

ФИЗИКА

УДК 537; 538.9; 53.097

DOI: 10.21779/2542-0321-2020-35-3-75-80

Л.А. Сайпулаева¹, Н.В. Мельникова², А.Н. Бабушкин², А.В. Тебеньков², Д.О. Аликин², М.М. Гаджиалиев¹, К.Ш. Хизриев¹

Релаксационные эффекты в $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ и $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ при высоких давлениях

¹ Институт физики ДФИЦ РАН; Россия, Республика Дагестан, 367015, г. Махачкала, ул. М. Ярагского, 94; luizasa11@mail.ru;

² Уральский федеральный университет, Институт естественных наук и математики; Россия, 620026, г. Екатеринбург, пр. Ленина, 51

Представлены результаты экспериментальных исследований электросопротивления (R) двух композитов, состоящих из наноразмерных ферромагнитных гранул MnAs, расположенных в полупроводниковой матрице Cd_3As_2 , составов $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ и $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ при высоких давлениях с вариацией времени воздействия. Влияние высокого давления (до 50 ГПа) на электрофизические свойства исследовалось в камере высокого давления с алмазными наковальнями типа «закругленный конус-плоскость». На основе анализа зависимости времен релаксации электросопротивления от давления установлено их существенное возрастание в интервалах 18–24 ГПа и 26–34 ГПа для обоих составов и в области 38–44 ГПа – для образца $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$. Это свидетельствует о возможности реализации в данных областях давлений структурного или электронного фазового перехода.

Ключевые слова: давление, электросопротивление, нанокомпозит, релаксационные эффекты.

Введение

В последнее время большое внимание уделяется изучению свойств дираковских полуметаллов [1–4], которые интересны в первую очередь из-за особенностей их электронной структуры вблизи уровня Ферми. В электронном спектре таких объемных кристаллов присутствует конус Дирака, образованный двукратно вырожденными зонами. В силу своих экзотических свойств эти материалы имеют практическую значимость в плане создания электронных приборов нового поколения. Поэтому поиск новых соединений такого класса представляет актуальную задачу при формировании элементной базы новой электроники. Наиболее перспективными материалами для этой цели являются композиты на основе дираковского полуметалла Cd_3As_2 и магнитных наногранул MnAs [5, 6].

Статья посвящена изучению особенностей поведения электрических характеристик композитов $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ и $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ под воздействием высоких давлений до 50 ГПа и магнитных полей до 1 Т.

Образцы и методика эксперимента

Образцы представляют собой композит, состоящий из наноразмерных ферромагнитных гранул MnAs, хаотически расположенных в объеме полупроводниковой матрицы Cd_3As_2 . Метод синтеза и результаты аттестации материалов $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ и $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ подробно описаны в [6, 7]. Электронно-микроскопическими исследованиями гранулы

образца Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} визуализировать не удалось, возможно, из-за характерного рельефа (рис. 1 a) и малых размеров частиц. Характерные диаметры нанокластеров MnAs в композите Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ (наблюдается «двугорбое», бимодальное распределение частиц по размерам) составляют 20–30 нм и 50–90 нм (рис. 1 b).

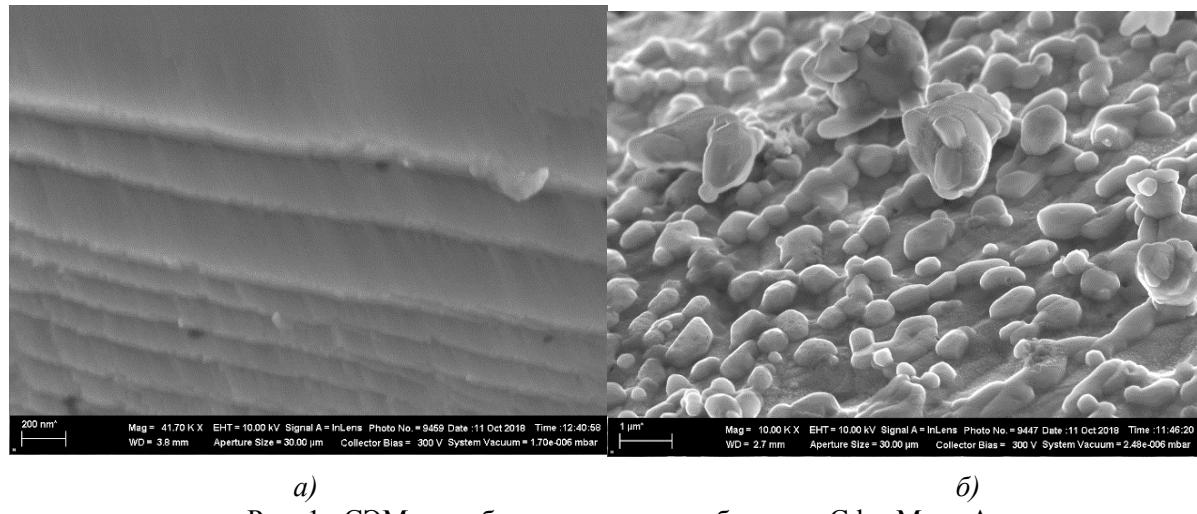


Рис. 1. СЭМ – изображения сколов образцов: Cd_{48.6}Mn_{11.4}As₄₀ (a) и Cd_{50.3}Mn_{8.2}As_{41.5} (b)

Наиболее вероятно, что частицы с размерами более 50 нанометров, могут находиться не в объеме материала, а в приповерхностных областях, иначе это 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 определяются в основном свойствами нанокластеров MnAs с размерами 20–30 нм.

Влияние давления на электрофизические свойства композитов исследовалось в камере высокого давления (КВД) с алмазными наковальнями типа «закругленный конус-плоскость». Принцип создания давлений до 50 ГПа, технические характеристики и градуировка КВД детально описаны в [8–10]. Используемое оборудование позволяет измерять электрические характеристики материала непосредственно в процессе деформаций. В связи с особенностями КВД минимальное давление, при котором возможно измерение электрофизических характеристик образцов, подвергаемых деформации, не может быть меньше 15 ГПа.

Кроме того, при изменении давления требуется некоторое время для установления не изменяющегося во времени значения электросопротивления. Толщина образцов при сжатии составляла ~15 мкм, диаметр образца в КВД – около ~200 мкм.

Для оценки роли релаксационных эффектов, обусловленных пластической деформацией, при некоторой фиксированной нагрузке анализировалось поведение зависимости R от времени воздействия нагрузки (t). Для каждого значения давления из исследуемого диапазона (при приложении новой нагрузки) проводилась оценка величины относительного изменения электросопротивления $\frac{\Delta R}{R}$:

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

где t_0 – момент времени начала приложения новой нагрузки к образцу; t_{rel} – время, в течение которого устанавливается постоянное значение электросопротивления.

Результаты и обсуждение

На рис. 2 показаны барические зависимости электросопротивления исследуемых образцов при возрастании и снижении давления. Видно, что в первом цикле сжатия сопротивление в диапазоне давлений 16–25 ГПа резко уменьшается примерно в 3 раза, а затем плавно уменьшается до давлений ~ 50 ГПа. При последующих циклах возрастания и снижения давления сопротивление монотонно изменяется без заметного барического гистерезиса для композита $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$.

Резкое изменение сопротивления в первом цикле нагружения связано, вероятно, с деформацией исходного материала, помещенного в КВД.

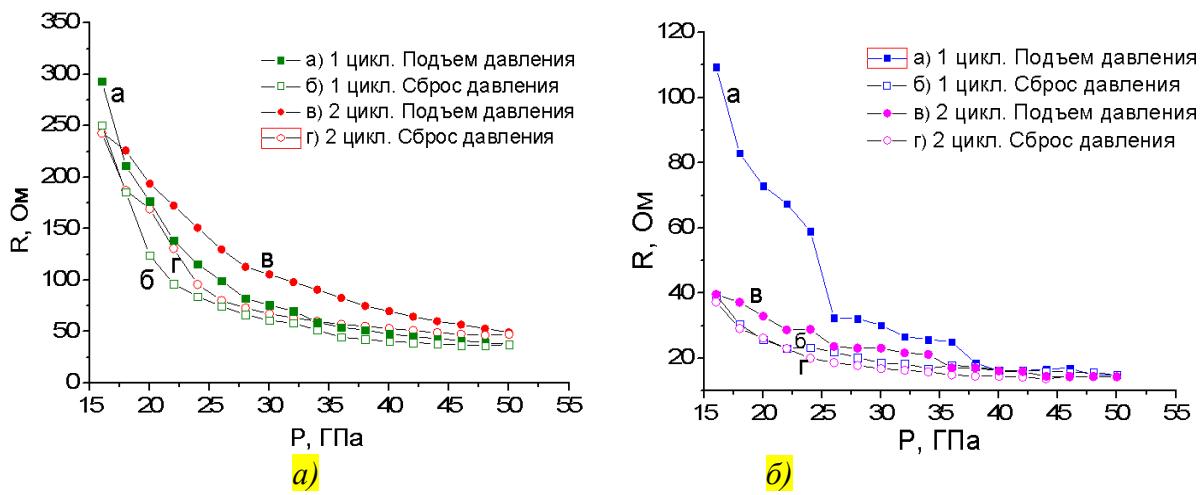


Рис. 2. Зависимости электрического сопротивления от давления:
а) $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$; б) $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$

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

$$R(t) = A_1 e^{-t/t_1} + A_2 e^{-t/t_2}. \quad (2)$$

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 энергии носителей. Большее время $t_{\max} = \max\{t_1, t_2\}$ характеризует процессы, обусловленные релаксацией кристаллической решетки. Кроме того, в том случае, если наиболее адекватной является аппроксимация (2), проведена также аппроксимация одиночной экспонентой

$$R(t) = A e^{-t/t_{\text{med}}}, \quad (3)$$

где время t_{med} – так называемое «среднее» время (в общем случае совпадающее с t_1 и t_2 в (2), 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. 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 (3).

Проведенный анализ зависимости величин времени релаксации электросопротивления от давления позволил установить, что в обобщенных интервалах 18–24 ГПа и 26–34 ГПа для обоих материалов и в области 38–44 ГПа для материала $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ наблюдается существенное их увеличение (рис. 3 *а* и *в*). При этом наиболее значимо меняется величина относительного электросопротивления при выдержке под давлением, если значение давления попадает в указанные барические интервалы (рис. 3 *б* и *г*). Это свидетельствует о возможности реализации в данных областях давлений структурного или электронного фазового перехода. Анализ поведения зависимости «среднего» времени t_{med} от давления позволяет объяснить такие особенности поведения изученных параметров, по крайней мере в области 26–34 ГПа, наличием превращений в электронной подсистеме, связанных с изменением кристаллических характеристик Cd_3As_2 под давлением.

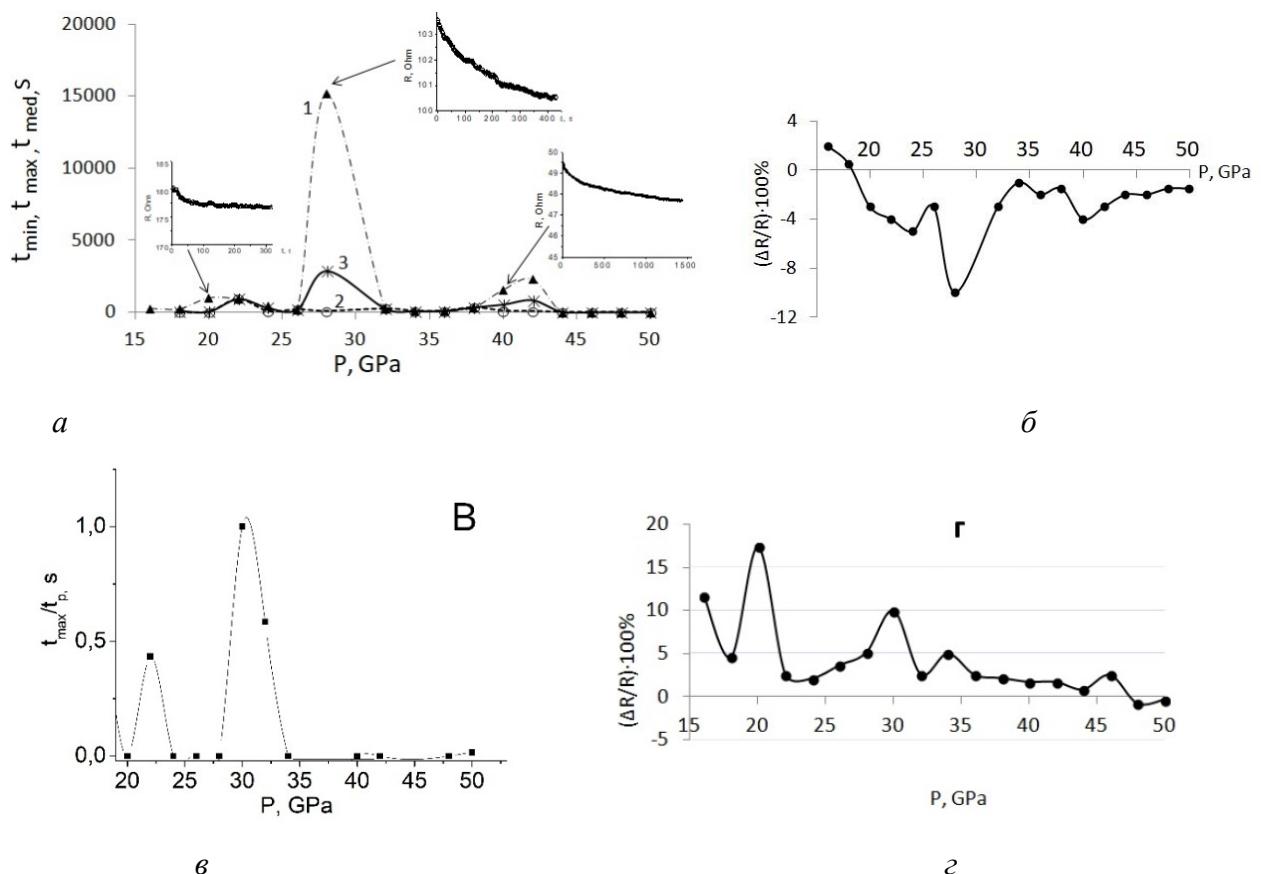


Рис. 3. Барические зависимости времени релаксации электросопротивления t_{max} (1), t_{min} (2) и t_{med} (3) (*а*), а также относительного значения электросопротивления (*б*) для композита $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$. Барические зависимости относительной величины времени релаксации электросопротивления t_{max}/t_p (здесь t_p – максимальное значение времени релаксации, наблюдаемое при давлении 31 ГПа) (*в*), и относительного значения электросопротивления (*г*) для композита $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$. Величины $t_{\text{max}} = \max\{t_1, t_2\}$, $t_{\text{min}} = \min\{t_1, t_2\}$ оценены (для каждого увеличивающегося фиксированного значения давления) из аппроксимации зависимостей электросопротивления от времени (времени выдержки под новым приложенным давлением) по формуле $R(t) = A_1 e^{-\nu t_1} + A_2 e^{-\nu t_2}$ (примеры экспериментальных зависимостей $R(t)$ и их аппроксимаций представлены на вставках к рис. 3 *а* и *в*)

Так как особенности поведения именно t_{max} , характеризующие процессы, обусловленные релаксацией кристаллической решетки, наблюдали в близких интервалах давлений, вблизи 30 ГПа, и для материала $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$, так и для $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ (см. рис. 3) (учитывая разное количество магнитных наногранул MnAs и различие в их размерах в исследуемых материалах), можно говорить о преобразованиях электронной подсистемы именно матрицы композита, когда при увеличении давления изменяются параметры кристаллической решетки и уменьшается объем элементарной ячейки. Полученные результаты согласуются с результатами исследования поведения термоэдс композита 44.7 мол.% MnAs при давлениях до 50 ГПа [11].

В [11] обсуждается наличие барического фазового перехода в композите в окрестности 33 ГПа, вероятнее всего связанного 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 ГПа [12]. Учитывая наличие экстремумов на рассматриваемых барических зависимостях времен релаксации для обоих материалов в интервале 18–24 ГПа и наиболее яркое проявление их в композите с содержанием 44.7 мол.% MnAs, где магнитные нанообласти имеют большие размеры, можно говорить о влиянии магнитных наногранул на электрические свойства материалов в окрестности ~22 ГПа.

Заключение

Исследованы релаксационные эффекты в композитах $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ и $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ в интервале давлений 10–50 ГПа. Установлено, что в области 28–34 ГПа наблюдается значительное увеличение времени релаксации электросопротивления до стационарного значения, а на барических зависимостях относительного электросопротивления проявляются экстремумы. Они приходятся на интервалы давлений (в окрестности ~ 30 ГПа), где наблюдаются особенности других электрических характеристик, связанные с возможными превращениями в электронной подсистеме гранул MnAs. Полученные результаты согласуются с выводами авторов [11], сделанными на основе ранее проведенных исследований термоэдс этих материалов при давлениях до 50 ГПа.

Авторы выражают благодарность коллективу Уральского центра коллективного пользования «Современные нанотехнологии» при Уральском федеральном университете за проведение ряда измерений.

Литература

1. Liu Z.K., Zhou B., Zhang Y., Wang Z.J., Weng H.M., Prabhakaran D., Mo S.-K., Shen Z.X., Fang Z., Dai X., Hussain Z., Chen Y.L. // *Science*. 343, 864 (2014).
2. Young S.M., Zaheer S., Teo J.C.Y., Kane C.L., Mele E.J., Rappe A.M. // *Phys. Rev. Lett.* 108, 140405 (2012).
3. Xu S.-Y., Liu C., Kushwaha S.K. et al. (Collaboration) // *Science*. 347, 294 (2015).
4. Sklyadneva Yu I., Rusinov I.P., Heid R., Bohnen K.-P., Echenique P.M., Chulkov E.V. // *Sci. Rep.* 6, 24137 (2016).
5. Crassee I., Sankar R., Lee L. et al. 3D Dirac semimetal Cd_3As_2 : a review of material properties // *Phys. Rev. Materials*. – 2018. – V. 2. – P. 92–105.
6. Риль А.И., Коцуря А.В., Маренкин С.Ф и др. Микроструктура кристаллов системы Cd_3As_2 – MnAs // Известия Юго-Западного государственного университета. – 2017. – Т. 7, – № 2 (23). – С. 120–134.

7. Маренкин С.Ф., Трухан В.М., Федорченко И.В., Труханов С.В., Шёлковая Т.В. Магнитные и электрические свойства композита Cd_3As_2 + MnAs // Журнал неорганической химии. – 2014. – Т. 59, № 4. – С. 511–516.
8. Vereshchagin L.F., Yakovlev E.N., Vinogradov B.V., Stepanov G.N., Bibaev K.Kh., Alaeva T.I., Sakun V.P. High Temperatur // High Press. 6, 499 (1974).
9. Babushkin A.N., Pilipenko G.I., Gavrilov F.F. // J. Phys.: Condens. Matter. 5, 8659 (1993).
10. Babushkin A.N. // High Press. Res. 6, 349 (1992).
11. Melnikova N.V., Tebenkov A.V., Sukhanova G.V et al. Thermoelectric properties of a ferromagnetic semiconductor based on the Dirac semimetal Cd_3As_2 at high pressure // Solid State Physics. – 2018. – V. 60, № 3. – P. 499–503.
12. Lanpo He, Yating Jia, Sijia Zhang, Xiaochen Hong, Changqing Jin, Shiyan Li. // Pressure-induced superconductivity in the three-dimensional topological Dirac semimetal Cd_3As_2 npj Quantum Materials 1, 16014 (2016).

Поступила в редакцию 10 марта 2020 г.

UDC 537; 538.9; 53.097

DOI: 10.21779/2542-0321-2020-35-3-75-80

Relaxation Effects in $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ and $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ at High pressures

L.A. Saypulaeva¹, N.V. Melnikova², A.N. Babushkin², A.V. Tebenkov², D.O. Alikin², M.M. Gadzhialiev¹, K.Sh. Khizriev¹

¹ Amirkhanov Institute of Physics, Dagestan Federal Research Center, Russian Academy of Sciences; Russia, 367015, Makhachkala, M. Yaragskiy st., 94; luizasa11@mail.ru;

² Institute of Natural Sciences and Mathematics, Ural Federal University; Russia, 620000, Yekaterinburg, Kuibyshev st., 48

The results of experimental studies of the electrical resistance of the composites $\text{Cd}_{48.6}\text{Mn}_{11.4}\text{As}_{40}$ and $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$ at high pressures up to 50 GPa are presented. The samples are composites consisting of ferromagnetic MnAs granules randomly located in the bulk of the Cd_3As_2 semiconductor matrix. The influence of high pressure on the electrophysical properties of composites was investigated in a high-pressure chamber with diamond anvils of the “rounded cone-plane” type. To assess the role of relaxation effects due to plastic deformation of materials, for some fixed values of the applied load, we measured the dependences of the electrical resistance R on the time t of the load, analyzing the behavior of the dependences R (t). The relaxation effects due to plastic deformation of materials in the pressure range 28–34 are studied. An analysis of the dependence of the values of the relaxation time of electrical resistance on pressure made it possible to establish that in the generalized intervals 18–24 GPa and 26–34 GPa for both materials and in the region 38–44 GPa for the sample $\text{Cd}_{50.3}\text{Mn}_{8.2}\text{As}_{41.5}$, their significant increase is observed. This indicates the possibility of realizing in these areas the pressures of a structural or electronic phase transition.

Keywords: *pressure, electrical resistance, nanocomposite, relaxation effects.*

Received 10 March 2020