

УДК 53.092

DOI: 10.21779/2542-0321-2018-33-4-33-40

Н.В. Мельникова¹, Л.А. Сайпулаева², А.Г. Алибеков², М.М. Гаджиалиев², В.С. Захвалинский³, С.Ф. Маренкин⁴, З.Ш. Пирмагомедов¹

Релаксационные процессы в композите на основе диарсенида трикадмия при высоких давлениях

¹ Уральский федеральный университет, Институт естественных наук; Россия, 620000, г. Екатеринбург, пр. Ленина, 51;

² Институт физики им. Х.И. Амирханова ДНЦ РАН; Россия, 367003, г. Махачкала, ул. М. Ярагского, 94; taggadj@rambler.ru;

³ Белгородский национальный исследовательский университет; Россия, 308015, г. Белгород, ул. Победы, 85;

⁴ Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН; Россия, 119991, г. Москва, Ленинский пр., 31

При квазигидростатическом $P \leq 50$ ГПа давлении в области комнатной температуры измерены электрическое сопротивление и термоэдс в композите на основе диарсенида трикадмия.

Давление до 50 ГПа создавали в камере высокого давления (КВД) с наковальнями из искусственных алмазов типа «карбонадо». Исследуемые образцы, получаемые сжатием в КВД, имели толщину от 10 до 30 мкм и диаметр около 0,2 мм. Для измерения термоэдс при каждом фиксированном давлении в исследуемой барической области (до 50 ГПа) применяли две схемы: 1) измерения термоэдс проводили при постепенном увеличении давления; 2) измерения термоэдс проводили при циклировании по давлению.

Проведенный анализ барической зависимости времен релаксации электросопротивления и термоэдс от давления позволил установить, что в интервале 30–33 ГПа наблюдается значительное увеличение времени релаксации электросопротивления и термоэдс, связанное с возможным электронным фазовым переходом.

Ключевые слова: *давление, термоэдс, электрическое сопротивление, фазовый переход.*

Введение

Теоретически было предсказано [1, 2] и экспериментально [3–5] установлено, что Cd_3As_2 относится к дираковским полуметаллам, которые характеризуются присутствием в электронном спектре объемного кристалла – конуса Дирака [6]. Диарсенид трикадмия является многообещающим материалом в плане создания электронных приборов нового поколения [7]. В настоящей работе представлены результаты измерения электрического сопротивления и термоэдс на композите в $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$ при высоком квазигидростатическом давлении в области комнатных температур и исследования релаксационных эффектов в них.

Методы измерения при квазигидростатических давлениях до 50 ГПа

Для создания квазигидростатических давлений использовалась камера высокого давления (КВД) с алмазными наковальнями типа «закругленный конус–плоскость» (рис. 1) [8].

При измерении барических зависимостей электросопротивления на постоянном токе исследуемый образец $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$ имел толщину от 10 до 30 мкм и диаметр около 0,2 мм. Градуировка КВД и технические детали подробно описаны в работах [8–10].

При измерении термоэдс для создания температурного градиента одну из наковален нагревали, температуру наковален в местах контактов измеряли двумя термопарами медь–константан. Абсолютную термоэдс S вычисляли, измеряя наведенную в образце разность потенциалов (термоэдс) через медные ветви термопар

$$S = S_{\text{Cu}} + \frac{U_{12}}{T_1 - T_2},$$

где S_{Cu} – абсолютная термоэдс меди ($1.8 \text{ мкВ} \cdot \text{К}^{-1}$), U_{12} – измеренная термоэдс, T_1 и T_2 – температуры нагретого и холодного концов образца.

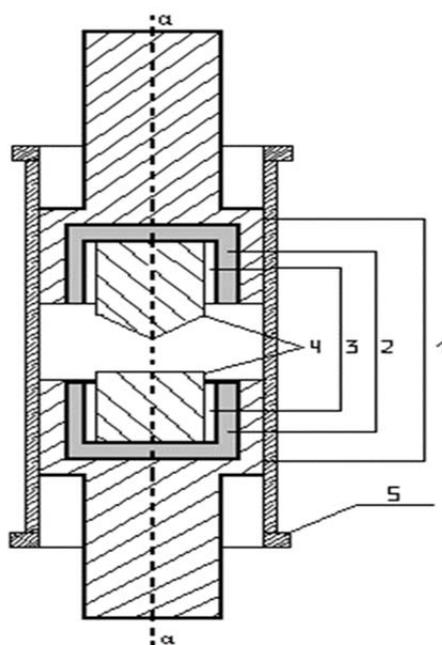


Рис. 1. Конструкция камеры высокого давления типа «закругленный конус – плоскость»: 1 – вкладыш; 2 – изолирующий материал (текстолит или фторопласт); 3 – обоймы из бронзы; 4 – синтетические алмазы; 5 – изолирующий цилиндр

Для измерения термоэдс при каждом фиксированном давлении в исследуемой барической области (до 50 ГПа) применяли две схемы: 1) измерения термоэдс проводили при постепенном увеличении давления; 2) измерения термоэдс проводили при циклировании по давлению.

Результаты и их обсуждение

Электросопротивление при давлениях до 50 ГПа

Ранее в нашей работе [2] исследовался $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$, было измерено удельное электросопротивление $\rho(P)$ при гидростатическом давлении до 9 ГПа при подъеме и сбросе давления в области комнатных температур. На барической зависимости удельного электросопротивления $\rho(P)$ при $P \approx 4,4$ ГПа наблюдался структурный фазовый переход.

Дальнейшие измерения были продолжены в КВД типа плоскость – закругленный конус. Сравнение хода кривых $R(P)$, полученных при гидростатическом давлении [2], с $R(P)$, полученными в алмазных камерах (рис. 2), позволяет предположить, что в диапазоне давлений $P = 9 \div 15$ ГПа, по всей видимости, имеет место растянутый фазовый переход.

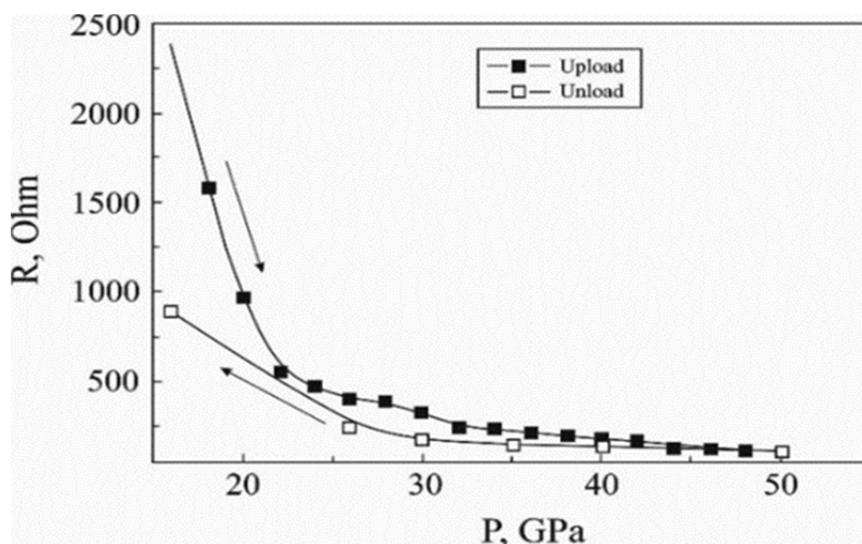


Рис. 2. Барические зависимости электросопротивления

При дальнейшем увеличении давления сопротивление $R(P)$ резко уменьшается и в интервале давлений $P \approx (30 \div 33)$ ГПа оно меняется очень медленно. Из полученных результатов следует, что при $P \approx (30 \div 35)$ ГПа возникает новая фаза.

Если предположить, что при атмосферном давлении электрические и магнитные свойства в основном определяются поведением нанокластеров MnAs, как и в случае композита $\text{Cd}_3\text{As}_2 + \text{MnAs}$ (52.7 мас. % MnAs) [11], то в условиях высоких давлений значительную роль также могут играть и изменение расстояний между гранулами, и возможные проявления особенностей структурных характеристик и свойств матрицы композита.

Проведенный анализ зависимости времен релаксации электросопротивления от давления позволил установить, что в интервале $P = (30 \div 33)$ ГПа наблюдается значительное увеличение времени релаксации электросопротивления. При оценке времен релаксации электросопротивления под давлением наблюдали следующую закономерность: при фиксированных значениях поступательно увеличивающегося давления зависимость электросопротивления от времени аппроксимируется двойной экспонентой $R(t) = A_1 e^{-t/\tau_1} + A_2 e^{-t/\tau_2}$. Можно предположить, что меньшее время $t_{min} = \min\{\tau_1, \tau_2\}$ соответствует релаксационным процессам, связанным с изменением концентрации носителей, ширины запрещенной зоны, большее время $t_{max} = \max\{\tau_1, \tau_2\}$ характеризует процес-

сы, связанные с релаксацией кристаллической решетки. Это предположение мы обсудим дальше, в разделе, связанном с изучением барических зависимостей термоэдс. Отметим, что наибольшие времена релаксации t_{\max} электросопротивления зафиксированы в области давлений $P = (30-33)$ ГПа (рис. 3).

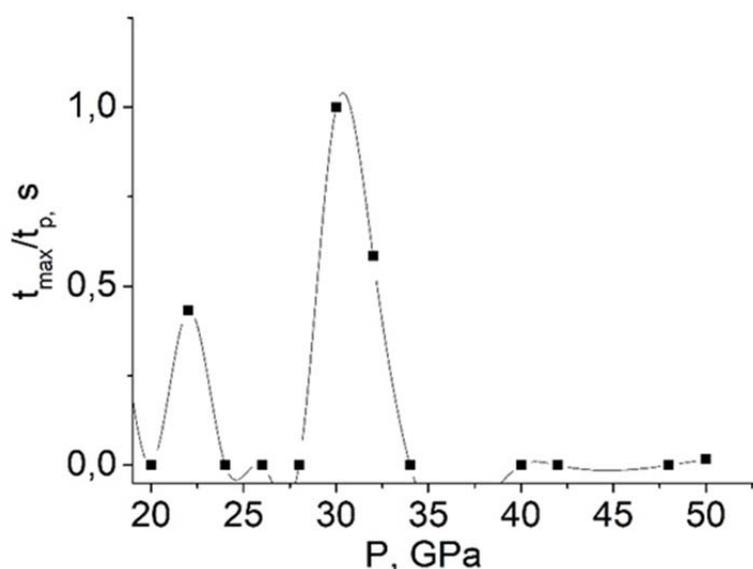


Рис. 3. Барические зависимости относительной величины времени релаксации t_{\max} электросопротивления. Здесь t_p – время релаксации при 31 ГПа

Таким образом, кроме обнаруженного авторами [2] структурного фазового перехода в композите при $P \approx 4.4$ ГПа, в нем может происходить фазовый переход при давлениях $P = (30-33)$ ГПа, связанный с особенностями матрицы композита Cd_3As_2 – изменениями характеристик ее электронной подсистемы [12] вследствие изменения значений параметров кристаллической решетки и уменьшения объема элементарной ячейки при увеличении давления.

Термоэдс при давлениях до 50 ГПа

На рис. 4 представлены результаты двух измерений термоэдс S , следующих одно за другим, на одном и том же образце композита. При первом измерении (рис. 4а) термоэдс во всей исследованной барической области при увеличении давления возрастает по модулю, и при достижении давления ≈ 50 ГПа величина ее становится больше примерно в 4–4,5 раза по сравнению с исходной. При последующем понижении давления соответствующая часть графика $S(P)$ лежит выше части, соответствующей росту давления, и по достижении минимальной величины давления величина S остается в два раза больше исходной.

При втором измерении (рис. 4б) после увеличения и последующего снижения давления величина S возвращается к значению, соответствующему начальному давлению во втором измерении. Так же, как и в первом измерении, между графиками $S(P)$ наблюдается гистерезис, но уже менее выраженный.

На всех графиках в окрестности $P \approx 33$ ГПа можно наблюдать особенности в виде точек перегиба.

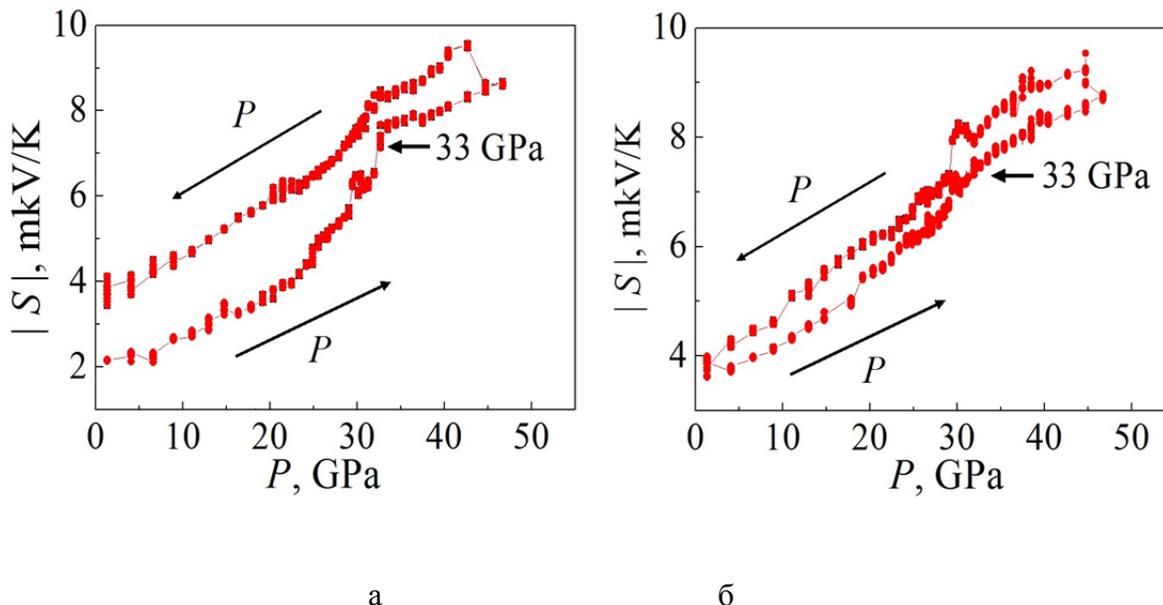


Рис. 4. Зависимости коэффициента Зеебека для композита $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$:
а, б – соответственно 1-й и 2-й циклы измерений

Также были обнаружены заметные релаксационные эффекты при исследовании процессов электросопротивления в указанном интервале давлений (рис. 3). При оценке же времен релаксации термоэдс под давлением (рис. 5) зависимости термоэдс от времени при фиксированном давлении аппроксимируются лучше экспонентой первого порядка $S(t) = Ae^{-t/t_0}$. При попытке аппроксимировать $S(t)$ двойной экспонентой два времени совпадают. Высказанное ранее предположение о том, что меньшее время $t_{min} = \min\{t_1, t_2\}$, оцененное из зависимостей электросопротивления от времени $R(t) = A_1e^{-t/t_1} + A_2e^{-t/t_2}$, соответствует релаксационным процессам, связанным с изменением концентрации носителей, ширины запрещенной зоны, а большее – характеризует процессы, связанные с релаксацией кристаллической решетки, подтверждается следующим фактом: изменение термоэдс со временем, при выдержке образца под определенным давлением характеризуется единственным временем релаксации, при давлениях выше 23 ГПа – близким, а при давлениях $P \approx 33$ ГПа и выше – практически совпадающим с наименьшим t_{min} из двух оцениваемых времен из аппроксимации кривой релаксации для электросопротивления (рис. 5).

Учитывая, что термоэдс – наиболее чувствительный параметр, характеризующий транспортные свойства материалов, меньшее время t_{min} , оцененное из зависимостей $R(t)$, действительно характеризует процессы, связанные с носителями заряда, а большие времена t_{max} , например в районе $P = (30-33)$ ГПа, указывают на возможную перестройку кристаллической решетки. Отметим, что при давлениях $P \approx 33$ ГПа и выше (до ~ 45 ГПа) времена релаксации термоэдс t_0 и t_{min} из оценки для электросопротивления близки друг к другу (при одних и тех же значениях давления) и составляют примерно 5–8 с.

Оценка концентрации носителей заряда, которую можно осуществить для вырожденных полупроводников, полуметаллов и металлов из величины термоэдс [11], указывает на высокие ее значения (порядка 10^{21} – 10^{22} см⁻³), что характерно для узкозонных полупроводников *n*-типа или полуметаллов. С увеличением давления концентрация носителей уменьшается, при этом в области $P \approx (22 \div 32)$ ГПа на графике зависимости относительной концентрации носителей заряда от давления, приведенном в работе [13], проявляются особенности в виде точек перегиба. При давлении $P \approx 47$ ГПа концентрация составляет $n \approx 3.3 \cdot 10^{21}$ см⁻³. Эти особенности, с учетом поведения релаксации электросопротивления и термоэдс в области давлений $P = (30 \div 33)$ ГПа интерпретированы нами как проявление второго барического фазового перехода в $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$.

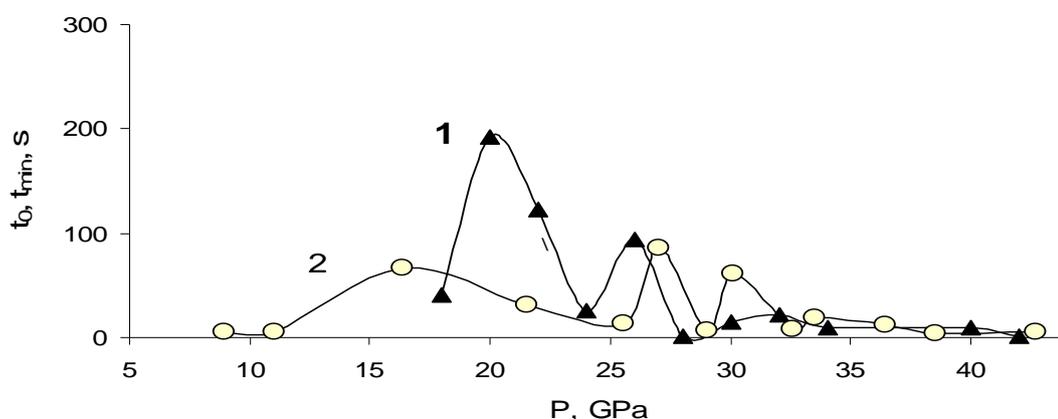


Рис. 5. Барические зависимости времени релаксации электросопротивления $t_{\min} = \min\{t_1, t_2\}$, оцененного из зависимостей электросопротивления от времени $R(t) = A_1 e^{-t/t_1} + A_2 e^{-t/t_2}$ (1), и времени релаксации термоэдс t_0 , оцененного из зависимостей термоэдс от времени $S(t) = A e^{-t/t_0}$ (2)

Выводы

Проведенный анализ полученных результатов позволил установить, что в интервале $P = (30 \approx 33)$ ГПа в композите $(\text{Cd}_3\text{As}_2)_{0.653}(\text{MnAs})_{0.44}$ наблюдается значительное увеличение времени релаксации электросопротивления и термоэдс, связанное с возможным структурным или электронным фазовым переходом. Учитывая, что особенности барического поведения времен релаксации, электросопротивления и термоэдс в первую очередь, как указывалось выше, обусловлены изменениями характеристик электронной подсистемы Cd_3As_2 , и принимая во внимание, что ее моноклинная кристаллическая структура при давлении до 50 ГПа не изменяется [12], а также тот факт, что расстояние между ферромагнитными гранулами, где могут туннелировать электроны в композите, при увеличении давления уменьшается, можно говорить о превращениях в интервале давлений $P = (30 \approx 33)$ ГПа как о наиболее вероятных именно в электронной подсистеме.

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

Литература

1. Wang Z., Weng H., Wu Q., Dai X., Fang Z. Three-dimensional Dirac semimetal and quantum transport in Cd_3As_2 // *Phys. Rev.* – 2013. – В. 88. – P. 125427.
2. Ali M.N., Gibson Q., Jeon S., Zhou B.B., Yazdani A., Cava R.J. The crystal and electronic structures of Cd_3As_2 , the three-dimensional electronic analogue of graphene // *Inorganic Chemistry*. – 2014. – Vol. 53, is. 8. – P. 4062–4067.
3. Borisenko S., Gibson Q., Evtushinsky D., Zabolotnyy V., Buchner B., Cava R.J. Experimental realization of a three dimensional dirac semimetal // *Phys. Rev. Lett.* – 2014. – Vol. 113, is. 2. – P. 027603.
4. He L.P., Hong X.C., Dong J.K., Pan J., Zhang Z., Zhang J., Li S.Y. Quantum transport evidence for the three-dimensional dirac semimetal phase in Cd_3As_2 // *Phys. Rev. Lett.* – 2014. – Vol. 113, is. 24. – P. 246402.
5. Li C.-Z., Wang L.-X., Liu H., Wang J., Liao Z.-M., Yu D.-P. Giant negative magnetoresistance induced by the chiral anomaly in individual Cd_3As_2 nanowires // *Nature Communications*. – 2015. – Vol. 6. – P. 10137.
6. Wehling T.O., Black-Schaffer A.M., Balatsky A.V. Dirac materials *Advances in Physics*. – 2014. – Vol. 63, is. 1. – P. 1–76.
7. Walowski J., Munzenberg M. Perspective: Ultrafast magnetism and THz spintronics // *J. Appl. Phys.* – 2016. – Vol. 120. – P. 140901.
8. Vereshchagin L.F., Yakovlev E.N., Vinogradov B.V. High Temperatures // *High Pressures*. – 1974. – Vol. 6, № 5. – P. 499–504.
9. Babushkin A.N. *High Press. Res.* – 1992. – Vol. 6, № 6. – P. 349–356.
10. Babushkin A.N., Pilipenko G.I., Gavrilov F.F. *J. Phys.: Condens. Matter.* – 1993. – № 5. – С. 8659.
11. Маренкин С.Ф., Трухан В.М., Федорченко И.В., Труханов С.В., Шёлковая Т.В. // *ЖНХ*. – 2014. – Т. 59, № 4. – С. 511–516.
12. Lanpo He, Yating Jia, Sijia Zhang, Xiaochen Hong, Changqing Jin and Shiyan Li. Pressureinduced superconductivity in the three-dimensional topological Dirac semimetal Cd_3As_2 , *npj Quantum Materials*. – 2016. – № 1. – С. 16014.
13. Мельникова Н.В., Тебеньков А.В., Суханова Г.В., Бабушкин А.Н., Сайпулаева Л.А., Захвалинский В.С., Габитов С.Ф., Алибеков А.Г., Моллаев А.Ю. // *ФТТ*. – 2018. – Т. 60, № 3. – С. 494–498.

Поступила в редакцию 26 октября 2018 г.

UDC 53.092

DOI: 10.21779/2542-0321-2018-33-4-33-40

Relaxation effects in a composite on the basis of trikadmy diarsenide at high pressure

*N.V. Melnikova¹, L.A. Saipulaeva², A.G. Alibekov², M.M. Gadzhialiev²,
V.S. Zakhvalinsky³, S.F. Marenkin⁴, Z.Sh. Pirmagomedov¹*

¹ *Institute of Natural Science, Ural Federal University; Russia, 620000, Yekaterinburg, Lenin Av., 51;*

² *Institute of Physics, Dagestan Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences; Russia, 367003, Makhachkala, M. Yaragsky st., 94; maggadji@rambler.ru;*

³ *Belgorod State National Research University; Russia, 308015, Belgorod, ul. Victory, 85;*

⁴ *Kurnakov Institute of General and Inorganic Chemistry, Russian Academy of Sciences; Russia, 119991, Moscow, Lenin Avenue, 31*

The article studies the pressure behavior of the electrical resistance and thermopower in a wide range of pressures (up to 50 GPa) at room temperature and relaxation effects arising during the formation of new phases are investigated. The object of research was the composite tricadmiumdiarsenide – manganese arsenide consisting of granules of ferromagnetic MnAs, placed in a semiconductor matrix tricadmiumdiarsenide. To create quasi-hydrostatic pressures, a high-pressure chamber with diamond anvils of the “rounded cone-plane” type was used. To create a temperature gradient, one of the anvils was heated; the temperature of the anvils at the contact points was measured by two copper-constantan thermocouples. The analysis of the dependence of the relaxation time in the electrical resistivity on pressure made it possible to establish that under the interval of 30–33 GPa a significant increase in the relaxation time of the electrical resistivity due to a possible structural or electronic phase transition is observed.

Keywords: *high pressure, thermoelectric power, electrical resistance, phase transition.*

Received 26 October, 2018