

PACS: 72.80.Tm, 72.25.-Dc, 62.23.Pq

Л.А. Сайпулаева¹, Н.В. Мельникова², А.Н. Бабушкин²,
А.В. Тебеньков², Д. Аликин², М.М. Гаджиалиев¹

РЕЛАКСАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ В ГРАНУЛИРОВАННЫХ СТРУКТУРАХ $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$ И $Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5}$ ПРИ ВЫСОКИХ ДАВЛЕНИЯХ

¹Институт физики ДФИЦ РАН, Махачкала, Республика Дагестан, Россия

²Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия

Статья поступила в редакцию 18 марта 2020 года

Представлены результаты экспериментальных исследований электро- и магнитосопротивления композитов $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$ и $Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5}$ при давлениях до 50 GPa и в магнитных полях до 1 Т. Исследованы релаксационные эффекты, обусловленные пластической деформацией материалов. В интервале давлений 28–34 GPa обнаружено значительное увеличение времени релаксации электросопротивления, на барических зависимостях относительного значения электросопротивления проявляются экстремумы, связанные с возможным электронным фазовым переходом.

Ключевые слова: нанокластеры, электросопротивление, магнитосопротивление, релаксационные эффекты, высокие давления

Введение

В последнее время большое внимание уделяется изучению свойств дираковских полуметаллов [1–4], которые интересны в первую очередь ввиду особенностей их электронной структуры вблизи уровня Ферми. Дираковский полуметалл характеризуется присутствием в электронном спектре объемного кристалла конуса Дирака, образованного двукратно вырожденными зонами. В силу своих экзотических свойств эти материалы являются многообещающими в плане их использования при создании электронных приборов нового поколения. Поэтому поиск соединений с такими свойствами – актуальная задача для создания элементной базы новой электроники. Пример перспективных материалов в этой сфере – композиты на основе дираковского полуметалла Cd_3As_2 с содержанием магнитных наногранул $MnAs$ [5,6].

Настоящая работа посвящена изучению особенностей поведения электрических характеристик композитов $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$ и $Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5}$ в условиях воздействия высоких давлений (до 50 GPa) и магнитных полей (до 1 Т).

Образцы и методика эксперимента

Синтез и результаты аттестации материалов $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$ и $Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5}$ подробно описаны в [6,7]. Образцы представляют собой композит, состоя-

ший из наноразмерных ферромагнитных гранул MnAs, хаотически расположенных в объеме полупроводниковой матрицы Cd₃As₂. Для образца Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} гранулы при электронно-микроскопических исследованиях не удастся визуализировать, возможно, вследствие характерных малых размеров (рис. 1,а). Проанализировав размеры нанокластеров MnAs в композите Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀, наблюдали «двугорбое» (бимодальное) распределение частиц – характерные их диаметры составляют 20–30 nm и 50–90 nm (рис. 1,б). Наиболее вероятно, что частицы с размерами более 50 nm могут находиться не в объеме материала, а в приповерхностных областях, поскольку обратное привело бы к существенному повышению энергий деформации как самой матрицы, так и нанообразований. Исходя из этого, можно ожидать, что объемные физические свойства композита Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ могут определяться свойствами нанокластеров MnAs с размерами 20–30 nm.

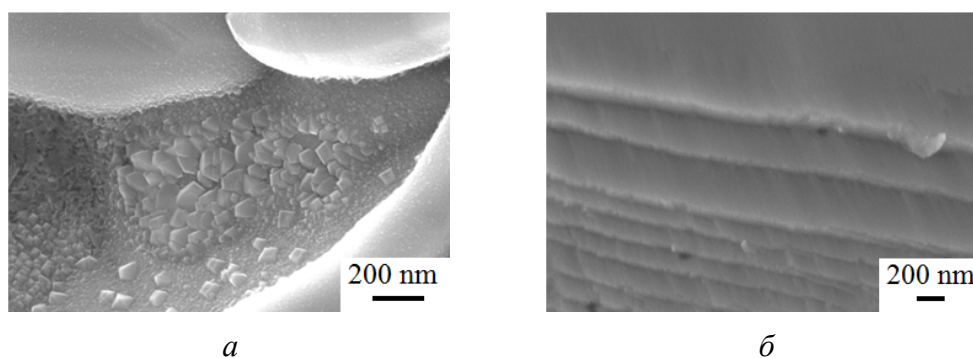


Рис. 1. СЭМ-изображения сколов образцов Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ (а) и Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} (б)

Влияние высокого давления на электрофизические свойства композитов исследовали в камере высокого давления (КВД) с алмазными наковальнями типа «закругленный конус–плоскость». Принцип создания давлений до 50 GPa, технические характеристики и градуировка КВД детально описаны в [8–10]. Используемое оборудование позволяет измерять электрические характеристики материала непосредственно в процессе деформаций при приложении высоких давлений. В связи с особенностями КВД минимальное давление, при котором возможно измерение электрофизических характеристик сжимаемых образцов, не может быть меньше 15 GPa. Кроме того, известно, что при смене (возрастании или снижении) давления требуется некоторое время для установления не меняющегося во времени значения электросопротивления. Толщина образцов при сжатии составляла ~ 15 μm, диаметр образца в КВД ~ 200 μm.

Для оценки роли релаксационных эффектов, обусловленных пластической деформацией материалов, при некоторых фиксированных значениях приложенной нагрузки (при увеличении и последующем уменьшении давления) измеряли зависимости электросопротивления R от времени воздействия нагрузки t , анализируя поведение этих зависимостей. При каждом значении давления из исследуемого диапазона (при приложении новой нагрузки)

проводили также оценку величины относительного изменения электросопротивления $\Delta R/R$ следующим образом:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(t_{\text{rel}}) - R(t_0)}{R(t_0)}, \quad (1)$$

где $t_0 = 0$ – момент времени непосредственного приложения новой нагрузки на образец; t_{rel} – время, в течение которого устанавливается постоянное значение электросопротивления после приложения новой фиксированной нагрузки.

При измерении магнитосопротивления КВД помещали в панцирный магнит для создания поперечного магнитного поля ($0 \leq B \leq 1$ Т), изменение и контроль величин давления и магнитного поля осуществляли непосредственно в ходе эксперимента. При каждом фиксированном значении давления относительное магнитосопротивление MR (в %) оценивали по формуле

$$\text{MR} = 100 \cdot \frac{R(B) - R(0)}{R(0)}, \quad (2)$$

где $R(0)$, $R(B)$ – электросопротивление соответственно в отсутствии магнитного поля и в поперечном магнитном поле с индукцией B .

Результаты и обсуждение

На рис. 2 показаны барические зависимости электросопротивления исследуемых образцов при возрастании и снижении давления. Видно, что в первом цикле сжатия в диапазоне давлений 16–25 ГПа сопротивление резко уменьшается примерно в три раза, а затем испытывает плавное уменьшение до значений ~ 50 ГПа. При последующих циклах возрастания и снижения давления в случае композита $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ сопротивление монотонно изменяется без заметного барического гистерезиса. Резкое изменение сопро-

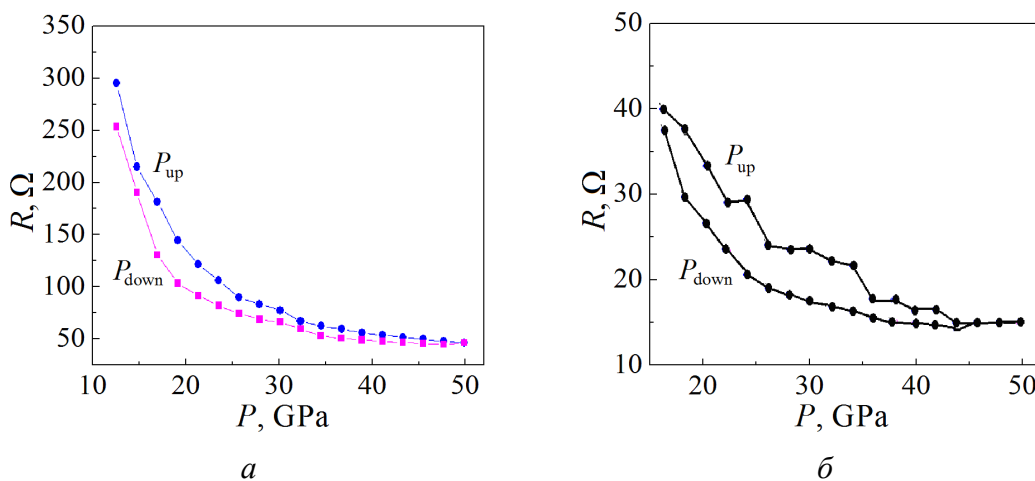


Рис. 2. Зависимости электрического сопротивления от давления для образцов $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ (а) и $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ (б)

тивления в первом цикле нагружения связано, вероятно, с деформацией исходного материала, помещенного в КВД.

Установлено, что зависимости электросопротивления от времени $R(t)$ при каждой новой приложенной нагрузке хорошо аппроксимируются двойной или одиночной (при $t_1 = t_2$) экспонентой:

$$R(t) = A_1 e^{-t/t_1} + A_2 e^{-t/t_2} \quad (3)$$

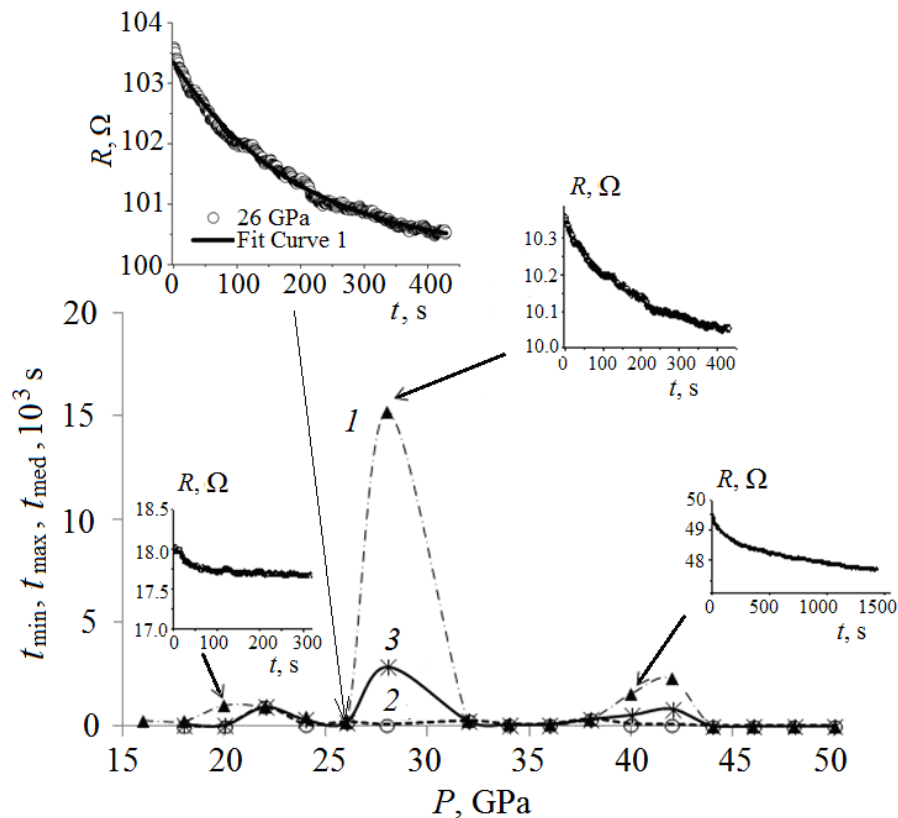


Рис. 3. Барические зависимости времени релаксации электросопротивления t_{\max} (1), t_{\min} (2) и t_{med} (3) для композита $\text{Cd}_{50,3}\text{Mn}_{8,2}\text{As}_{41,5}$. Величины $t_{\max} = \max\{t_1, t_2\}$, $t_{\min} = \min\{t_1, t_2\}$ оценены (для каждого увеличивающегося фиксированного значения давления) из аппроксимации зависимостей электросопротивления от времени (времени выдержки под новым приложенным давлением) по формуле $R(t) = A_1 e^{-t/t_1} + A_2 e^{-t/t_2}$

Меньшее время $t_{\min} = \min\{t_1, t_2\}$ соответствует релаксационным процессам, связанным с изменением концентрации носителей и ширины запрещенной зоны вследствие изменения расстояний между атомами и изменением энергии носителей. Бóльшее время $t_{\max} = \max\{t_1, t_2\}$ характеризует процессы, обусловленные релаксацией кристаллической решетки. Кроме того, если наиболее адекватной является аппроксимация (3), проведена также аппроксимация одиночной экспонентой

$$R(t) = Ae^{-t/t_{\text{med}}}, \quad (4)$$

где время t_{med} – так называемое «среднее» время (в общем случае совпадающее с t_1 и t_2 в (3), если $t_1 = t_2$, и отличное от t_1 и t_2 , если они не равны). Проведенная оценка среднего времени t_{med} по формуле (4) дает возможность определить преимущественные процессы в материале: если оно близко к t_{min} , преобладают процессы, связанные с изменением параметров носителей; если t_{med} близко к t_{max} , преобладают процессы, связанные с релаксацией кристаллической решетки (в условиях воздействия приложенной нагрузки).

Барические зависимости времени релаксации электросопротивления t_{min} и t_{max} , а также относительного изменения электросопротивления для исследуемых материалов при увеличении давления представлены на рис. 3, 4. Время t_{rel} из формулы (1), в течение которого устанавливается постоянное значение электросопротивления после приложения новой фиксированной нагрузки, больше или близко к времени t_{med} , оцениваемому из аппроксимации $R(t)$ одиночной экспонентой (4).

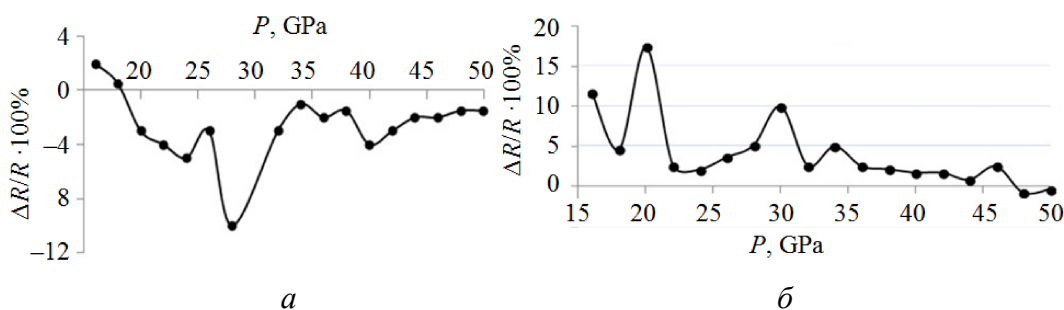


Рис. 4. Барические зависимости относительного значения электросопротивления для композитов $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ (а) и $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ (б)

Проведенный анализ зависимости величин времени релаксации электросопротивления от давления позволил установить, что в обобщенных интервалах 18–24 GPa и 26–34 GPa для обоих материалов и в области 38–44 GPa для $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ наблюдается существенное увеличение динамических свойств (рис. 3–5). При этом наиболее значимо изменяется величина относительного электросопротивления при выдержке под давлением, если значение давления попадает в указанные барические интервалы (рис. 4). Это свидетельствует о возможности реализации в данных областях давлений структурного или электронного фазового перехода.

Анализ зависимости «среднего» времени t_{med} от давления позволяет объяснить особенности поведения изученных параметров (по крайней мере в области 26–34 GPa) наличием в электронной подсистеме превращений, связанных с изменением кристаллических характеристик Cd_3As_2 под давлением. Особенности поведения именно t_{max} , характеризующие процессы, обусловленные релаксацией кристаллической решетки, наблюдали в близких

интервалах давлений (вблизи 30 GPa) для материала как с 30 mol%, так и с 44.7 mol% MnAs (учитывая разное количество магнитных наногранул MnAs и различие в их размерах в исследуемых материалах) (рис. 3, 4). Это еще раз указывает на то, что можно говорить о преобразованиях электронной подсистемы именно матрицы композита, когда при увеличении давления изменяются параметры кристаллической решетки и уменьшается объем элементарной ячейки.

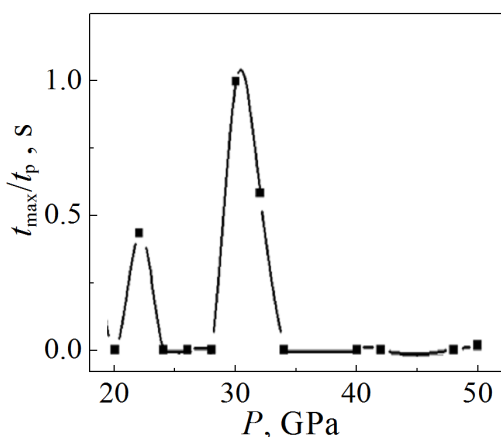


Рис. 5. Барические зависимости относительной величины времени релаксации электросопротивления t_{\max}/t_p (здесь t_p – максимальное значение времени релаксации, наблюдаемое при давлении 31 GPa) для композита $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$

Полученные результаты согласуются с результатами исследования поведения термоэдс композита с 44.7 mol% MnAs при давлениях до 50 GPa [11]. В работе [11] обсуждается наличие барического фазового перехода в композите в окрестности 33 GPa, связанного, вероятнее всего, с особенностями поведения характеристик электронной подсистемы матрицы композита Cd_3As_2 [12]. При этом учтено, что кристаллическая моноклинная структура Cd_3As_2 устойчива вплоть до 50 GPa [12]. Учитывая наличие экстремумов на рассматриваемых барических зависимостях времен релаксации для обоих исследуемых материалов в интервале 18–24 GPa, а также наиболее яркое проявление их в композите с содержанием 44.7 mol% MnAs, где магнитные нанобласти имеют большие размеры, можно говорить о влиянии магнитных наногранул на электрические свойства материалов в окрестности ~ 22 GPa.

Заключение

Исследованы релаксационные эффекты в $Cd_{48.6}Mn_{11.4}As_{40}$ и $Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5}$ в интервале давлений 10–50 GPa. В интервале давлений 28–34 GPa наблюдается значительное увеличение времени релаксации электросопротивления. На барических зависимостях относительного значения электросопротивления в областях давлений, согласованных с областями проявления особенностей других электрических характеристик, проявляются экстремумы, связанные с возможными превращениями в электронной подсистеме в окрестности 30 GPa. Основные результаты согласуются с выводами проведенных ранее исследований поведения термоэдс материалов при давлениях до 50 GPa [11].

Выражаем благодарность Уральскому центру коллективного пользования «Современные нанотехнологии» Уральского федерального университета за ряд проведенных измерений.

1. Z.K. Liu, B. Zhou, Y. Zhang, Z.J. Wang, H.M. Weng, D. Prabhakaran, S.-K. Mo, Z.X. Shen, Z. Fang, X. Dai, Z. Hussain, Y.L. Chen, *Science* **343**, 864 (2014).
2. S.M. Young, S. Zaheer, J.C.Y. Teo, C.L. Kane, E.J. Mele, A.M. Rappe, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 140405 (2012).
3. S.-Y. Xu, C. Liu, S.K. Kushwaha, R. Sankar, J.W. Krizan, I. Belopolski, M. Neupane, G. Bian, N. Alidoust, T.R. Chang, H.-T. Jeng, C.-Y. Huang, W.-F. Tsai, H. Lin, P.P. Shihbayev, F.-C. Chou, R.J. Cava, M.Z. Hasan, *Science* **347**, 294 (2015).
4. I.Yu. Sklyadneva, I.P. Rusinov, R. Heid, K.-P. Bohnen, P.M. Echenique, E.V. Chulkov, *Sci. Rep.* **6**, 24137 (2016).
5. I. Crassee, R. Sankar, W.-L. Lee, A. Akrap, M. Orlita, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 120302 (2018).
6. А.И. Риль, А.В. Кочура, С.Ф. Маренкин, А.Е. Кузько, Б.А. Аронзон, *Известия Юго-Западного государственного университета. Серия: Техника и технологии* **7**, № 2, 120 (2017).
7. С.Ф. Маренкин, В.М. Трухан, И.В. Федорченко, С.В. Труханов, Т.В. Шелковая, *ЖНХ* **59**, 511 (2014).
8. L.F. Vereshchagin, E.N. Yakovlev, B.V. Vinogradov, G.N. Stepanov, K.Kh. Bibaev, T.I. Alaeva, V.P. Sakun, *High Temp.–High Press.* **6**, 499 (1974).
9. A.N. Babushkin, G.I. Pilipenko, F.F. Gavrilov, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 8659 (1993).
10. A.N. Babushkin, *High Press. Res.* **6**, 349 (1992).
11. N.V. Melnikova, A.V. Tebenkov, G.V. Sukhanova, A.N. Babushkin, L.A. Saipulaeva, V.S. Zakhvalinskii, S.F. Gabibov, A.G. Alibekov, A.Yu. Mollaev, *Phys. Solid State* **60**, 494 (2018).
12. Lanpo He, Yating Jia, Sijia Zhang, Xiaochen Hong, Changqing Jin, Shiyang Li, *Quantum Materials* **1**, 16014 (2016).

L.A. Saipulaeva, N.V. Melnikova, A.N. Babushkin,
A.V. Teben'kov, D. Alikin, M.M. Gadjialiev

RELAXATION EFFECTS IN GRANULAR STRUCTURES OF Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ AND Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} UNDER HIGH PRESSURES

The results of experimental studies of electrical and magnetic resistance of the Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ and Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} composites under pressures up to 50 GPa and in magnetic fields up to 1 T are presented. The relaxation effects due to plastic deformation of materials are studied. In the pressure range of 28–34 GPa, a significant increase in the relaxation time of the electrical resistance is observed; extremes emerged on the baric dependences of the relative value of the electrical resistance are associated with a possible electronic phase transition

Keywords: nanoclusters, electrical resistance, magnetoresistance, relaxation effects, high pressures

Fig. 1. SEM images of the chips of Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ (a) and Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} (b)

Fig. 2. Pressure dependences of electrical resistance in $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ (a) and $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ (b)

Fig. 3. Baric dependences of the relaxation time of electrical resistance t_{\max} (1), t_{\min} (2) and t_{med} (3) in the $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ composite. The values of $t_{\max} = \max\{t_1, t_2\}$, $t_{\min} = \min\{t_1, t_2\}$ are estimated (for every increased fixed pressure) on the basis of approximated time dependences of electrical resistance (dwell time under new applied pressure) by formula $R(t) = A_1 e^{-t/t_1} + A_2 e^{-t/t_2}$

Fig. 4. Baric dependences of the relative value of electrical resistance in composites $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ (a) and $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ (b)

Fig. 5. Baric dependences of the relative value of relaxation time of electrical resistance t_{\max}/t_p (here t_p is the maximum relaxation time registered at the pressure of 31 GPa) in the $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ composite