют линейный закон дисперсии и касаются друг друга в трехмерной зоне Бриллюэна, образуя точки Дирака. При условии обращения времени и инвертированной симметрии, точки Дирака двукратно вырождены. Нарушение симметрии приводит к расщеплению точки Дирака. Магнитное поле преобразует полуметалл Вейля, генерируя ОМС и вызывая сверхпроводящие свойства.

Мы исследовали влияние гидростатического давления на кинетические свойства  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$ . В настоящей работе приведены результаты экспериментального исследования удельного электросопротивления  $\rho(P)$ , коэффициента Холла  $R_H(P)$  и поперечного магнетосопротивления  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$   $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  при гидростатическом давлении до 9 ГПа давления в области комнатных температур.

## 2. Методика и техника эксперимента

Синтез объемных кристаллов  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  проводился вакуумно-ампульным методом из соединений  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  и  $\text{MnAs}$  при температуре плавления арсенида марганца [8]. Для исследования структуры образцов, их состава и распределения элементов на поверхности использовался сканирующий электронный микроскоп (СЭМ) JSM-6610LV (Jeol) с приставкой для энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС) X-MaxN (Oxford Instruments). При съемке применялись детекторы вторичных и обратно рассеянных электронов. Измерения при высоком давлении до 9 ГПа выполнены в установке Тороид [9] в режиме комнатных температур.

## 3. Результаты измерений и обсуждения

Приведенная на рис. 1 дифрактограмма РФА  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  хорошо идентифицирует две фазы:  $\alpha\text{-Cd}_3\text{As}_2$  ( $I4_1cd$ , п.г. 110) с тетрагональной структурой и  $\text{MnAs}$  с гексагональной структурой ( $P6_3/mmc$ , п.г. 194).

На рис. 2 представлены измеренные при комнатной температуре (300 К) барические зависимости удельного электросопротивления  $\rho(P)$  в  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  в режимах компрессии и декомпрессии. При  $P \geq 1.5$  ГПа  $\rho(P)$  меняется слабо, достигая максимума при  $P \approx 1.95$  ГПа, связанного с фазовым переходом. При дальнейшем росте давления до 8 ГПа  $\rho(P)$  растет существенно быстрее и при сбросе давления обнаруживается минимум при  $P \approx 2.7$  ГПа. Изменения  $\rho(P)$  обратимы, т.е. при снятии давления сопротивление возвращается почти к исходным значениям. Отсутствующий или почти отсутствующий гистерезис указывает на то, что фазовый переход в окрестности давлений 1.75–2.7 ГПа является либо электронным переходом, либо слабым структурным переходом

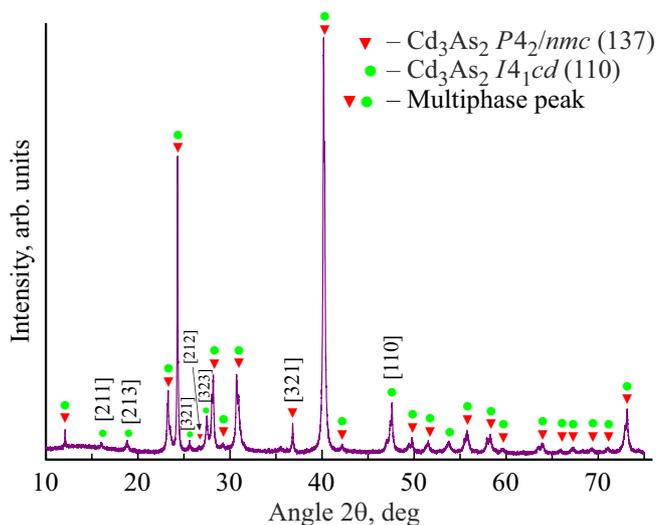


Рис. 1. Дифрактограмма образца  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$ .

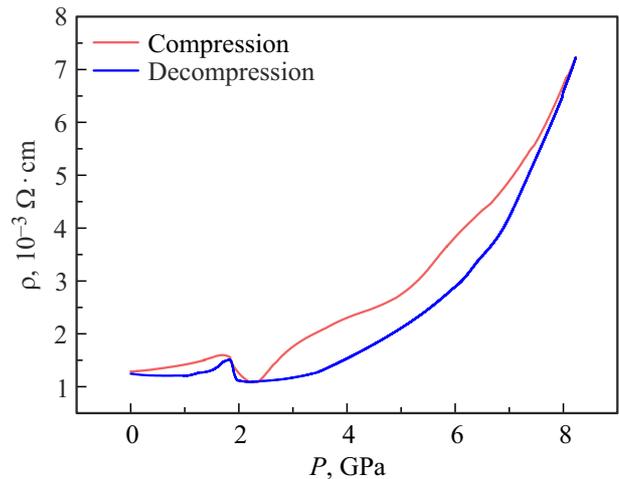


Рис. 2. Зависимости удельного электросопротивления  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  при компрессии и декомпрессии.

дом 1-го рода, близким ко 2-му, при котором изменяется симметрия кристалла, а относительное изменение объемов элементарных ячеек до и после перехода незначительно или отсутствует. Обращает на себя внимание, что при компрессии ширина перехода (0.7 ГПа) значительно шире, чем при декомпрессии (0.1 ГПа), свидетельствуя, что давление приводит к упорядочиванию или аннигиляции дефектов в образце (синяя кривая лежит ниже красной).

Существующая информация по электротранспорту в  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  при высоких давлениях [10–12] указывает на выраженные изменения в диапазоне давлений 2.5–4 ГПа. Тетрагональная фаза обнаруживается при  $\approx 2.5$  ГПа, тогда как моноклинная фаза локализуется при  $\approx 4$  ГПа [10]; фазовый переход полуметалл–полупроводник происходит при давлении 2.5 ГПа. В другом исследовании [11]  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  демонстрирует поведение полуметалл–полупроводник при значительно более низком давлении (1.1 ГПа) по сравнению с наблюдаемым структурным фазовым переходом в области 2.6–4.67 ГПа. Кроме того, для давлений выше 8.5 ГПа наблюдается низкотемпературная сверхпроводящая фаза, что подтверждает более раннее предложение  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  в качестве кандидата на топологическую сверхпроводимость. Итак, измерения электрического транспорта в  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  показывают противоречивые интерпретации фазы высокого давления.

Исследуемый нами в настоящей работе материал  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  — новый полуметаллический полупроводник мало известен и слабо изучен. Барическое исследование удельного электросопротивления  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  указывает на полуметаллический характер проводимости. Гидростатическое давление должно приводить к уменьшению полуметаллического перекрытия энергетических зон. Действительно, как показывают наши измерения, под давлением перекрытие уменьшается и сопротивление возрастает. Для получе-

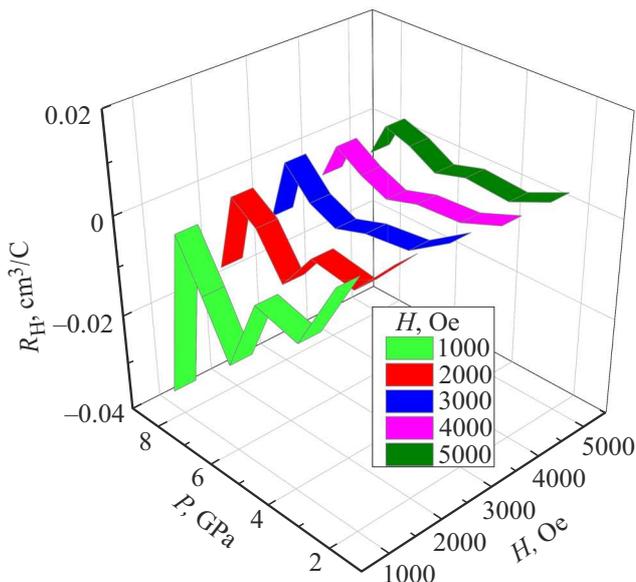


Рис. 3. Барические зависимости коэффициента Холла  $R_H$ .

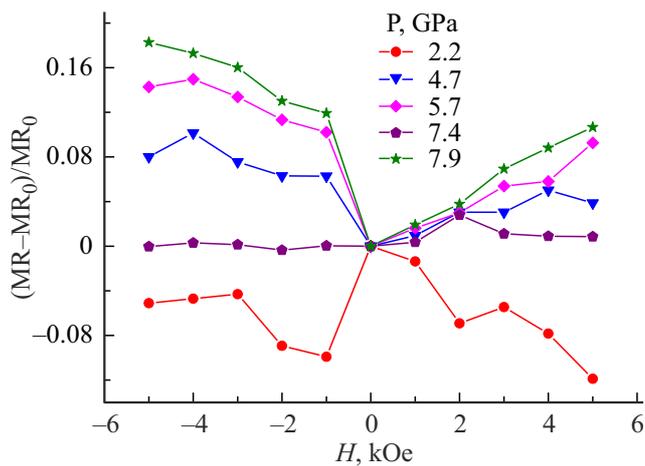


Рис. 4. Барические зависимости МС при различных значениях магнитного поля.

ния дополнительной информации о характере изменений транспортных свойств  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$  с давлением нами также были проведены измерения эффекта Холла и магнетосопротивления в перпендикулярном магнитном поле.

На рис. 3 приведены барические зависимости коэффициента Холла  $R_H(P)$ , измеренные в магнитных полях (1000–5000) Oe при комнатной температуре. Зависимость  $R_H(P)$  удовлетворительно коррелируется с зависимостью  $\rho(P)$ . В  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$  коэффициент Холла до давлений  $P \approx 2.2$  GPa проходит через максимум, а затем падает и при  $P \approx 5.3$  GPa имеет минимум.

На рис. 4 показано, как изменяется магнетотранспорт в  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$  с давлением. С ростом магнитного поля наблюдается значительное увеличение отрицательного магнетосопротивления. В области 1.6–2.8 GPa

наблюдали максимальную ОМС  $\approx 10\%$  при  $\approx 2.2$  GPa. Такое поведение магнетосопротивления, согласующееся с наблюдаемой особенностью поведения электросопротивления в окрестности давлений 1.75–2.7 GPa (рис. 2), является следствием обнаруженного нами структурного фазового перехода.

Заметна корреляция влияния давления и магнитного поля на величину коэффициента ОМС в  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$ . Однако, как видно из рисунка, влияние магнитного поля на электросопротивление значительно менее выражено. Тем не менее и в плоскости ( $H$  vs. MR) наблюдается фазовый переход, но только в окрестности 2000 Oe. Таким образом, имеет место усиление фазового перехода, имеющего место и без магнитного поля при давлении 2 GPa, с ростом магнитного поля до 5000 Oe, причем в поле 2000 Oe (красная кривая) наблюдается аномальное понижение MR. В сравнении с давлением масштаб изменений в магнитном поле на порядок меньше. Это связано с тем, что внутреннее отрицательное давление (химическое давление в магнитном поле), оказываемое магнитоактивными катионами при ориентировании их магнитным полем, также намного меньше. Однако матрица  $Cd_3As_2$  в  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$  парамагнитна и, следовательно, эффект индуцированного магнитным полем химического давления не может оказать какого-либо существенного влияния на зонную структуру дираковского полупроводника  $Cd_3As_2$ , а, тем более, способного вызвать наблюдающиеся фазовые переходы. Гидростатическое же давление существенно сужает межатомные расстояния и, тем самым, как известно, существенно влияет на запрещенную зону, но и изменяет взаимное расположения вершины валентной зоны и дна зоны проводимости в волновом  $k$ -пространстве. Кроме того, эффекты преобразования магнитным полем дираковского полуметалла в Вейлевский, приводящее к генерации ОМС и появлению сверхпроводимости, происходит вблизи температуры абсолютного нуля и в очень сильных магнитных полях, чего не наблюдается в условиях нашего эксперимента с гетерогенным сплавом  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$ .

Таким образом, остается рассмотреть предложенный нами в [13] механизм спиновой поляризации ферромагнитными нанокластерами MnAs тока через матрицу  $Cd_3As_2$  глобулярного сплава  $Cd_3As_2(MnAs)_{0.03}$ . Электрический ток через парамагнитную среду, содержащую ферромагнитные включения становится спин-поляризованным. Ферромагнетик Co спин-поляризует ток в гетерогенном сплаве Cu-Co [14], в гетеропереходе ферромагнетик-сверхпроводник  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3/SrTiO_3/Nb$  [15], в точечном контакте ферромагнетика и сверхпроводника [16]. Эффективность спинтронных приборов зависит от степени спиновой поляризации носителей при их инжекции из ферромагнетика и от длины, на протяжении которой ток сохраняется спин-поляризованным в парамагнитной среде. Наилучшие характеристики магнетоэлектронные устройства будут иметь тогда, когда начальная (вблизи поверхности ферромагнетика) спиновая поляризация

максимальна и когда спиновая поляризация тока, уменьшающаяся с расстоянием, тем не менее остается значительной для достижения технологически значимого намагничивания соседнего ферромагнетика, зависящего от длины свободного пробега и подвижности электронов в парамагнитной среде. Полуметаллические ферромагнетики на основе  $3d$  металлов создают примерно в 2 раза большую и почти 100% поляризацию спинового тока, чем те же элементы в чистом виде [16]. И вполне ожидаемо, что спиновая поляризация в MnAs составляет  $\approx 100\%$ . Кроме того, сама матрица  $\text{Cd}_3\text{As}_2$ , обладая большой длиной свободного пробега носителей тока (см. ниже) и высокой подвижностью [17],  $2 \cdot 10^4 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ , практически не снижает спиновую поляризацию межкластерного тока. Так, технологические свойства  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  являются наилучшими для устройств спинтроники, в том числе терагерцового диапазона [18–20], а  $T_C = 318 \text{ K}$  в MnAs позволяет им функционировать в условиях окружающей среды.

Мы нашли, что в  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$  при характерном диаметре кластера MnAs 5 nm расстояние между ними составляет примерно 50 nm. Эти данные примерно такие же, как и в гетерогенном сплаве Cu-Co [14] с 5-nm кластерами кобальта внутри медной матрицы. В сплаве Cu-Co ОМС при 100 K составляет не более 7%, тогда как в случае ранее исследованного состава  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.447}$  ОМС доходит в магнитном поле 4.5 T до 2%, причем при комнатной температуре, что, по видимому, связано с тем, что матрица  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  благодаря ее непревзойденным, отмеченным выше характеристикам, намного лучше сохраняет наведенную спиновую поляризацию чем Cu.

#### 4. Заключение

Проведены экспериментальные исследования удельного электросопротивления  $\rho(P)$ , коэффициента Холла  $R_H(P)$  и поперечного магнетосопротивления  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$  гетерогенного сплава  $\text{Cd}_3\text{As}_2(\text{MnAs})_{0.03}$ , в которых при высоких гидростатических давлениях до 9 GPa и в области комнатных температур обнаружены скачкообразные изменения, присущие фазовым переходам, что позволяет сделать вывод о том, что в исследованном образце имеет место фазовый переход, индуцированный давлением. Исследованы барические зависимости поперечного магнетосопротивления  $\Delta\rho_{xx}/\rho_0(P)$ , вполне возможно обнаруживающие спиновую поляризацию тока собственных носителей матрицы  $\text{Cd}_3\text{As}_2$ , индуцированную как катионами Mn, так и кластерами MnAs, о наличии которых свидетельствует хотя и небольшой пик на РФА. Влияние магнитного поля на электросопротивление значительно менее выражено по сравнению с давлением. При давлении  $P = 2 \text{ GPa}$  в поле 5000 Oe наблюдается максимальное увеличение ОМС по модулю, выяснение которого требует дальнейших подробных исследований магнитных и структурных свойств в окрестности давлений 1.75–2.7 GPa.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] M. Gibertini, A. Tomadin, F. Guinea, M.I. Katsnelson, M. Polini. *Phys. Rev. B* **85**, 201405(R) (2012).
- [2] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J.H. Smet, K. von Klitzing, A. Yacoby. *Nature. Phys.* **4**, 144 (2008).
- [3] O. Breunig, Z. Wang, A.A. Taskin, J. Lux, A. Rosch, Y. Ando. *Nature Commun.* **8**, 15545 (2017)  
DOI: 10.1038/ncomms15545.
- [4] Y. Zhou, B. Han, Z. Liao, H. Wu, D. Yu. *App. Phys. Lett.* **98**, 222502 (2011).
- [5] Ш.М. Алекперова, И.А. Ахмедов, Г.С. Гаджиева, Х.Д. Джалилова. *ФТТ* **49**, 3, 490 (2007).
- [6] И.Г. Горлова, В.Я. Покровский, С.Ю. Гаврилкин, А.Ю. Цветков. *Письма в ЖЭТФ* **107**, 3, 180 (2018).
- [7] Р.К. Арсланов, Т.Р. Арсланов, И.В. Федорченко, Л. Киланский, Т. Чагтерджи. *ЖЭТФ* **107**, 10, 643 (2018).
- [8] А.И. Риль, А.В. Кочура, С.Ф. Маренкин. *Изв. Юго-Западного гос. ун-та. Сер. Техника и технологии* **7**, 120, (2017).
- [9] L.G. Khvostantsev, V.N. Slesarev, V.V. Brazhkin. *High Pressure Res.* **24**, 371 (2004).
- [10] S. Zhang, Q. Wu, L. Schoop, M.N. Ali, Y. Shi, N. Ni, Q. Gibson, S. Jiang, V. Sidorov, W. Yi, J. Guo, Y. Zhou, D. Wu, P. Gao, D. Gu, C. Zhang, S. Jiang, K. Yang, A. Li, Y. Li, X. Li, J. Liu, X. Dai, Z. Fang, R.J. Cava, L. Sun, Z. Zhao. *Phys. Rev.* **91**, 165133, (2015).
- [11] L. He, Y. Jia, S. Zhang, X. Hong, C. Jin, S. Li. *Quantum Mater.* **1**, 16014 (2016).
- [12] C. Zhang, J. Sun, F. Liu, A. Narayan, N. Li, X. Yuan, Y. Liu, J. Dai, Y. Long, Y. Uwatoko, J. Shen, S. Sanvito, W. Yang, J. Cheng, F. Xiu. *Phys. Rev. B* **96**, 155205, (2017).
- [13] Sh.B. Abdulvagidov, L.A. Saypulaeva, A.I. Ril. *Solid State Commun.* (under consideration).
- [14] A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten, G. Thomas. *Phys. Rev. Lett.* **68**, с. 3745 (1992).
- [15] L. Fratila, I. Maurin, C. Dubourdieu, J.C. Villégier. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 122505-3 (2005).
- [16] R.J. Soulen Jr., J.M. Byers, M.S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S.F. Cheng, P.R. Broussard, C.T. Tanaka, J. Nowak, J.S. Moodera, A. Barry, J.M.D. Coey. *Science* **282**, 85 (1998).
- [17] J. Cao, S. Liang, C. Zhang, Y. Liu, J. Huang, Z. Jin, Z. Chen, Z. Wang, Q. Wang, J. Zhao, Sh. Li, X. Dai, J. Zou, Zh. Xia, L. Li, F. Xiu. *Nature Commun.* **6**, 7779 (2015).
- [18] C. Spezzani, E. Ferrari, E. Allaria, F. Vidal, A. Ciavardini, R. Delaunay, F. Capotondi, E. Pedersoli, M. Coreno, C. Svetina, L. Raimondi, M. Zangrando, R. Ivanov, I. Nikolov, A. Demidovich, M.B. Danailov, H. Popescu, M. Eddrief, G. De Ninno, M. Kiskinova, M. Sacchi. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 247202 (2014).
- [19] J. Hubmann, B. Bauer, H.S. Korner, S. Furthmeier, M. Buchner, G. Bayreuther. *Nano Lett.* **16**, 900 (2016).
- [20] V.M. Novotortsev, S.F. Marenkin, I.V. Fedorchenko, A.V. Kochura. *Russ. J. Inorg. Chem.* **55**, С. 1762 (2010).

Редактор К.В. Емцев