### PACS: 62.50.i-p, 72.20.-i, 61.82.Fk, 62.23.Pq, 62.50.P

Л.А. Сайпулаева<sup>1</sup>, А.Г. Алибеков<sup>1</sup>, С.Ф. Маренкин<sup>4,5</sup>,

Н.В. Мельникова<sup>2</sup>, В.С. Захвалинский<sup>3</sup>, М.М. Гаджиалиев<sup>1</sup>,

А.Ю. Моллаев<sup>1</sup>, Т.Н. Эфендиева<sup>1</sup>, И.В. Федорченко<sup>4</sup>

# ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА И ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫЕ ЭФФЕКТЫ В Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) ПРИ ВЫСОКИХ ДАВЛЕНИЯХ

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

<sup>2</sup>Уральский федеральный университет,

Институт естественных наук и математики, Екатеринбург, Россия

<sup>4</sup>Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, Россия

<sup>5</sup>Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»

### Статья поступила в редакцию 2 апреля 2018 года

Исследованы электрические и магнетополевые свойства композита Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + + MnAs (20 mass%) при высоком гидростатическом давлении. Изучены барические, температурные зависимости удельного электросопротивления, эффекта Холла и магнетосопротивления в поперечном магнитном поле. На барических зависимостях удельного электросопротивления и коэффициента Холла обнаружены особенности, связанные с фазовыми переходами. Полевые зависимости магнетосопротивления свидетельствуют о проявлении отрицательного магнетосопротивления, индуцированного давлением.

**Ключевые слова:** высокое давление, эффект Холла, удельное электросопротивление, отрицательное магнетосопротивление, электротранспорт, структурный фазовый переход

#### Введение

В настоящее время в ряде теоретических работ, посвященных узкозонному полупроводнику  $Cd_3As_2$ , было показано, что это соединение может рассматриваться так же, как и дираковский полуметалл  $Cd_3As_2$  – трехмерный аналог графена [1,2]. Ферромагнитные сплавы на основе арсенида кадмия представляют собой перспективные наноматериалы для устройств спинтроники [3–5]. Зонная структура  $Cd_3As_2$  изучается достаточно давно, и в ряде работ, наряду с нулевым энергетическим зазором между зонами валентной проводимости, предполагается также их инверсия [6,7]. Представляется ин-

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Белгородский государственный национальный исследовательский университет, Белгород, Россия

<sup>©</sup> Л.А. Сайпулаева, А.Г. Алибеков, С.Ф. Маренкин, Н.В. Мельникова, В.С. Захвалинский, М.М. Гаджиалиев, А.Ю. Моллаев, Т.Н. Эфендиева, И.В. Федорченко, 2018

тересным проведение исследования комплексного воздействия внешним магнитным полем и высоким давлением на электрические и магнитные свойства композиционных сплавов  $Cd_3As_2 + MnAs$ , состоящих из полупроводниковой матрицы  $Cd_3As_2$  и ферромагнитных гранул MnAs [8–10]. Такое воздействие, возможно, позволит получить дополнительную информацию о зонной структуре арсенида кадмия и его твердых растворов с марганцем.

Целью настоящего исследования было изучение особенностей электрических и гальваномагнитных свойств (эффекта Холла и магнетосопротивления) ферромагнитного сплава Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) при гидростатических давлениях до 9 GPa и магнитных полях до 5 T в области комнатных температур.

### Образцы, методика и техника эксперимента

Материал Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs, синтез которого осуществлен в Институте общей и неорганической химии РАН, представляет собой композит, состоящий из наноразмерных ферромагнитных гранул MnAs (20 mass%), хаотически расположенных в объеме полупроводниковой матрицы Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>.

На рис. 1 представлены результаты порошковой рентгеновской дифрактометрии образца  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%). На штрих-диаграмме видно, что исследуемый кристалл является композитом, в котором преобладает  $\alpha'$ -фаза  $Cd_3As_2$ . Многофазный состав образца подтверждается при исследовании его поверхности методами СЭМ и конфокальной микроскопии (рис. 2). Как показывает элементный анализ, большая часть объема образца имеет однородный состав, соответствующий соединению  $Cd_3As_2$ . Дополнительные включения занимают менее 5% от площади образца, и содержание в них мышьяка выше, а кадмия – ниже, чем в основном объеме. На вставке рис. 2 приведен



**Рис. 1.** Рентгенограмма образца Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%). Штриховые диаграммы приведены для различных полиморфных модификаций арсенида кадмия

**Рис. 2.** СЭМ-изображение поверхности образца Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%). На вставке – результаты определения количественного содержания элементов на участках, указанных стрелками

увеличенный фрагмент микроструктуры исследуемого образца. Хорошо видно, что она имеет сложный характер и, в свою очередь, содержит субмикронные включения, по составу близкие к Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>. Элементный анализ в темной области включения показывает, что вторая фаза представляет собой CdAs<sub>2</sub>.

Измерения электро- и магнетосопротивления, а также параметров, характеризующих эффект Холла, проводили в аппаратах высокого давления типа «тороид». Образцы имели форму параллелепипеда с размерами  $3 \times 1 \times 1$  mm. Давление генерировали пресс-установкой усилием 530 tf. Более подробно методика описана в работе [11]. Эффект Холла  $R_x$  исследовали методом постоянного тока и постоянного магнитного поля. Величину поля напряженностью H = 4 kOe генерировали соленоидом. Уменьшение вклада посторонних поперечных эдс в измеряемую эдс Холла  $V_x$  осуществляли путем усреднения результатов измерений общего поперечного напряжения для двух направлений тока  $I_x$  и двух направлений поля  $H_z$ :

$$V_x = \frac{+V_{I^+B^+} - V_{I^-B^+} + V_{I^-B^-} - V_{I^+B^-}}{4}, \quad R_{\rm H} = \frac{V_x d}{IH}.$$

Напряжение на исследуемый образец подавали с прецизионного источника постоянного тока Keithley 6430, холловское напряжение снимали посредством мультиметра Keithley 2000.

Магнетосопротивление определяли по формуле  $(R - R_0)/R_0$  (*R* и  $R_0$  – сопротивление образца соответственно в магнитном поле *H* и в нулевом магнитном поле).

#### Экспериментальные результаты и их обсуждение

Электрическое сопротивление. Электрические свойства таких сложных структур, какими являются изучаемые материалы, в значительной мере определяются размерами наночастиц и плотностью их упаковки. На рис. 3 приведена температурная зависимость удельного сопротивления  $\rho(T)$  исследуемого образца в диапазоне 77–450 К. Для композита характерен металлический тип проводимости, что подтверждает преимущественный вклад MnAs в электропроводность образцов.

Барическая зависимость удельного сопротивления при подъеме и сбросе давления представлена на рис. 4. С увеличением давления до 2.8 GPa удельное электросопротивление очень медленно монотонно повышается, затем наблюдаем его резкий рост, который при P = 4.2 GPa замедляется и продолжает монотонно увеличиваться. При сбросе давления происходит падение удельного электросопротивления до значения давления ~ 3.6 GPa, после чего снижение удельного электросопротивления сменяется его ростом, достигая максимального значения при P = 2.75 GPa. Далее наблюдается монотонное повышение удельного электросопротивления.



**Рис. 3.** Температурная зависимость удельного электросопротивления образца Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%)

**Рис.** 4. Барическая зависимость удельного электросопротивления образца  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) при подъеме (•) и сбросе ( $\circ$ ) давления

**Коэффициента Холла.** На рис. 5 представлена барическая зависимость коэффициента Холла  $R_{\rm H}(P)$ . До давлений  $P \approx 3.65$  GPa кривая проходит через максимум, и ее поведение удовлетворительно коррелирует с барической зависимостью  $\rho(P)$ , для которой также характерно наличие четкого пика при  $P \approx 4.2$  GPa.

**Магнетосопротивление.** Зависимости магнетосопротивления от величины магнитного поля при фиксированных значениях давления из интервала P = 0.8-6.0 GPa для исследуемого образца представлены на рис. 6. Рост давления подавляет положительную составляющую магнетосопротивления. При давлениях  $P \approx 1.0$  и 2.6 GPa наблюдается область отрицательного магнетосопротивления. При дальнейшем увеличении давления магнетосопротивление немонотонно растет до  $P \approx 4.3$  GPa – области фазового перехода, которая на шкале высоких



**Рис. 5.** Зависимость коэффициента Холла от давления для образца Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + + MnAs (20 mass%)

давлений удовлетворительно согласуется со значениями давлений, соответствующих фазовому переходу на кривых  $(\rho/\rho_0)(P)$  и  $R_h/R_{h0}(P)$ .

На барических зависимостях магнетосопротивления (рис. 7) при  $P \approx 4$  GPa обнаружен фазовый переход, значение которого также на шкале высоких давлений удовлетворительно согласуется со значениями фазового перехода на кривых  $\rho(P)/\rho_0(P)$  и  $R_h(P)/R_{h0}(P)$  (см. рис. 1, 2).



**Рис. 6.** Магнетополевые зависимости магнетосопротивления образца Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) при фиксированных давлениях *P*, GPa:  $\nabla$  − 1.0,  $\blacklozenge$  − 2.6,  $\blacksquare$  − 3.3,  $\triangle$  − 4.0,  $\circ$  − 4.3,  $\bullet$  − 5.1

**Рис.** 7. Барические зависимости магнетосопротивления для образца  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) при фиксированных значениях магнитного поля *H*, kOe:  $\blacklozenge -1.6$ ,  $\blacksquare -2.4$ ,  $\blacktriangle -3.2$ ,  $\blacklozenge -4$ 

В работе [12] объясняется механизм возникновения отрицательного магнетосопротивления для ферромагнитных наноструктур. В отсутствие магнитного поля угол между магнитными моментами ферромагнитных кластеров случаен, а при приложении магнитного поля их магнитные моменты выстраиваются вдоль поля, что приводит к заметному изменению (уменьшению) сопротивления. Величина магнетосопротивления пропорциональна величине магнитного поля, косинусу углов между магнитными моментами и количеству ферромагнитных кластеров. В нашем случае уменьшение магнетосопротивления также может быть вызвано уменьшением расстояния между магнитными моментами гранул MnAs под давлением. Приложение давления усиливает влияние магнитного поля, что приводит к возникновению отрицательного магнетосопротивления, индуцированного давлением.

#### Заключение

На барических зависимостях удельного электросопротивления, коэффициента Холла и магнетосопротивления обнаружены фазовые переходы, положение которых удовлетворительно согласуется с данными, полученными из зависимостей ( $\rho/\rho_0$ )(P) и  $R_H/R_0(P)$ . Барическая зависимость удельного электросопротивления указывает на такие механизмы переноса заряда, как туннелирование электронов между ферромагнитными гранулами через полупроводниковый барьер и прыжковая проводимость по локализованным состояниям с переменной длиной прыжка. Для детализации этих точных механизмов будут проведены дальнейшие комплексные исследования композиционных сплавов Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs с различным соотношением компонентов.

Особенности магнетополевых зависимостей сопротивления от давления объясняются наличием двух конкурирующих между собой механизмов формирования магнетосопротивления: положительного (силой Лоренца) и отрицательного (за счет спинового рассеяния). При этом отмечается роль приложенного давления. В отсутствие давления величины внешнего поля  $H \le 5$  kOe недостаточно для полной ориентации собственных магнитных моментов кластеров MnAs в матрице Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>. С увеличением давления ориентация этих моментов усиливается вплоть до насыщения, что приводит к смене знака магнетосопротивления и появлению отрицательного магнетосопротивления.

Исследования выполнены при поддержке гранта РФФИ № 16-02-00857.

- 1. Z. Wang, H. Weng, Q. Wu, X. Dai, Z. Fang, Phys. Rev. B88, 125427 (2013).
- S. Borisenko, Q. Gibson, D. Evtushinsky, V. Zabolotnyy, B. Büchner, R.J. Cava, Phys. Rev. Lett. 113, 027603 (2014).
- 3. E.K. Arushanov, Prog. Cryst. Growth Charact. 25, 131 (1992).
- Hong Lu, Xiao Zhang, Shuang Jia, arXiv:1507.07169v1 [cond-mat.mtrl-sci] 26 Jul. 2015, p. 1–14.
- 5. J. Cisowski, Phys. Status Solidi B200, 311 (1997).
- 6. M.J. Aubin, L.G. Caron, J.-P. Jay-Gerin, Phys. Rev. B15, 3872 (1977).
- 7. *R.J. Wagner, E.D. Palik, E.M. Swiggard*, in: Physics of Semimetals and Narrow-Gap Semiconductors, D.L. Carter, R.T. Bate (eds.), Pergamon, NewYork (1971).
- 8. А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев, Л.А. Сайпуллаева, С.Ф. Маренкин, И.В. Федорченко, А.И. Риль, Журн. неорг. химии **62**, 87 (2017).
- 9. А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев, Л.А. Сайпуллаева, С.Ф. Маренкин, И.В. Федорченко, Неорган. материалы **52**, 402 (2016).
- 10. Н.В. Мельникова, А.В. Тебеньков, Г.В. Суханова, А.Н. Бабушкин, Л.А. Сайпулаева, В.С. Захвалинский, С.Ф. Габибов, А.Г. Алибеков, А.Ю. Моллаев, ФТТ **60**, 490 (2018).
- 11. А.Ю. Моллаев, Л.А. Сайпулаева, Р.К. Арсланов, С.Ф. Маренкин, Неорган. материалы **37**, 405 (2001).
- 12. С.Ф. Маренкин, А.Д. Изотов, И.В. Федорченко, В.М. Новоторцев, Журн. неорг. химии **60**, 343 (2015).

L.A. Saipulaeva, A.G. Alibekov, S.F. Marenkin, N.V. Melnikova, V.S. Zakhvalinsky, M.M. Gadjialiev, A.Yu. Mollaev, T.N. Efendieva, I.V. Fedorchenko

## ELECTRICAL PROPERTIES AND GALVANOMAGNETIC EFFECTS IN Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) UNDER HIGH PRESSURES

Electrical and magnetic-field properties of the  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) composite are tested under high hydrostatic pressure. The pressure and temperature dependences of the resistivity, the Hall effect, and the magnetoresistance in transversal magnetic field are studied. Some features associated with phase transitions are found on baric dependences of the resistivity and the Hall coefficient. Field dependences indicate appearance of the pressure-induced negative magnetoresistance.

**Keywords:** high pressure, Hall effect, resistivity, negative magnetic resistance, electric transport, structural phase transition

**Fig. 1.** X-ray patterns of the  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) sample. Dashed diagrams stand for different polymorphous modifications of cadmium arsenide

**Fig. 2.** SEM-images of the surface of the  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) sample. The inset: the content of elements in the segments marked by arrows

Fig. 3. Temperature dependence of resistivity of the Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) sample

**Fig. 4.** Baric dependence of the resistivity of the  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) sample under compression(•) and decompression ( $\circ$ )

Fig. 5. Pressure dependence of the Hall coefficient for the  $Cd_3As_2 + MnAs$  (20 mass%) sample

**Fig. 6.** The magnetic-field dependences of the magnetoresistance of the Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) sample under fixed pressures *P*, GPa:  $\nabla - 1.0$ ,  $\blacklozenge - 2.6$ ,  $\blacksquare - 3.3$ ,  $\triangle - 4.0$ ,  $\circ - 4.3$ ,  $\bullet - 5.1$ 

**Fig. 7.** Pressure dependence of the magnetoresistance of the Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> + MnAs (20 mass%) sample under fixed magnetic field *H*, kOe:  $\blacklozenge -1.6$ ,  $\blacksquare -2.4$ ,  $\blacktriangle -3.2$ ,  $\blacklozenge -4$