

УДК 537; 538.9; 53.097

DOI: 10.21779/2542-0321-2019-34-3-22–29

Л.А. Сайпулаева¹, Ш.Б. Абдулвагидов¹, М.М. Гаджиалиев¹, А.Г. Алибеков¹,
Н.В. Мельникова², В.С. Захвалинский³, С.Ф. Маренкин⁴, З.Ш. Пирмагомедов¹

Влияние температуры на вольт-амперные характеристики Cd_3As_2+MnAs

¹ ФГБУН Институт физики им. Х.И. Амирханова ДНЦ РАН; Россия, 367015, г. Махачкала, ул. М. Ярагского, 94; luizasa11@mail.ru;

² Уральский федеральный университет, Институт естественных наук и математики; Россия, 620002, г. Екатеринбург, пр. Ленина, 51;

³ Белгородский государственный 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, пр. Ленина, 31

Показано, что поведение электросопротивления в $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ обусловлено спиновой поляризацией собственных электронов в матрице Cd_3As_2 спин-поляризованными электронами, инжектируемыми в нее из ферромагнитных нанокластеров $MnAs$. С ростом намагниченности всего образца угол между векторами намагниченности отдельных нанокластеров уменьшается, а спин-поляризованный ток возрастает. Рост концентрации собственных носителей в матрице приводит к возрастанию спин-поляризованного тока, что подтверждается результатами исследования вольт-амперных характеристик (ВАХ), где наблюдалось отклонение от омичности, возрастающее с напряжением. Это указывает на то, что спиновая поляризация собственных электронов в Cd_3As_2 за счет увеличения инжекции спин-поляризованных электронов из $MnAs$ тем больше, чем выше ток. Описанное поведение впервые наблюдалось в объемном нанокompозите $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ с наноразмерными ферромагнитными включениями. Нанокompозит синтезирован относительно дешевым методом по сравнению с гетероструктурами из слоев ферромагнетика и полупроводника, где подобное явление было обнаружено ранее.

Ключевые слова: нанокластер, вольт-амперные характеристики, спин-поляризованный ток, температура, электросопротивление.

Введение

Композит $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ состоит из ферромагнитных гранул $MnAs$, случайным образом расположенных в полупроводниковой матрице Cd_3As_2 , что обуславливает неравномерное распределение электрического поля в объеме образца.

Основная цель статьи – объяснение природы обнаруженного нами отклонения от омичности вольт-амперных характеристик в нанокompозите $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$.

Результаты и обсуждение

Композит $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ был получен по относительно дешевой химической технологии по сравнению с гетероструктурами, выращенными методом мо-

лекулярно-лучевой эпитаксии из слоев ферромагнетика и полупроводника, в которых ранее было обнаружено подобное явление. Наш образец был выплавлен вакуумно-ампульным методом из отдельных элементов в графитизированных вакуумированных ампулах в электрической резистивной печи с автоматической регулировкой температуры (точность до $1^\circ C$). Масса образца составляла 67.09 мг.

Электронно-микроскопические исследования, проведенные с помощью силового электронного микроскопа (СЭМ) фирмы Carl Zeiss Merlin, подтвердили наличие наночастиц MnAs с характерными диаметрами от 10 до 50 нм внутри матрицы Cd_3As_2 (рис. 1). Как видно из рисунка 1, характерные диаметры нанокластеров MnAs в основном составляют 20–30 нм. Отдельные экземпляры с размерами более 50 нм, по нашему мнению, могут находиться только в приповерхностных областях, а не в объеме композита, так как это привело бы к существенному повышению энергий деформации как матрицы, так и ее вкраплений. Так что вполне обоснованно можно считать, что объемные физические свойства исследуемого нами композитного материала $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% MnAs обусловлены нанокластерами MnAs с диаметрами от 20 до 30 нм. Рентгенограмма нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% MnAs (рис. 2) подтверждает, что он состоит из двух фаз: Cd_3As_2 и MnAs. Микроструктура образца свидетельствует об эвтектическом разделении расплава при отвердевании на систему из двух веществ: Cd_3As_2 и MnAs.

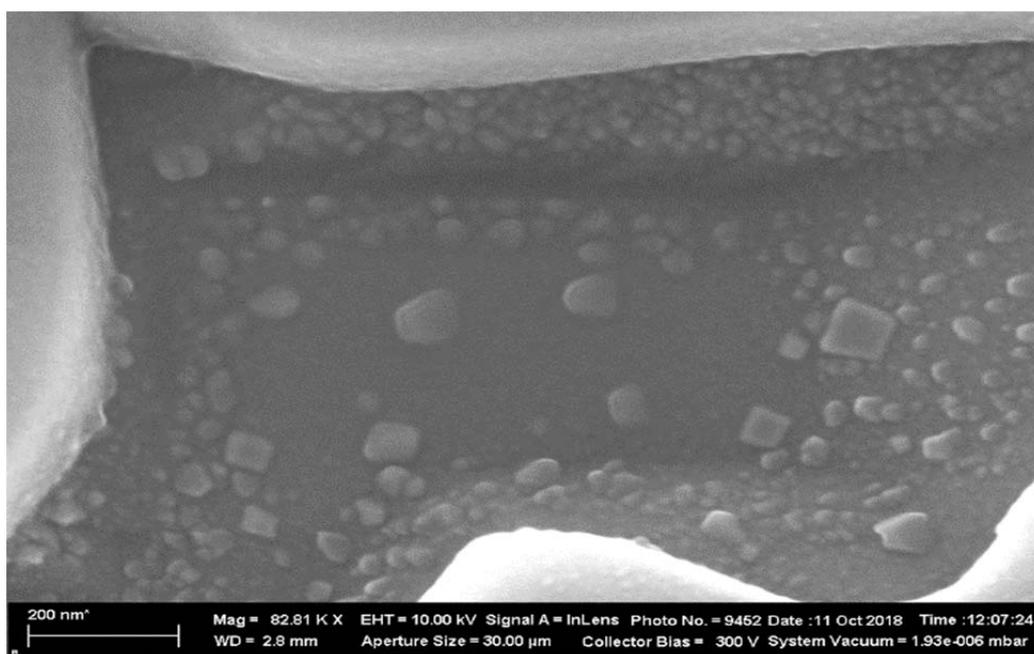


Рис. 1. Скол образца $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% MnAs, полученный на СЕМ (Merlin, Carl Zeiss)

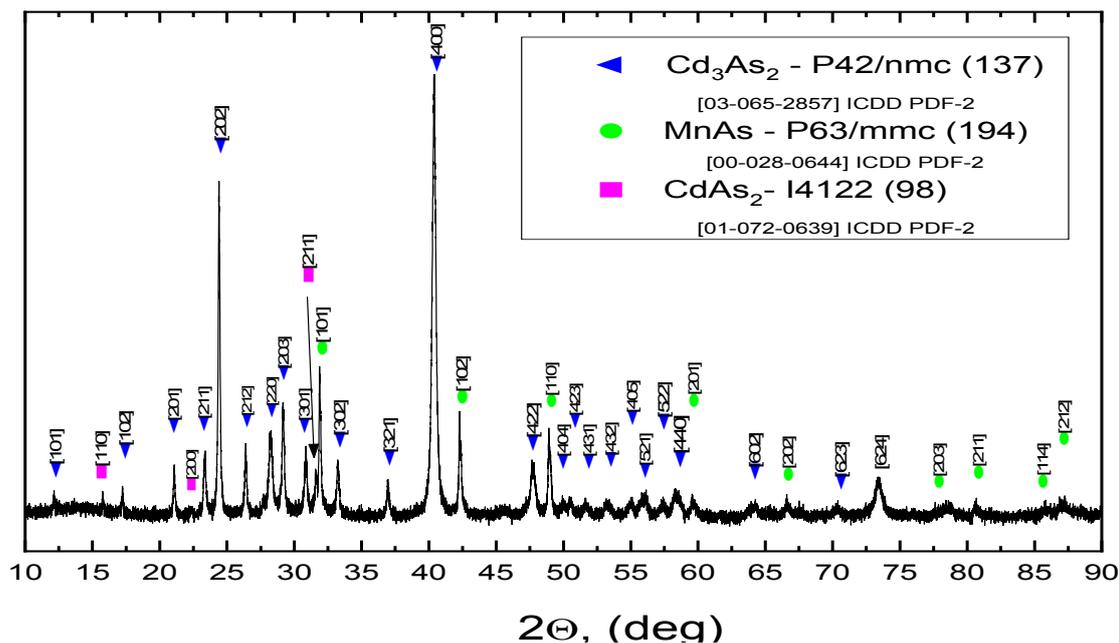


Рис. 2. Рентгенограмма нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$

Для измерения электросопротивления в области 77–372 К образец с нанесенными на него контактами помещался в герметичную камеру, заполненную газообразным гелием. Сначала камера помещалась в дьюар с жидким азотом для измерений в области 77–300 К, а затем в термостат для измерений в интервале 300–372 К. Перепад напряжения вдоль образца и сигнал с медьконстантановых термопар измерялись милливольтметрами Ц-300 и KETTLEY-2000. Вольтамперные характеристики этого композита, измеренные в двух направлениях приложенного напряжения в интервале температур (77–372 К), представлены на рисунке 3. Как видно, ВАХ симметричны при прямом и обратном направлениях тока, а при малых напряжениях выполняется закон Ома. На рисунке 4 приведена температурная зависимость электросопротивления нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ в интервале температур 40–380 К.

Из температурной зависимости электросопротивления образца (рис. 4) видно, что ниже критической температуры образования кластерного стекла $T_{cg} = 241$ К тип его проводимости металлический, а выше этой температуры – полупроводниковый. Такое поведение электросопротивления согласуется с СЭМ-картиной скола исследованного образца. Если бы существовала сколь-нибудь значительная перколяционная проводимость фазы Cd_3As_2 , то металлический характер проводимости наблюдался бы вплоть до температуры Кюри (325 К) для $MnAs$. Так как двухфазная система, состоящая из ферромагнитного $MnAs$ и немагнитной матрицы Cd_3As_2 , имеет место как выше, так и ниже T_{cg} , такое поведение трудно объяснить. Казалось бы, в результате конкуренции металлического и полупроводникового характеров проводимости соответствующих фаз, должна была наблюдаться некая монотонная зависимость вплоть до температуры Кюри $T_C \approx 325$ К. Однако реальная картина на рисунке 4 наводит на мысль о доминирующем влиянии нанокластеров на резистивные свойства матрицы.

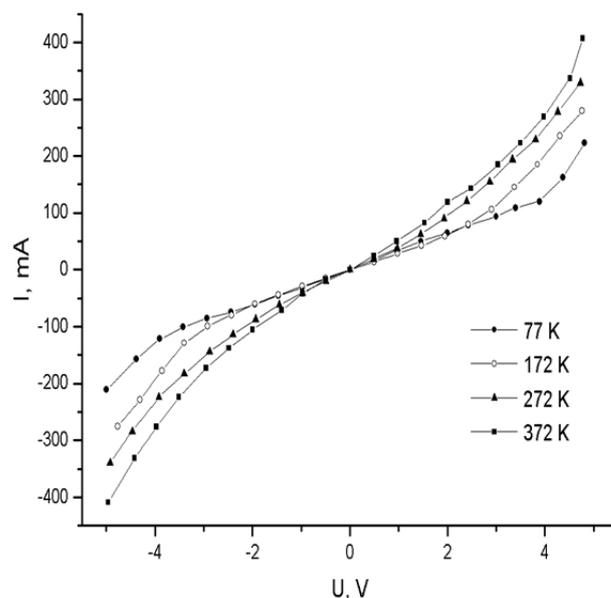


Рис. 3. ВАХ при различных температурах

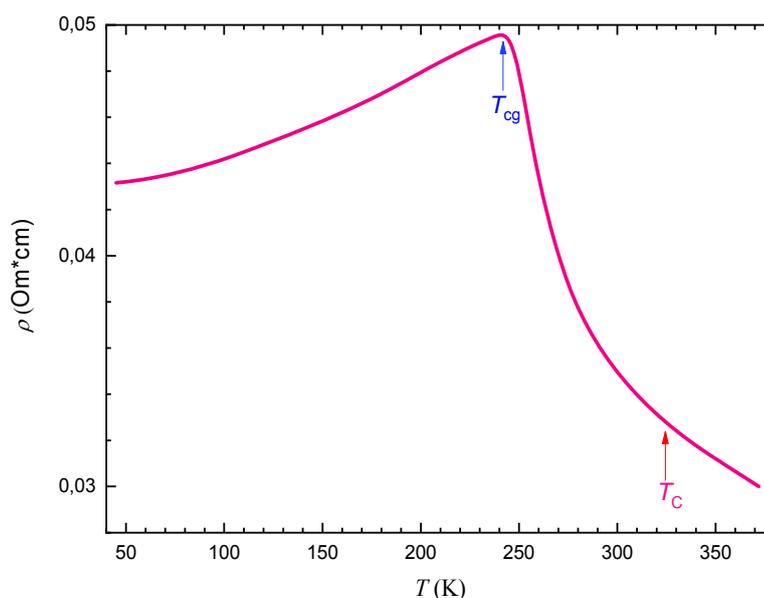


Рис. 4. Температурная зависимость электросопротивления нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$

Ключом к разгадке такого аномального поведения проводимости в мезоскопической нанокompозитной системе является модель двойного обмена по Зинеру, так как зависимости электросопротивления в манганитах и в нанокompозите $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$ качественно совпадают. Однако манганиты являются микроскопической атомарной системой, в которой электрон переходит от катиона марганца Mn^{3+} через диамагнитный анион кислорода O^{2-} к Mn^{3+} . Причем вероятность обмена существенно возрастает, когда спины электрона и катионов Mn^{3+} сонаправлены, т. е. ферромагнитны. При этом электросопротивление при $T < T_C$ ведет себя в соответствии с металлическим типом проводимости. Когда же спины соседних катионов непарал-

лельны из-за температурной дезориентации, т. е. в парамагнитном состоянии ($T > T_C$), электросопротивление имеет полупроводниковый тип. Таким образом, точка Кюри T_C микроскопической системы с двойным обменом (например, манганита) аналогична точке кластерного стекла T_{cg} мезоскопической системы $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$.

На правдоподобность такого сценария указывает аномальное понижение намагниченности с падением температуры после перехода в ферромагнитное состояние (рис. 5). Точка Кюри $T_C = 325$ К соответствует точке перегиба кривой ($\partial^2 I(T)/\partial T^2 = 0$). Обычно в таком случае намагниченность возрастает из-за уменьшения разупорядочивающего действия температуры. Уменьшение намагниченности при охлаждении образца от T_{cg} до 10 К составляет около 3,3 %. Хотя эффект и небольшой, но достоверный на фоне высокой точности измерений намагниченности. Это наводит на мысль о том, что в данном случае мы имеем дело с макроскопическим вариантом двойного обмена: не только схлопывание углов между векторами намагниченности ферромагнитных нанокластеров приводит к заметному увеличению спин-поляризованного тока между ними, но и сам этот ток, в свою очередь, способствует ферромагнитному упорядочению векторов намагниченности нанокластеров, т. е. возрастанию результирующей намагниченности нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% $MnAs$. Таким образом, изменяя спин-поляризованный ток с помощью приложенного к образцу электрического поля, можно изменять намагниченность образца.

Аналогичный сценарий имеет место, например, в манганитах [1], в сверхпроводниках на основе железа [2], а также многослойных магнитных сэндвич-структурах на их основе [3]. Однако заметим – пробирочная «выплавка» нашего нанокompозита намного дешевле изготовления полупроводниковой гетероструктуры методом молекулярно-лучевой эпитаксии. В макроскопическом аналоге двойного обмена вместо магнитоактивных катионов выступает мезоскопический кластер $MnAs$, а в качестве среды, передающей заряд и спин электрона (вместо аниона кислорода O^{2-}), выступает дираковский полуметалл Cd_3As_2 n-типа.

Для выявления возможного вклада спиновой поляризации носителей тока в электропроводность нами были исследованы изотермические зависимости электросопротивления образца от приложенного напряжения как ниже (при 77 и 172 К), так и выше температуры $T_{cg} = 241$ К (при 272 и 372 К) (рис. 6). Уменьшение электросопротивления с увеличением приложенного напряжения объясняется усилением спиновой поляризации с ростом тока: чем больше спин-поляризованных электронов проникает из нанокластеров $MnAs$ в матрицу Cd_3As_2 , тем сильнее они поляризуют собственные электроны этой матрицы. В результате ток увеличивается, т. к. электроны не затрачивают энергию на переворот спина, как это происходит в том случае, когда направление спина не совпадает с вектором намагниченности соседних нанокластеров $MnAs$. В отсутствие спиновой поляризации носителей в исследованном образце ток пропорционален приложенному напряжению и выполняется закон Ома – электросопротивление постоянно.

Однако, как оказалось, электросопротивление образца зависит от приложенного напряжения (рис. 6). В состоянии кластерного стекла при $T < T_{cg}$ сопротивление падает нелинейно. При этом его относительное изменение при 172 К значительно выше, чем при азотной температуре, а именно, в 2.2 и 1.3 раза. То, что начало зависимости при 172 К выше, чем начало зависимости при 77 К, объясняется металлическим характером проводимости нанокompозита в состоянии кластерного стекла $T < T_{cg}$. При $T > T_{cg}$ (272 и 372 К) электросопротивление линейно падает с напряжением, причем с почти одинаковым угловым коэффициентом.

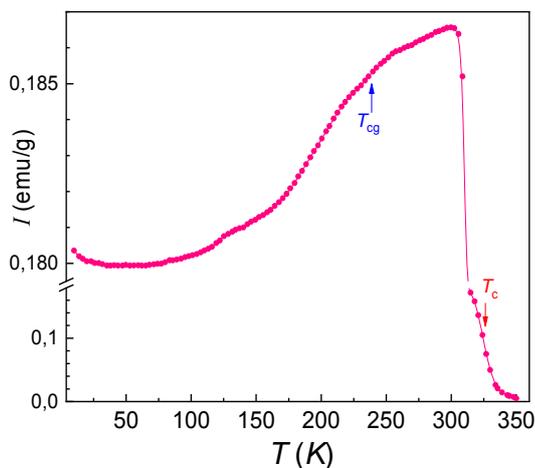


Рис. 5. Температурная зависимость удельной намагниченности $Cd_3As_2+44.7\% MnAs$

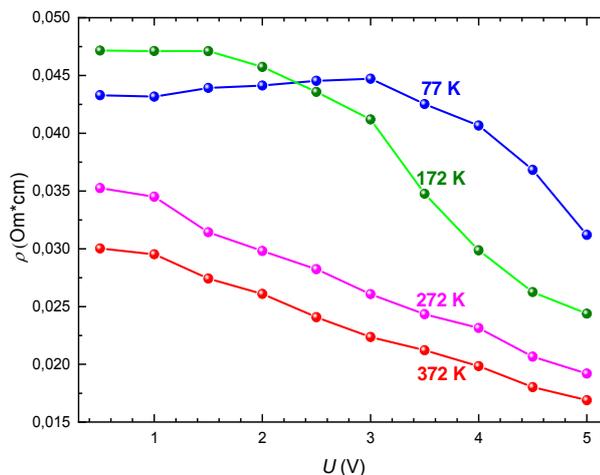


Рис. 6. Изотермы зависимости электропроводности от напряжения в ферромагнитном и парамагнитном состояниях

При температурах выше T_{cg} начинает проявляться температурное разупорядочение векторов намагниченности нанокластеров $MnAs$, поэтому спиновая поляризация проявляется слабее. Поведение электропроводности в этих условиях однозначно сменяется на полупроводниковое, т. е. с ростом температуры абсолютные значения сопротивления понижаются.

Отдельного рассмотрения заслуживает изотермическая зависимость электропроводности от напряжения при 372 К, поскольку значительная доля нанокластеров $MnAs$ в матрице Cd_3As_2 уже перешла в парамагнитное состояние, так как температура Кюри $T_C = 325$ К. Тем не менее, как оказалось, и в этом случае имеет место влияние спиновой поляризации. Возможно, что такое поведение обусловлено пребыванием некоторого количества нанокластеров $MnAs$ в ферромагнитном состоянии и выше точки Кюри, как это наблюдалось в манганитах [4].

Действительно, как видно из рисунков 5 и 6, даже при $T > 325$ К имеется некоторая, отличная от нуля намагниченность, которая увеличивается и сохраняется даже до температур выше 372 К благодаря спин-поляризованному току, наведенному внешним электрическим полем. Кроме того, мезоскопические ферромагнитные состояния могут существовать и в парамагнитном состоянии значительно выше точки Кюри из-за наличия термодинамических флуктуаций и мезоскопических структурных неоднородностей. Такое поведение присуще комплексным соединениям переходных элементов: тройным сплавам, к которым относится и $Cd_3As_2+44.7$ мол.% $MnAs$; тройным оксидам – манганитам; никелатам; кобальтитами и т. п. Что касается влияния «материнской породы» на содержащиеся в ней ферромагнитные включения, заметим, что T_C для $MnAs$ внутри Cd_3As_2 составляет 325 К, тогда как для $MnAs$ в свободном виде точка Кюри – 318 К [5, 6]. Другими словами, за счет всестороннего сжатия нанокластеров $MnAs$ в матрице Cd_3As_2 температура Кюри в них повышается на ~ 7 К. Это дает дополнительное технологическое преимущество в использовании наноконкомпозитов, заключающееся в том, что подбором соответствующей матрицы можно управлять их магнитными характеристиками.

Возможно также, что и сама матрица Cd_3As_2 проявляет магнитные свойства. С этой точки зрения наши результаты согласуются с тем, что в некоторых композитах на

основе Cd_3As_2 достоверно установлено наличие двойного обмена и соответствующего ферромагнитного поведения [7]. Спин-поляризованный ток наблюдался в магнитных сэндвич-структурах [3, 8–10], состоящих из слоев магнитного и немагнитного материалов примерно той же толщины, что и расстояние между кластерами MnAs.

На рисунке 1 видно, что как размеры кластеров, так и средние расстояния между ними примерно одинаковы – 0–40 нм. Эти исследования подтверждают приведенное нами объяснение поведения электросопротивления в нанокompозите $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% MnAs спиновой поляризацией делокализованных электронов из нанокластеров MnAs собственными носителями тока в зоне проводимости Cd_3As_2 .

Заключение

Проведены исследования вольт-амперных характеристик нанокompозита $Cd_3As_2 + 44.7$ мол.% MnAs при различных температурах, температурных зависимостях электросопротивления, удельной намагниченности, рассчитаны изотермы электросопротивления в ферромагнитном и парамагнитном состояниях. Приведена интерпретация аномального понижения электросопротивления этого композита в зависимости от приложенного напряжения как следствие возникновения спин-поляризованного тока – спиновой поляризации делокализованных электронов из нанокластеров MnAs собственными носителями заряда в зоне проводимости Cd_3As_2 . Объяснение эффекта спиновой поляризации электрического тока в этом нанокompозите невозможно в рамках модели обменного взаимодействия РККИ, поскольку у Cd_3As_2 низкая концентрация электронов, особенно при низких температурах.

Литература

1. Глазков В.П., Козленко Д.П., Подурец К.М. и др. Нейтронографические исследования атомной и магнитной структуры MnAs при высоких давлениях // Кристаллография. – 2003. – Т. 48, № 1. – С. 59–62.
2. Choi S. et al. Switching Magnetism and Superconductivity with Spin-Polarized Current in Iron-Based Superconductor // Phys. Rev. Lett. – 2017. – № 119. – P. 227001.
3. Myers E.B., Ralph D.C., Katine J.A., Louie R.N. and Buhrman R.A. Current-Induced Switching of Domains in Magnetic Multilayer Devices // Science. – 1999. – № 285. – P. 867.
4. Matveev V.V., Ylinen E., Zakhvalinskii V.S. and Laiho R. ^{139}La NMR detection of ferromagnetic clusters far above the Curie temperature in $La_{0.7}Ca_{0.3}Fe_{0.09}Mn_{0.91}O_3$ spin-glass manganite // J. Phys.: Cond. Matt. – 2007. – № 19. – P. 226209.
5. Ney T. Hesjedal and Ploog K.H. Competing magnetic interactions in MnAs studied via thin film domain pattern analysis // Phys. Rev. B. – 2005. – № 72. – P. 212412.
6. Куммель Ч. Введение в физику твердого тела. – М.: Мир, 1978.
7. Маренкин С.Ф., Трухан В.М., Федорченко И.В. Магнитные и электрические свойства композита $Cd_3As_2 + MnAs$ // ЖНХ. – 2014. – № 59. – P. 511.
8. Asamitsu A., Tomioka Y., Kuwahara H., Tokura Y. Current switching of resistive states in magnetoresistive manganites // Natur. – 1997. – № 388. – P. 50.
9. Thomas L. et al. Resonant Amplification of Magnetic Domain-Wall Motion by a Train of Current Pulses // Science. – 2007. – № 315. – P. 5818.
10. Choi S. et al. Switching Magnetism and Superconductivity with Spin-Polarized Current in Iron-Based Superconductor // Phys. Rev. Lett. – 2017. – № 119. – P. 227001.

Поступила в редакцию 10 июня 2019 г.

UDC 537; 538.9; 53.097

DOI: 10.21779/2542-0321-2019-34-3-22–29

The effect of temperature on the current-voltage characteristics of $Cd_3As_2 + MnAs$

*L.A. Saypulaeva¹, Sh. B. Abdulvagidov¹, M.M. Gadzhialiev¹, A.G. Alibekov¹,
N.V. Melnikova², V.S. Zakhvalinsky³, S.F. Marenkin⁴, Z.Sh. Pirmagomedov¹*

¹*Institute of Physics, Dagestan Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences; Russia; 367015, Makhachkala, M. Yaragskiy st., 94; luizasa11@mail.ru;*

²*Institute of Natural Science, Ural Federal University; Russia; 620002, Ekaterinburg; Lenin Avenue, 51;*

³*Belgorod State National Research University; Russia, 308013, Belgorod, Pobedy st., 85;*

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

The electrical resistivity $Cd_3As_2+44.7$ mol.% $MnAs$ emerges from the spin-polarizing of the electric current of the Cd_3As_2 impurity electrons by the electrons injected from the $MnAs$ nanoclusters. Angles between the nanocluster magnetization vectors decrease with the magnetization of the all sample and the spin-polarized electric current increases. In addition, the growth of impurity-carriers concentrations leads to increasing the spin-polarized current which is confirmed by the results of the study of the current-voltage characteristics (VAC), where a deviation from the ohmicity was observed, increasing with the voltage. This implies that the higher electric current is, the more the matrix in the spin polarization is. It happens due to the injection of the spin-polarized electrons from $MnAs$ nanoclusters into Cd_3As_2 . We have firstly observed the described behavior in a bulk nanocomposite with nano-sized ferromagnetic inclusions. Nanocomposite was synthesized by a relatively cheap method, compared with heterostructures made up of ferromagnetic and semiconductor layers, where a similar phenomenon was discovered earlier.

Keywords: *nanocluster, voltage-current chart, spin-polarized current, temperature, electrical resistance.*

Received 10 June, 2019