

PACS: 73.63.Rt

Д.В. Варюхин, В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, В.И. Вальков,  
А.В. Головчан, А.В. Подлесный

## РЕЗИСТИВНЫЕ АНОМАЛИИ И ТОКОВАЯ СТИМУЛЯЦИЯ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В КОНТАКТАХ Nb–Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины  
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина

*Экспериментально исследованы вольтамперные характеристики (ВАХ) сплава Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>. Обнаружено, что в этом материале, как и в манганитах, наряду с магниторезистивными эффектами наблюдаются эффекты переключения из низко- в высокоомное состояние и обратно под действием тока. Эти эффекты наблюдаются на наноконтакте Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.55</sub>As<sub>0.5</sub> в температурной области стабильности низкоомной ферромагнитной фазы (T = 77 К), сопровождаются значительным гистерезисом ВАХ и могут квалифицироваться как обратимые токоиндуцированные переходы первого рода. Показано, что необходимым условием токоиндуцированного перехода с гистерезисом ВАХ является присутствие значительной резистивной аномалии при спонтанных переходах в магнитоупорядоченную фазу.*

### Введение

Пниктиды 3-d-переходных металлов и, в частности, сплавы системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> с гексагональной кристаллической структурой типа Fe<sub>2</sub>P (группа симметрии типа  $\bar{P}62m$ ) обладают рядом свойств, которые позволяют в перспективе, с одной стороны, использовать их в качестве рабочих материалов для магнитных рефрижераторов, с другой – рассматривать как модельные объекты для фундаментальных исследований в области физики магнитоупорядоченных структур. Вопросы прикладного применения касаются улучшения ряда характеристик этих материалов, связанных с индуцированием магнитным полем фазовых переходов первого рода со значительным магнитокалорическим эффектом. Устойчивость и механизмы возникновения различных типов магнитоупорядоченных фаз при воздействии сильных магнитных и электрических полей, а также магниторезистивные свойства можно относить к вопросам фундаментального характера. Этой стороне исследований и посвящена настоящая статья, в которой экспериментально изучаются процессы токовой стимуляции магнитных фазовых переходов первого рода в сплавах Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>.

### Экспериментальные методики, образцы для исследования

В данной работе основные экспериментальные результаты получены путем исследования ВАХ наноконтактов пниктидов системы  $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$  с Nb, а также температурных зависимостей электросопротивления  $R$  и начальной магнитной восприимчивости  $\chi$  пниктидов.

Для запитки контактов током в первой методике использовали ниобиевую иглу толщиной 5  $\mu m$ . Кончик иглы касался поверхности образца с дозированным усилием. Наноконтакты имели омический характер проводимости и диаметр  $\sim 10 \text{ \AA}$ , что обеспечивало локализацию приложенного потенциала непосредственно в приконтактной области. Электросопротивление определяли стандартным четырехзондовым методом, а начальную магнитную восприимчивость измеряли с помощью магнитометра, описанного в работе [1], в режиме подключения соленоида к генератору звуковых сигналов.

Согласно фазовой диаграмме, приведенной в работе [1], в зависимости от содержания железа  $x$  в системе  $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$  реализуются четыре группы соединений, отличающихся фазовым поведением и магнитным упорядочением при низких температурах. При  $x = 0.5-0.6$  реализуется антиферромагнитное (АФ) упорядочение (группа АФ), которое сменяется парамагнитным (ПМ) состоянием в области температур 150 К. Магнитная структура образцов с  $x = 0.6-0.8$  рассматривается авторами работы как сосуществование периодической антиферромагнитной и однородной ферромагнитной (ФМ) компонент полного магнитного момента кристаллохимической ячейки. Причем образцы с  $x = 0.6-0.7$  при нагревании переходят в ПМ-фазу через промежуточное АФ-состояние (группа (АФ + ФМ)<sub>1</sub>), в то время как образцы с  $x = 0.7-0.8$  – непосредственно в ПМ-состояние (группа (АФ + ФМ)<sub>2</sub>). И, наконец, образцы с  $x > 0.8$  упорядочены ферромагнитно и переходят в ПМ-состояние при температурах  $\sim 160-260$  К (группа ФМ). Учитывая это, в работе были использованы образцы, типичные для различных групп, в поликристаллическом виде.

### Результаты исследований

На рис. 1,а представлена ВАХ контакта Nb с образцом с  $x = 0.7$  (группа (АФ + ФМ)<sub>2</sub>), полученная при температуре  $T = 77$  К. К основным особенностям этой ВАХ можно отнести наличие полярного гистерезиса по напряжению и возникновение необратимого в пределах одной полярности перехода в высокоомное состояние. Действительно, согласно рис. 1 линейное нарастание тока, соответствующее выполнению закона Ома ( $dV/dI = R_l \sim 66 \text{ \Omega}$ ), происходит до тех пор, пока напряжение не достигнет критического значения  $V_{k1} \sim 0.7$  В. Начиная с него, величина тока резко уменьшается, и при  $V_{k2} \sim 0.8$  В величина  $dV/dI$  достигает нового стабильного значения  $R_h \sim 890 \text{ \Omega}$ , которое сохраняется постоянным вплоть до  $V \sim -V_{k2}$ . При этом напряжении происходит восстановление низкоомного состояния. Аналогичное явление

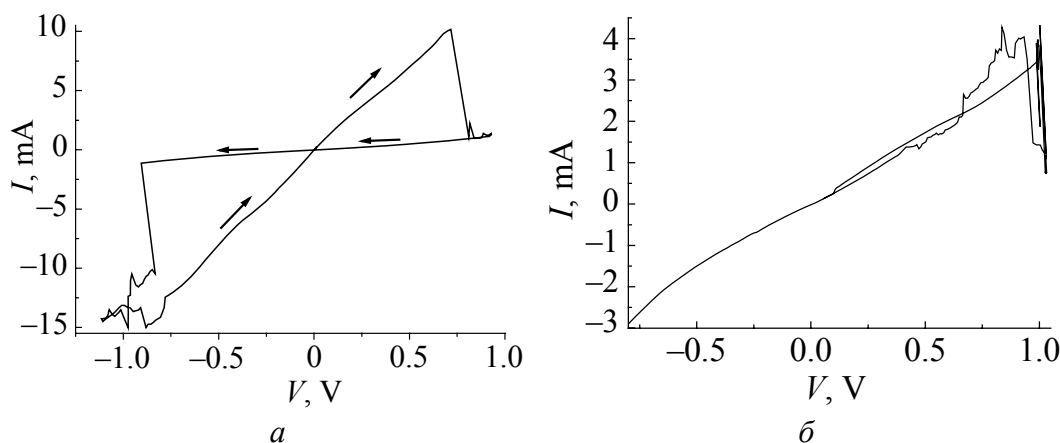


Рис. 1. ВАХ контактов Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> (а) и Nb–Mn<sub>1.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> (б) при  $T = 77$  К

наблюдалось ранее в наноконтактах с манганитом La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> [2] и получило название токовой стимуляции фазового перехода в контактах. На рис. 1,б приведена ВАХ контакта Nb с образцом с  $x = 0.5$  (группа АФ), где гистерезис не наблюдается.

Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости  $\chi$ , совмещенные с зависимостями сопротивления  $R(T)$  образцов системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>, представлены на рис. 2. Из рисунка следует, что маг-

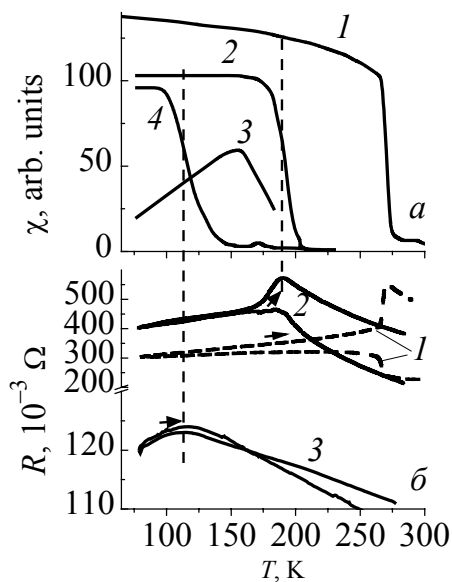


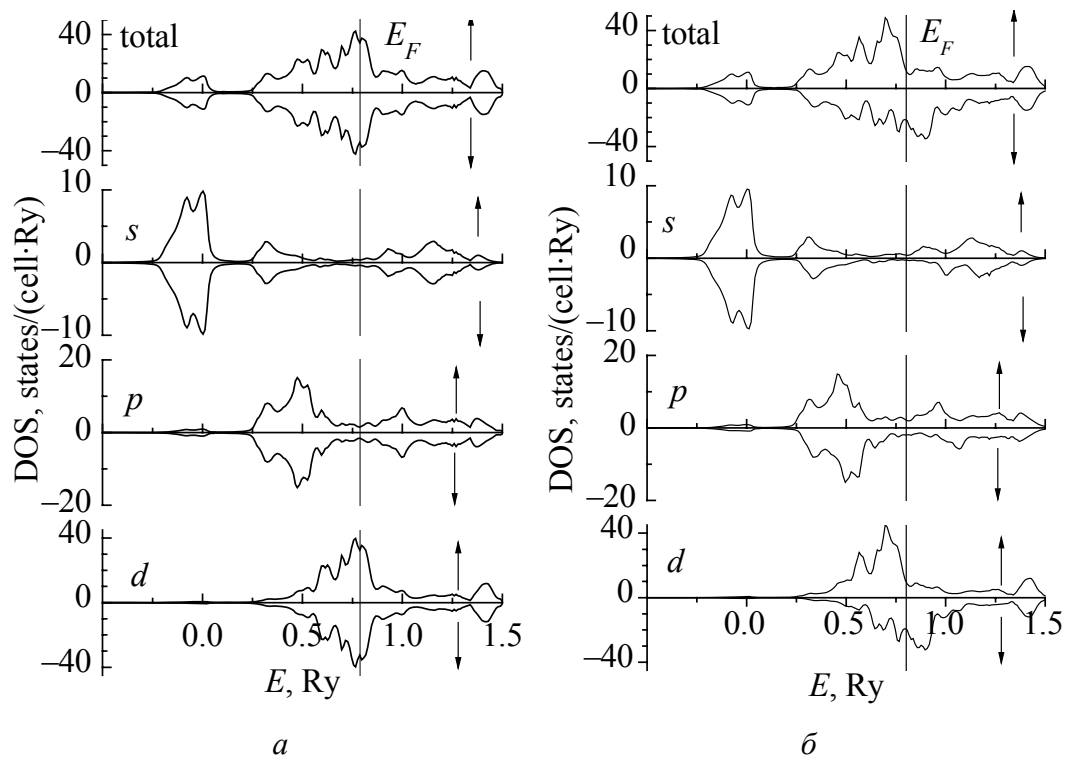
Рис. 2. Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости (а) и сопротивления (б) некоторых массивных образцов системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>: 1 – 0.9, 2 – 0.7, 3 – 0.6, 4 – 0.5

нитные фазовые переходы по температуре сопровождаются аномалиями на кривых  $R(T)$ , будь-то переходы порядок–порядок (АФ + ФМ)<sub>1</sub>–АФ ( $x = 0.6, 0.7$ ) или переходы порядок–беспорядок ФМ–ПМ ( $x = 0.9$ ). Понижение величины намагниченности насыщения низкотемпературной фазы по мере уменьшения концентрации железа приводит к сглаживанию резистивных особенностей на зависимостях  $R(T)$ , сопровождающих фазовые переходы. Например, резистивная аномалия в области перехода в фазу сосуществования для образца с  $x = 0.6$  выполаживается, а переход парамагнетизм–антиферромагнетизм для  $x = 0.5$  сопровождается только аномалией магнитной восприимчивости вблизи температуры Нееля (рис. 2) без каких-либо заметных резистивных особенностей. Из

сравнения рис. 1 и 2 становится очевидным, что качественное различие ВАХ для образцов с  $x = 0.7$  и  $x = 0.5$  связано с различием их магнитного и резистивного поведения. Токовая стимуляция перехода в низкоомное состояние проявляется в образце, где магнитная восприимчивость высока, а аномалия на зависимости  $R(T)$  ярко выражена и отсутствует в противном случае.

### Обсуждение результатов

Обнаруженные в данной работе резистивные аномалии в области температур магнитных фазовых превращений в образцах системы  $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$  могут быть обусловлены особенностями состояний  $d$ -электронов, которые не только ответственны за магнетизм в этих соединениях, но и являются носителями электрического тока в них. Такая точка зрения согласуется с результатами *ab initio* расчетов электронной энергетической структуры, проведенных в работе [1]. Для примера на рис. 3 показаны парциальные и полная плотности электронных состояний в  $MnFeP_{0.5}As_{0.5}$  для случая, когда подзоны с различной ориентацией спинов заполнены симметрично, что соответствует немагнитному (НМ) либо ФМ-состоянию образца (рис. 3,а), а также для ФМ-состояния (рис. 3,б).



**Рис. 3.** Типичные для системы  $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$  немагнитная (а) и спин-поляризованная ферромагнитная (б) плотности электронных состояний образца  $MnFeP_{0.5}As_{0.5}$  при  $a = 6.1243 \text{ \AA}$ ,  $c = 3.4765 \text{ \AA}$ . Стрелочки показывают направление спинов в соответствующих подзонах

Из сравнения рис. 3,а и б следует, что плотность электронов вблизи уровня Ферми  $E_F$ , которая определяет проводимость системы, в НМ-состоянии существенно выше, чем в ФМ-состоянии. Поэтому следует ожидать, что при переходе из ПМ- в ФМ-состояние сопротивление будет увеличиваться. Отсутствие сильных резистивных аномалий при возникновении АФ-порядка указывает на сохранение числа носителей тока в АФ- и ПМ-фазах. Это может быть следствием того, что магнитоактивная  $d$ -зона заполнена более чем наполовину.

Действительно, как показано в [1], возникновение АФ-состояния в коллективизированной системе электронов сопровождается появлением щели или провала на симметричной по спину плотности электронных состояний. Положение провала по отношению к энергии Ферми определяется степенью заполнения магнитоактивной зоны. В случае более чем половинного заполнения провал на плотности состояний в АФ-фазе находится ниже энергии Ферми. Тогда возникновение АФ-фазы не приводит к существенному изменению заселенности прифермиевских состояний по сравнению с ПМ-фазой. Поэтому температурные резистивные изменения при переходе ПМ–АФ определяются в основном рассеянием носителей тока на флуктуациях спиновой плотности и являются несущественными, что и наблюдается экспериментально.

Если взаимосвязанные изменения различных свойств довольно часто встречаются в сильно коррелированных системах и их конкретные механизмы в различной степени ясны, то индуцированные током переходы в высокоомное состояние открыты недавно и причины их возникновения далеки от понимания. Аналогичные явления переключения из низко- в высокоомное состояние под действием тока, наблюдавшиеся в контактах с манганитами [2], объяснялись моделью мартенсита – неравновесной метастабильной фазой, возникающей в результате бездиффузионного смещения атомов кислорода в октаэдрах  $MnO_6$  в приповерхностном слое образца при инжекции тока большой плотности.

В исследованных пниктидах внутренний кислород отсутствует, и за токо-стимулированный переход могут отвечать ионы As и P. Запирающий слой также может образовываться благодаря кислороду, который провзаимодействовал с поверхностью образца. Но вполне возможно, что инжекция электронов не только приводит к образованию неравновесного состояния в приконтактной области образца, но и с большой вероятностью изменяет число электронов в магнитоактивной зоне поверхностных слоев. Это согласно *ab initio* расчетам кардинальным образом изменяет стабильность магнитоупорядоченных фаз и по своему эффекту равносильно изменению концентрации железа в системе  $Mn_{2-x}Fe_xP_{0.5}As_{0.5}$  [1].

Совместное действие указанных механизмов может привести к переходу приповерхностной области в новое магнитно-кристаллическое состояние с плохой проводимостью, в котором в результате окисления поверхности об-

разуется дефицит ионов Fe или Mn. В таком случае прохождение тока через контакт может сопровождаться диффузией анионов, накоплением запирающего потенциала для носителей тока и приводить к переключению электросопротивления контакта. К сожалению, устойчивость таких материалов к коррозии практически не изучена. Тем более трудно сказать что-либо о поведении тончайших поверхностных слоев, поскольку даже резистивные измерения таких объектов проводились редко. А для скачкообразного гистерезиса ВАХ микроконтакта достаточно того, чтобы в высокоомное состояние перешел слой толщиной в несколько десятков ангстрем. Образование такого слоя вполне реально при ускоренной диффузии анионов.

Однако, несмотря на гипотетичность высказанных предположений о причинах аномалии ВАХ контакта Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>, предварительные исследования ВАХ на контакте Nb–Mn<sub>1.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> уже позволяют высказать некоторые необходимые условия возникновения токостимулированных переходов в пниктидах системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>. Действительно, отсутствие скачкообразного гистерезиса ВАХ микроконтакта Nb–Mn<sub>1.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> коррелирует с отсутствием заметной резистивной аномалии в Mn<sub>1.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> при переходе ПМ–АФ. Это означает, что механизм возникновения токостимулированных переходов в пниктидах системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> реализуется только в том случае, если спонтанные магнитные фазовые переходы сопровождаются значительной магниторезистивной аномалией.

### Выводы

В контактах Nb с пниктидами системы Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> обнаружен токостимулированный фазовый переход из низко- в высокоомное состояние под действием тока. Обнаружена также корреляция между изменением магнитных и электрических свойств пниктидов при фазовых переходах и высказано условие реализации токостимулированного изменения электросопротивления, которое состоит в том, что токостимулированный переход в пниктидах происходит только в случаях, когда спонтанные магнитные переходы сопровождаются значительной аномалией температурной зависимости электросопротивления. Предпринята попытка связать экспериментально обнаруженные явления с результатами *ab initio* расчетов электронной энергетической структуры пниктидов в различных фазовых состояниях.

Работа выполнена в рамках конкурсного проекта ДФФД-БРФФД № 29.1/016.

1. В.И. Вальков, Д.В. Варюхин, А.В. Головчан, И.Ф. Грибанов, А.П. Сиваченко, В.И. Каменев, Б.И. Годрис, ФНТ **34**, 927 (2008).
2. А.И. Дьяченко, Д.И. Бойченко, В.Ю. Таренков, ФТВД **18**, № 1, 25 (2008).

*Д.В. Варюхін, В.Ю. Таренков, О.І. Дьяченко, В.І. Вальков, О.В. Головчан,  
О.В. Підлісний*

## РЕЗИСТИВНІ АНОМАЛІЇ І СТРУМОВА СТИМУЛЯЦІЯ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ У КОНТАКТАХ Nb–Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>

Експериментально досліджено вольтамперні характеристики (ВАХ) сплаву Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>. Виявлено, що в цьому матеріалі, як і в манганітах, поряд з магніторезистивними ефектами спостерігаються ефекти перемикування з низько- у високоомний стан і зворотно під дією електричного струму. Ці ефекти спостерігаються у наноконтакті Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> при температурі стабільності низькоомної феромагнітної фази ( $T = 77$  К), супроводжуються значним гістерезисом ВАХ і можуть кваліфікуватися як оборотні струмостимульовані переходи першого роду. Показано, що необхідною умовою струмостимульованого переходу з гістерезисом ВАХ є присутність значної резистивної аномалії при спонтанних переходах у магнітовпорядковану фазу.

*D.V. Varyukhin, V.Yu. Tarenkov, A.I. Dyachenko, V.I. Val'kov, A.V. Golovchan,  
A.V. Podlesny*

## RESISTIVE ANOMALIES AND CURRENT STIMULATION PHASE TRANSITION IN JUNCTIONS Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub>

The current-voltage characteristics (CVC) of the Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> alloy have been investigated. It has been determined that in this material, the same as in manganites, there are, alongside with magnetoresistive effects, the effects of low – to high-ohmic state switching and vice versa induced by current. The effects are observed at nanojunction Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> in the temperature range of the low-ohmic ferromagnetic phase stability ( $T = 77$  K), they are accompanied by a sizable CVC hysteresis and may be classified as reversible current-stimulated first-order transitions. It is shown that the presence of high resistive anomaly under spontaneous transitions to magnetically ordered phase is a necessary condition for the current-stimulated transition with CVC hysteresis.

**Fig. 1.** CVC of Nb–Mn<sub>1.3</sub>Fe<sub>0.7</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> (a) and Nb–Mn<sub>1.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> (b) junctions for  $T = 77$  K

**Fig. 2.** Temperature dependences of initial magnetic susceptibility (a) and resistance (b) of some bulk samples of the Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> system: 1 – 0.9, 2 – 0.7, 3 – 0.6, 4 – 0.5

**Fig. 3.** Nonmagnetic (a) and spin-polarization ferromagnetic (b) densities of MnFeP<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> electronic states, typical of the Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>x</sub>P<sub>0.5</sub>As<sub>0.5</sub> system, for  $a = 6.1243$  Å,  $c = 3.4765$  Å. The arrows show directions of spins in corresponding subbands