PACS: 73.63.Rt

Д.В. Варюхин, В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, В.И. Вальков, А.В. Головчан, А.В. Подлесный

РЕЗИСТИВНЫЕ АНОМАЛИИ И ТОКОВАЯ СТИМУЛЯЦИЯ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В КОНТАКТАХ Nb-Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина

Экспериментально исследованы вольтамперные характеристики (BAX) сплава $Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5}$. Обнаружено, что в этом материале, как и в манганитах, наряду с магниторезистивными эффектами наблюдаются эффекты переключения из низко- в высокоомное состояние и обратно под действием тока. Эти эффекты наблюдаются на наноконтакте Nb- $Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.55}As_{0.5}$ в температурной области стабильности низкоомной ферромагнитной фазы (T = 77 K), сопровождаются значительным гистерезисом BAX и могут квалифицироваться как обратимые токостимулированные переходы первого рода. Показано, что необходимым условием токостимулированного перехода с гистерезисом BAX является присутствие значительной резистивной аномалии при спонтанных переходах в магнитоупорядоченную фазу.

Введение

Пниктиды 3-d-переходных металлов и, в частности, сплавы системы Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5} с гексагональной кристаллической структурой типа Fe₂P (группа симметрии типа P62m) обладают рядом свойств, которые позволяют в перспективе, с одной стороны, использовать их в качестве рабочих материалов для магнитных рефрижераторов, с другой – рассматривать как модельные объекты для фундаментальных исследований в области физики магнитоупорядоченных структур. Вопросы прикладного применения касаются улучшения ряда характеристик этих материалов, связанных с индуцированием магнитным полем фазовых переходов первого рода со значительным магнитокалорическим эффектом. Устойчивость и механизмы возникновения различных типов магнитоупорядоченных фаз при воздействии сильных магнитных и электрических полей, а также магниторезистивные свойства можно относить к вопросам фундаментального характера. Этой стороне исследований и посвящена настоящая статья, в которой экспериментально изучаются процессы токовой стимуляции магнитных фазовых переходов первого рода в сплавах $Mn_{2-r}Fe_rP_{0.5}As_{0.5}$.

Экспериментальные методики, образцы для исследования

В данной работе основные экспериментальные результаты получены путем исследования ВАХ наноконтактов пниктидов системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ с Nb, а также температурных зависимостей электросопротивления *R* и начальной магнитной восприимчивости χ пниктидов.

Для запитки контактов током в первой методике использовали ниобиевую иглу толщиной 5 µm. Кончик иглы касался поверхности образца с дозированным усилием. Наноконтакты имели омический характер проводимости и диаметр ~ 10 Å, что обеспечивало локализацию приложенного потенциала непосредственно в приконтактной области. Электросопротивление определяли стандартным четырехзондовым методом, а начальную магнитную восприимчивость измеряли с помощью магнитометра, описанного в работе [1], в режиме подключения соленоида к генератору звуковых сигналов.

Согласно фазовой диаграмме, приведенной в работе [1], в зависимости от содержания железа x в системе $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ реализуются четыре группы соединений, отличающихся фазовым поведением и магнитным упорядочением при низких температурах. При x = 0.5-0.6 реализуется антиферромагнитное ($A\Phi$) упорядочение (группа $A\Phi$), которое сменяется парамагнитным (ПМ) состоянием в области температур 150 К. Магнитная структура образцов с x = 0.6 - 0.8 рассматривается авторами работы как сосуществование периодической антиферромагнитной и однородной ферромагнитной (ФМ) компонент полного магнитного момента кристаллохимической ячейки. Причем образцы с x = 0.6 - 0.7 при нагревании переходят в ПМ-фазу через промежуточное А Φ -состояние (группа (А $\Phi + \Phi M$)₁), в то время как образцы с x = 0.7 - 0.8 – непосредственно в ПМ-состояние (группа (АФ + ФМ)₂). И, наконец, образцы с x > 0.8 упорядочены ферромагнитно и переходят в ПМсостояние при температурах ~ 160–260 К (группа Φ M). Учитывая это, в работе были использованы образцы, типичные для различных групп, в поликристаллическом виде.

Результаты исследований

На рис. 1,*а* представлена ВАХ контакта Nb с образцом с x = 0.7 (группа $(A\Phi + \Phi M)_2$), полученная при температуре T = 77 К. К основным особенностям этой ВАХ можно отнести наличие полярного гистерезиса по напряжению и возникновение необратимого в пределах одной полярности перехода в высокоомное состояние. Действительно, согласно рис. 1 линейное нарастание тока, соответствующее выполнению закона Ома ($dV/dI = R_l \sim 66 \Omega$), происходит до тех пор, пока напряжение не достигнет критического значения $Vk_1 \sim 0.7$ V. Начиная с него, величина тока резко уменьшается, и при $Vk_2 \sim 0.8$ V величина dV/dI достигает нового стабильного значения $R_h \sim 890 \Omega$, которое сохраняется постоянным вплоть до $V \sim -Vk_2$. При этом напряжении происходит восстановление низкоомного состояния. Аналогичное явление



Рис. 1. ВАХ контактов Nb–Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5} (*a*) и Nb–Mn_{1.5}Fe_{0.5}P_{0.5}As_{0.5} (*б*) при T = 77 K

наблюдалось ранее в наноконтактах с манганитом $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ [2] и получило название токовой стимуляции фазового перехода в контактах. На рис. 1,6 приведена ВАХ контакта Nb с образцом с x = 0.5 (группа AФ), где гистерезис не наблюдается.

Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости χ , совмещенные с зависимостями сопротивления R(T) образцов системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$, представлены на рис. 2. Из рисунка следует, что маг-



Рис. 2. Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости (*a*) и сопротивления (δ) некоторых массивных образцов системы Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}: *l* – 0.9, *2* – 0.7, *3* – 0.6, *4* – 0.5

нитные фазовые переходы по температуре сопровождаются аномалиями на кривых R(T), будь-то переходы порядок-порядок (АФ + ФМ)₁-АФ (x = 0.6, 0.7) или переходы порядокбеспорядок Φ М–ПМ (x = 0.9). Понижение величины намагниченности насыщения низкотемпературной фазы по мере уменьшения концентрации железа приводит к сглаживанию резистивных особенностей на зависимостях R(T), сопровождающих фазовые переходы. Например, резистивная аномалия в области перехода в фазу сосуществования для образца с x = 0.6 выполаживается, а переход парамагнетизм-антиферромагнетизм для x = 0.5 сопровождается только аномалией магнитной восприимчивости вблизи температуры Нееля (рис. 2) без каких-либо заметных резистивных особенностей. Из сравнения рис. 1 и 2 становится очевидным, что качественное различие ВАХ для образцов с x = 0.7 и x = 0.5 связано с различием их магнитного и резистивного поведения. Токовая стимуляция перехода в низкоомное состояние проявляется в образце, где магнитная восприимчивость высока, а аномалия на зависимости R(T) ярко выражена и отсутствует в противном случае.

Обсуждение результатов

Обнаруженные в данной работе резистивные аномалии в области температур магнитных фазовых превращений в образцах системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ могут быть обусловлены особенностями состояний *d*-электронов, которые не только ответственны за магнетизм в этих соединениях, но и являются носителями электрического тока в них. Такая точка зрения согласуется с результатами *ab initio* расчетов электронной энергетической структуры, проведенных в работе [1]. Для примера на рис. 3 показаны парциальные и полная плотности электронных состояний в MnFeP_{0.5}As_{0.5} для случая, когда подзоны с различной ориентацией спинов заполнены симметрично, что соответствует немагнитному (HM) либо ФМ-состоянию образца (рис. 3,*a*), а также для ФМ-состояния (рис. 3,*б*).



Рис. 3. Типичные для системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ немагнитная (*a*) и спин-поляризованная ферромагнитная (*б*) плотности электронных состояний образца MnFeP_{0.5}As_{0.5} при *a* = 6.1243 Å, *c* = 3.4765 Å. Стрелочки показывают направление спинов в соответствующих подзонах

Из сравнения рис. 3, a и δ следует, что плотность электронов вблизи уровня Ферми E_F , которая определяет проводимость системы, в НМ-состоянии существенно выше, чем в ФМ-состоянии. Поэтому следует ожидать, что при переходе из ПМ- в ФМ-состояние сопротивление будет увеличиваться. Отсутствие сильных резистивных аномалий при возникновении АФ-порядка указывает на сохранение числа носителей тока в АФ- и ПМ-фазах. Это может быть следствием того, что магнитоактивная d-зона заполнена более чем наполовину.

Действительно, как показано в [1], возникновение АФ-состояния в коллективизированной системе электронов сопровождается появлением щели или провала на симметричной по спину плотности электронных состояний. Положение провала по отношению к энергии Ферми определяется степенью заполнения магнитоактивной зоны. В случае более чем половинного заполнения провал на плотности состояний в АФ-фазе находится ниже энергии Ферми. Тогда возникновение АФ-фазы не приводит к существенному изменению заселенности прифермиевских состояний по сравнению с ПМ-фазой. Поэтому температурные резистивные изменения при переходе ПМ–АФ определяются в основном рассеянием носителей тока на флуктуациях спиновой плотности и являются несущественными, что и наблюдается экспериментально.

Если взаимосвязанные изменения различных свойств довольно часто встречаются в сильно коррелированных системах и их конкретные механизмы в различной степени ясны, то индуцированные током переходы в высокоомное состояние открыты недавно и причины их возникновения далеки от понимания. Аналогичные явления переключения из низко- в высокоомное состояние под действием тока, наблюдавшиеся в контактах с манганитами [2], объяснялись моделью мартенсита – неравновесной метастабильной фазой, возникающей в результате бездиффузионного смещения атомов кислорода в октаэдрах MnO₆ в приповерхностном слое образца при инжекции тока большой плотности.

В исследованных пниктидах внутренний кислород отсутствует, и за токостимулированный переход могут отвечать ионы As и P. Запирающий слой также может образовываться благодаря кислороду, который провзаимодействовал с поверхностью образца. Но вполне возможно, что инжекция электронов не только приводит к образованию неравновесного состояния в приконтактной области образца, но и с большой вероятностью изменяет число электронов в магнитоактивной зоне поверхностных слоев. Это согласно *ab initio* расчетам кардинальным образом изменяет стабильность магнитоупорядоченных фаз и по своему эффекту равносильно изменению концентрации железа в системе $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ [1].

Совместное действие указанных механизмов может привести к переходу приповерхностной области в новое магнитно-кристаллическое состояние с плохой проводимостью, в котором в результате окисления поверхности об-

разуется дефицит ионов Fe или Mn. В таком случае прохождение тока через контакт может сопровождаться диффузией анионов, накоплением запирающего потенциала для носителей тока и приводить к переключению электросопротивления контакта. К сожалению, устойчивость таких материалов к коррозии практически не изучена. Тем более трудно сказать что-либо о поведении тончайших поверхностных слоев, поскольку даже резистивные измерения таких объектов проводились редко. А для скачкообразного гистерезиса ВАХ микроконтакта достаточно того, чтобы в высокоомное состояние перешел слой толщиной в несколько десятков ангстрем. Образование такого слоя вполне реально при ускоренной диффузии анионов.

Однако, несмотря на гипотетичность высказанных предположений о причинах аномалии ВАХ контакта Nb–Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5}, предварительные исследования ВАХ на контакте Nb–Mn_{1.5}Fe_{0.5}P_{0.5}As_{0.5} уже позволяют высказать некоторые необходимые условия возникновения токостимулированных переходов в пниктидах системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$. Действительно, отсутствие скачкообразного гистерезиса ВАХ микроконтакта Nb–Mn_{1.5}Fe_{0.5}P_{0.5}As_{0.5} коррелирует с отсутствием заметной резистивной аномалии в Mn_{1.5}Fe_{0.5}P_{0.5}As_{0.5} при переходе ПМ–АФ. Это означает, что механизм возникновения токостимулированных переходов в пниктидах системы Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5} возникновения токостимулированных переходе ПМ–АФ. Это означает, что механизм возникновения токостимулированных переходов в пниктидах системы Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5} реализуется только в том случае, если спонтанные магнитные фазовые переходы сопровождаются значительной магниторезистивной аномалией.

Выводы

В контактах Nb с пниктидами системы $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$ обнаружен токостимулированный фазовый переход из низко- в высокоомное состояние под действием тока. Обнаружена также корреляция между изменением магнитных и электрических свойств пниктидов при фазовых переходах и высказано условие реализации токостимулированного изменения электросопротивления, которое состоит в том, что токостимулированный переход в пниктидах происходит только в случаях, когда спонтанные магнитные переходы сопровождаются значительной аномалией температурной зависимости электросопротивления. Предпринята попытка связать экспериментально обнаруженные явления с результатами *ab initio* расчетов электронной энергетической структуры пниктидов в различных фазовых состояниях.

Работа выполнена в рамках конкурсного проекта ДФФД-БРФФД № 29.1/016.

2. А.И. Дьяченко, Д.И. Бойченко, В.Ю. Таренков, ФТВД 18, № 1, 25 (2008).

^{1.} В.И. Вальков, Д.В. Варюхин, А.В. Головчан, И.Ф. Грибанов, А.П. Сиваченко, В.И. Каменев, Б.И. Тодрис, ФНТ **34**, 927 (2008).

Д.В. Варюхін, В.Ю. Таренков, О.І. Дьяченко, В.І. Вальков, О.В. Головчан, О.В. Підлісний

РЕЗИСТИВНІ АНОМАЛІЇ І СТРУМОВА СТИМУЛЯЦІЯ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ У КОНТАКТАХ Nb–Mn_{2–x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}

Експериментально досліджено вольтамперні характеристики (ВАХ) сплаву $Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5}$. Виявлено, що в цьому матеріалі, як і в манганітах, поряд з магніторезистивними ефектами спостерігаються ефекти перемикання з низько- у високоомний стан і зворотно під дією електричного струму. Ці ефекти спостерігаються у наноконтакті Nb-Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5} при температурі стабільності низькоомної феромагнітної фази (T = 77 K), супроводжуються значним гістерезисом ВАХ і можуть кваліфікуватися як оборотні струмостимульовані переходи першого роду. Показано, що необхідною умовою струмостимульованого переходу з гістерезисом ВАХ є присутність значної резистивної аномалії при спонтанних переходах у магнітовпорядковану фазу.

D.V. Varyukhin, V.Yu. Tarenkov, A.I. Dyachenko, V.I. Val'kov, A.V. Golovchan, A.V. Podlesny

RESISTIVE ANOMALIES AND CURRENT STIMULATION PHASE TRANSITION IN JUNCTIONS Nb-Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5}

The current-voltage characteristics (CVC) of the $Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5}$ alloy have been investigated. It has been determined that in this material, the same as in manganites, there are, alongside with magnetoresistive effects, the effects of low – to high-ohmic state switching and vice versa induced by current. The effects are observed at nanojunction Nb–Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5} in the temperature range of the low-ohmic ferromagnetic phase stability (T = 77 K), they are accompanied by a sizable CVC hysteresis and may be classified as reversible current-stimulated first-order transitions. It is shown that the presence of high resistive anomaly under spontaneous transitions to magnetically ordered phase is a necessary condition for the current-stimulated transition with CVC hysteresis.

Fig. 1. CVC of Nb–Mn_{1.3}Fe_{0.7}P_{0.5}As_{0.5} (*a*) and Nb–Mn_{1.5}Fe_{0.5}P_{0.5}As_{0.5} (δ) junctions for T = 77 K

Fig. 2. Temperature dependences of initial magnetic susceptibility (*a*) and resistance (δ) of some bulk samples of the Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5} system: 1 - 0.9, 2 - 0.7, 3 - 0.6, 4 - 0.5

Fig. 3. Nonmagnetic (*a*) and spin-polarization ferromagnetic (δ) densities of MnFeP_{0.5}As_{0.5} electronic states, typical of the Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5} system, for *a* = 6.1243 Å, *c* = 3.4765 Å. The arrows show directions of spins in corresponding subbands