Письма в ЖЭТФ, том 118, вып. 12, с. 902 – 907 © 2023 г. 25 декабря

Транспортные свойства семейства магнитных топологических изоляторов $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ $(m = 0, 1, ..., 6)$

В. Н. Зверев[a 1)], *Н. А. Абдуллаев*[b,c], *З. С. Алиев*[c], *И. Р. Амирасланов*[b,c], *М. М. Отроков*[d,e], *Н. Т. Мамедов*[b,c], *Е. В. Чулков*[f,g]

[a] *Институт физики твердого тела им. Ю. А. Осипьяна РАН, 142432 Черноголовка, Россия*

[b] *Институт физики Министерства науки и образовния Азербайджана, AZ1143 Баку, Азербайджан*

[c] *Бакинский государственный университет, AZ1148 Баку, Азербайджан*

[d] *Centro de Fisica de Materiales (CFM-MPC), Centro Mixto CSIC-UPV/EHU, 20018 Donostia-San Sebastian, Spain*

[e] *IKERBASQUE, Basque Foundation for Science, 48009 Bilbao, Spain*

[f] *Departamento de Polímeros y Materiales Avanzados: Física, Química y Tecnología, Facultad de Ciencias Químicas, Universidad del País Vasco UPV/EHU, 20080 Donostia-San Sebastián, Spain*

[g] *Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 25 октября 2023 г.
После переработки 14 ноября 2023 г.
Принята к публикации 14 ноября 2023 г.

Проведены систематические исследования магнитотранспортных свойств магнитных топологических изоляторов семейства $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ с $m = 0, 1, ..., 6$. Исследованы температурные зависимости удельного сопротивления, магнитосопротивление и эффект Холла при низких температурах. При увеличении m, т.е. когда расстояние между двумерными магнитными слоями $MnBi_2Te_4$ увеличивается, происходит переход от антиферромагнитного к ферромагнитному состоянию, обусловленный ослаблением антиферромагнитной связи. Установлено, что ферромагнитное состояние "выживает" даже в образцах с $m = 6$, когда слои $MnBi_2Te_4$ разделены шестью немагнитными блоками Bi_2Te_3.

DOI: 10.31857/S1234567823240060, EDN: nltvkh

После открытия [1–5] нового антиферромагнитного (АФМ) топологического изолятора (ТИ) $MnBi_2Te_4$ было изучено большое семейство собственных магнитных ТИ в гомологических соединениях $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ [6–11]. Речь идет о слоистых кристаллах, состоящих из 2D ферромагнитных (ФМ) семислойных двумерных блоков $MnBi_2Te_4$ при $m = 0$ и периодического набора семислойных и m немагнитных пятислойных блоков Bi_2Te_3 при $m > 0$. Магнитные и электронные транспортные свойства этих материалов сильно зависят от значения m, что делает их легко управляемыми. В то время, как работы [1, 2, 6], помимо теоретических расчетов, основывались в основном на экспериментальных исследованиях электронной структуры поверхности (ARPES) и объемного магнетизма (магнитометрия) при $m = 0, 1, ..., 4$, другие исследования относились к магнитотранспортным свойствам образцов с $m = 0, 1, ..., 3$: $MnBi_2Te_4$ [11–14], $MnBi_4Te_7$ [14, 15], $MnBi_6Te_{10}$ [14, 15], $MnBi_8Te_{13}$ [16]. Однако, насколько нам известно, исследования магнитотранспорта всего семейства $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ в широком диапазоне значений m [7, 11, 17] до сих пор отсутствуют. Здесь мы впервые представляем систематические исследования магнитотранспортных свойств этого семейства с $m = 0, 1, ..., 6$, а именно, температурных зависимостей удельного сопротивления $\rho(T)$, магнитосопротивления $\rho_{xx}(H)$ и эффекта Холла $\rho_{xy}(H)$ при низких температурах.

Транспортные и магнитотранспортные свойства изучались на образцах $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$, полученных скалыванием из слитка, выращенного методом кристаллизации из расплава. Образцы были отобраны и охарактеризованы методами рентгеновской дифракции и рамановского рассеяния при комнатной температуре, результаты этих исследований были опубликованы ранее [8, 11, 17]. Характерный размер образцов составлял примерно $2 \times 1 \times 0.1\,мм^3$. Контакты были приготовлены с помощью проводя-

[1)] e-mail: zverev@issp.ac.ru

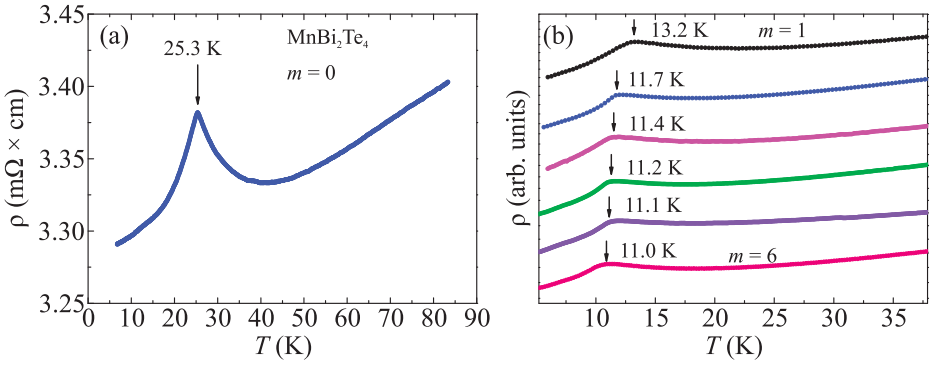

Рис. 1. (Color online) Температурные зависимости удельного сопротивления $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ для $m = 0, 1, ..., 6$. Кривые на рис. 1b сдвинуты по вертикальной шкале для более удобного представления, величина m растет сверху вниз от 1 до 6

щей графитовой пасты. Образцы монтировались во вставку, позволяющую работать в широком диапазоне температур (1.4–300) K, погруженную в криостат с жидким гелием со сверхпроводящим соленоидом. Поле всегда было ориентировано перпендикулярно плоскости образца. Измерения сопротивления проводились с использованием синхронного детектора по стандартной четырехзондовой методике на переменном токе частотой 20 Гц.

Температурная зависимость удельного сопротивления образца $MnBi_2Te_4$ представлена на рис. 1a. Этот образец состоит только из семислойных блоков, т.е. соответствует случаю $m = 0$. На $\rho(T)$ наблюдается острый пик при температуре Нееля $T_N = 25.3$ K, обусловленный антиферромагнитным упорядочением семислойных блоков. На рис. 1b показано, как температура магнитного упорядочения зависит от количества m пятислойных блоков в кристалле. При $m = 1$ критическая температура падает до 13.2 K, затем она монотонно снижается, насыщаясь примерно до 11 K при $m \geq 4$. Мы обнаружили, что критическая температура перехода для образцов с одним и тем же значением m может несколько отличаться в зависимости от качества образца. На рисунке 1 представлены кривые, полученные на наших образцах с самой высокой температурой перехода.

Приложение магнитного поля сдвигает пик на сопротивлении и, в конце-концов, сглаживает эту особенность. В $MnBi_2Te_4$ T_N уменьшается с полем, а на образцах с $m \geq 1$ наблюдается обратный эффект. На рисунке 2 это явление продемонстрировано для образцов $MnBi_2Te_4$ и $MnBi_{14}Te_{22}$.

Наиболее интересную информацию о магнитных свойствах образцов можно получить из измерений эффекта Холла, так как этот эффект определяется полным полем $H_{\rm tot} = H + H_{\rm int}$ внутри образца, которое представляет собой сумму внешнего приложенного поля H и внутреннего поля $H_{\rm int}$, созданного слоями $MnBi_2Te_4$, которые являются 2D магнитами. Прежде всего, отметим, что в $MnBi_2Te_4$, как и во всем семействе $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$, основными носителями заряда являются электроны. Данные о концентрации и подвижности электронов в наших образцах приведены в Табл. 1. Как видно из таблицы, концентрация электронов довольно высока. При такой концентрации носителей мы измеряем объемные свойства, на фоне которых вклад от поверхностных топологически защищенных состояний пренебрежимо мал.

Эффект Холла в $MnBi_2Te_4$ при различных температурах представлен на рис. 3a. Видна резкая ступенька при $\mu_0 H_{\rm SF} \approx 4$ Тл на зависимости холловского сопротивления от поля, обусловленная индуцированным полем спин-флоп переходом [18]. При $H \geq H_{\rm SF}$ все семислойные блоки, имеющие антипараллельную ориентацию спинов в малом поле, резко переориентируются в скошенное АФМ состояние [19], в котором не лежащие в плоскости слоев компоненты намагниченности параллельны внешнему полю, а компоненты, лежащие в плоскости, антипараллельны друг другу. Выше $H_{\rm SF}$ скошенное АФМ состояние плавно эволюционирует в ФМ состояние [18] и, как следствие, полное поле $H_{\rm tot}$ увеличивается. С повышением температуры ступенька смещается в сторону меньших полей и резкость ее уменьшается, а при $T > T_N$ этот эффект исчезает. Индуцированный полем спин-флоп переход может быть зарегистрирован и в магнитосопротивлении образца, как это показано на рис. 3b. Из величины ступеньки на зависимости $\rho_{xy}(H)$ можно оценить величину $H_{\rm int}$, при 4.5 K значение $H_{\rm int}$ равно примерно 1.7 Тл. Представленные здесь данные холловских измерений согласуются с результатами транспортных измерений и намагниченности для $MnBi_2Te_4$ $(m = 0)$ [1, 20].

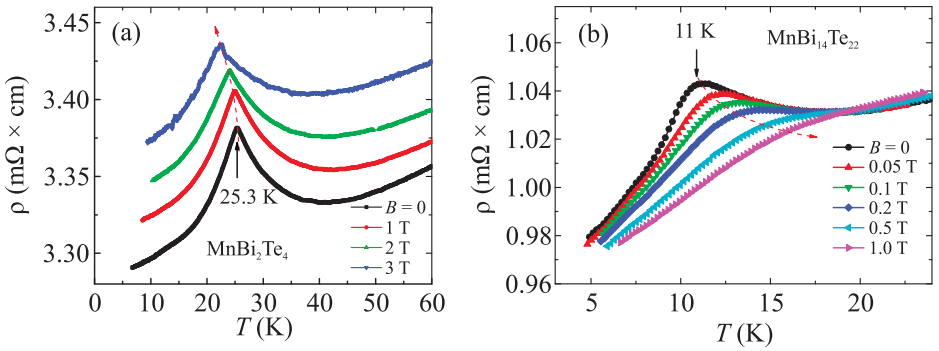

Рис. 2. (Цветной онлайн) Влияние внешнего магнитного поля на температуру магнитного фазового перехода для образцов $MnBi_2Te_4$ (a) и $MnBi_{14}Te_{22}$ (b). Красная пунктирная стрелка показывает смещение максимума с увеличением магнитного пол.

Таблица 1. Концентрация (в $см^{-3}$) и подвижность (в $см^2/В \cdot с$) электронов исследованного семейства $MnBi_2Te_4(Bi_2Te_3)_m$, полученные из холловских измерений при $T = 5$ K

$MnBi_2Te_4$	$MnBi_4Te_7$	$MnBi_6Te_{10}$	$MnBi_8Te_{13}$	$MnBi_{10}Te_{16}$	$MnBi_{12}Te_{19}$	$MnBi_{14}Te_{22}$
$6{\cdot}10^{19}$	$3.5{\cdot}10^{20}$	$3{\cdot}10^{20}$	$2{\cdot}10^{20}$	$3.1{\cdot}10^{20}$	$2.5{\cdot}10^{20}$	$1{\cdot}10^{20}$
40	40	100	160	350	130	200

Рассмотрим теперь холловские данные, полученные для $m > 0$ семейства $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$. Как следует из измерений температурных зависимостей восприимчивости, соединение $MnBi_4Te_7$ с $m = 1$ при $T_N \approx 13$ K испытывает фазовый переход парамагнетик–антиферромагнетик [6, 15]. Удивительно, что, хотя ниже T_N этот кристалл является, как и $MnBi_2Te_4$, антиферромагнетиком A-типа, зависимости $\rho_{xy}(H)$ этих двух систем демонстрируют существенные различия при низких температурах. Это видно из рис. 4, который иллюстрирует эффект Холла при разных температурах в образце $MnBi_4Te_7$. Во-первых, ниже T_N наблюдается характерный для ферромагнетика A-типа вид $\rho_{xy}(H)$, т.е. спин-флоп переход без гистерезиса при 10 и 7 K в поле 0.15 Тл, как на кривых на рис. 3a. Однако при более низких температурах спин-флоп переход начинает демонстрировать гистерезисное поведение. Наконец, при самой низкой температуре 1.4 K наблюдается петля гистерезиса и ненулевое холловское сопротивлением с остаточной намагниченностью. В работе [21] такое поведение интерпретировалось, как конкуренция между межслоевой обменной связью и зависимой от температуры эффективной анизотропией. Гистерезисная петля ФМ типа сигнализирует о доминировании эффективной анизотропии, которая обеспечивает возможность стабилизации остаточного полностью намагниченного (метамагнитного) состояния. Представленные здесь результаты холловских измерений для $MnBi_4Te_7$ согласуются с опубликованными в [10, 14, 22].

Очень похожие зависимости $\rho_{xy}(H)$ наблюдались и в образце $MnBi_6Te_{10}$, для которого $m = 2$. Но уже при $m \geq 3$ эффект Холла во всем диапазоне температур ниже температуры магнитного перехода соответствует ФМ состоянию, т.е. аномальный эффект Холла, характерный для ФМ образцов, наблюдается без каких-либо ступенек, характерных для АФМ-состояния. Это видно на рис. 5a, где представлена совокупность кривых $\rho_{xy}(H)$ при различных температурах для образца $MnBi_{10}Te_{16}$ с $m = 4$. Гистерезисные кривые магнитосопротивления для $\rho_{xx}(H)$ того же образца показаны на рис. 5b. Можно видеть, что это поведение резко отличается от представленного на рис. 3b и 4 для образцов с $m = 0$ и 1. При $m > 4$ мы также наблюдали аномальный эффект Холла даже в образце $MnBi_{16}Te_{22}$ с $m = 6$, а кривые $\rho_{xy}(H)$ были аналогичны наблюдаемым при $m = 4$.

Учитывая, что мы имеем дело с переходом АФМ-ФМ при увеличении m, влияние магнитного поля на температуру перехода (см. рис. 2a, b и текст) можно объяснить следующим образом. Когда к образцу $MnBi_2Te_4$ выше T_N прикладывается магнитное поле (рис. 2a), оно, как и температура, действует против межслоевого обменного взаимодействия. Как следствие, когда система приближается сверху к T_N, АФМ упорядочение включается при более низкой температуре по сравнению со случаем $H = 0$. При $m > 0$ межслоевое АФМ взаимодействие значительно ослабляется по сравнению с $MnBi_2Te_4$ [6], но магнитная анизотропия меняется слабо [23], так что характерная энергия второй доминирует над пер-

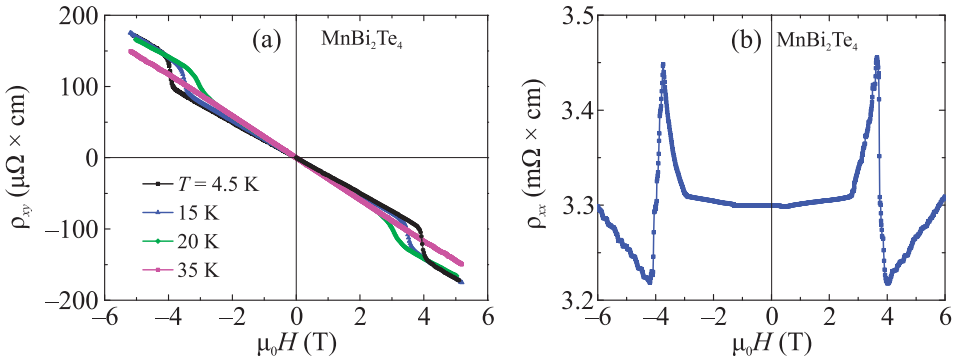

Рис. 3. (Цветной онлайн) Индуцированный полем спин-флоп переход в $MnBi_2Te_4$: (a) – эффект Холла $\rho_{xy}(H)$ при различных температурах; (b) – магнитосопротивление $\rho_{xx}(H)$ при 5 K

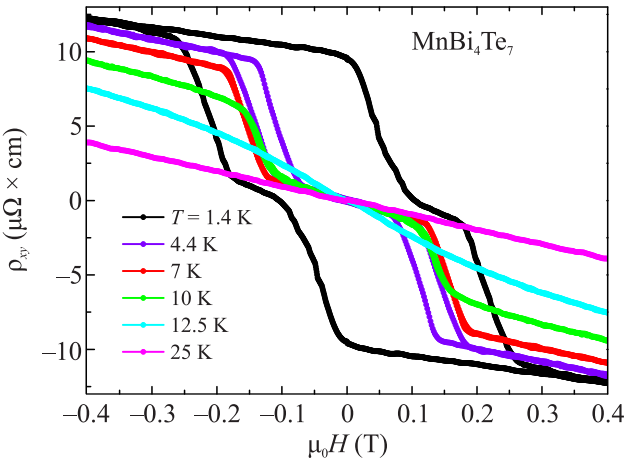

Рис. 4. (Цветной онлайн) ЭффектХолла в $MnBi_4Te_7$ при различных температурах

вой. Поэтому одноосная магнитная анизотропия и внешнее магнитное поле действуют совместно, подавляя возникновение АФМ упорядочения и стабилизируя ФМ состояние при более высокой температуре, как видно из рис. 2b для $MnBi_{14}Te_{22}$. (Данные для $MnBi_6Te_{10}$ доступны в [6]). В этом контексте следует отметить, что уже при $m = 1$, т.е. в $MnBi_4Te_7$, заметные 2D ФМ корреляции наблюдались выше критической температуры [24], несмотря на обменную АФМ связь между семислойными блоками.

Вообще говоря, трехмерное ФМ упорядочение должно быть потеряно при достаточно больших значениях m. Действительно, согласно *ab initio* вычислениям, выполненных для $m = 3$ ($MnBi_8Te_{13}$ и изоструктурное гипотетическое соединение $MnSb_8Te_{13}$), разница в общей энергии межслоевого взаимодействия АФМ и ФМ состояний пренебрежимо мала [24, 25]. Тем не менее, как следует из наших экспериментов, ФМ состояние "выживает" даже в образце с $m = 6$, что соответствует шести немагнитным Bi_2Te_3 слоям, расположенным между каждым магнитным слоем $MnBi_2Te_4$ в $MnBi_{14}Te_{22}$. Одно из возможных объяснений этого факта может быть следующим. Сравнительно высокая концентрация электронов 10^{20} см$^{-3}$ в наших образцах может привести к Ruderman–Kittel–Kasuya–Yosida (RKKY) обменному взаимодействию между слоями, как в сверхрешетке Fe/V, демонстрирующей неуниверсальное критическое поведение и высокое значение критического индекса, который снижается до своего универсального 2D значения при достаточно большой толщине ванадиевого спейсера [26]. Большая величина критического индекса 0.4 в $MnBi_8Te_{13}$ ($m = 3$), о которой сообщалось в [16], не может быть отнесена к какому-либо универсальному классу и, следовательно, благоприятствует такому предположению. В общем случае межслоевой RKKY обмен между магнитными слоями имеет осциллирующий характер, попеременно приводя к ФМ и АФМ упорядочению с положительным и отрицательным знаком константы обмена, соответственно. В нашем случае константа межслоевого RKKY обмена между атомами марганца, оцененная с использованием значений измеренной концентрации и расстояния Mn-Mn для каждого m имела положительный знак, что не противоречит наблюдаемому ФМ характеру фазовых переходов при $m \geq 3$. Однако, окончательные выводы пока делать рано. Магнитометрические измерения членов серии с большим m могут помочь прояснить ситуацию.

Как альтернатива, наблюдаемое ФМ состояние при $m = 6$ может быть результатом короткодействующего взаимодействия, возникающего из-за эффекта взаимного замещения Mn-Bi, как в некоторых образцах $MnBi_6Te_{10}$, демонстрирующих ФМ поведение при всех температурах ниже критической точки [27, 28].

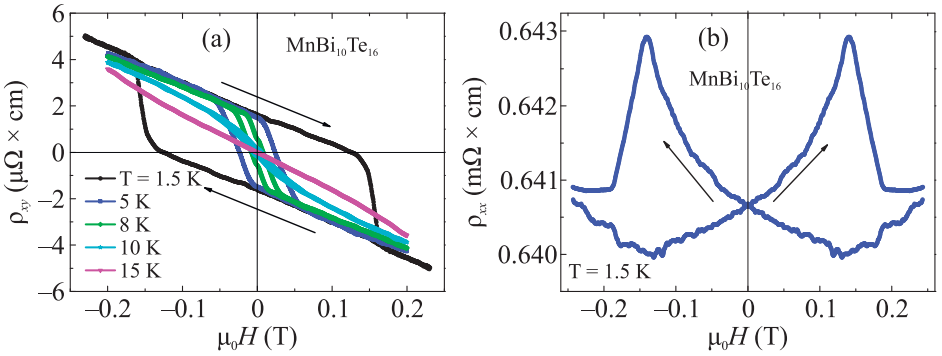

Рис. 5. (Цветной онлайн) Аномальный эффект Холла (a) и магнитосопротивление (b) в образце $MnBi_{10}Te_{16}$

Таким образом, впервые проведены систематические исследования магнитотранспортных свойств ТИ семейства $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$ с $m = 0, 1, ..., 6$. Кристаллы с $m = 0$ являются антиферромагнетиками А-типа с температурой Нееля $T_N = 25.3$ K. Соединения с $m = 1$ и 2 также являются антиферромагнетиками, однако значительное ослабление АФМ межслоевой обменной связи позволяет стабилизировать состояние с остаточной намагниченностью, близкой к таковой в насыщении, чего можно достигнуть путем постепенного ослабления внешнего магнитного поля вплоть до его полного выключения. Для $m > 2$ общее поведение сменяется на ферромагнитное. При этом магнитный переход на зависимости $\rho(T)$ с критической температурой 11 K, а также аномальный эффект Холла наблюдались даже при $m = 6$, где 2D-магниты разделены шестью немагнитными блоками, т.е. образцы по-прежнему демонстрируют ФМ поведение, несмотря на такое большое расстояние. Можно предположить, что при таких больших расстояниях между семислойными блоками межслоевая обменная связь RKKY типа может играть заметную роль благодаря относительно высоким концентрациям электронов в исследованных образцах. С другой стороны, имеющиеся в литературе данные указывают на то, что взаимное замещение атомов Mn и Bi является важным фактором, влияющим на межслоевую обменную связь в $(MnBi_2Te_4)(Bi_2Te_3)_m$. Для решения вопроса о причинах устойчивости ФМ упорядочения при $m \geq 3$ потребуются дальнейшие исследования.

Е. В. Чулков выражает благодарность поддержке Санкт-Петербургского госуниверситета (Проект # 94031444), Н. Т. Мамедов благодарит за поддержку Министерство науки и образования Азербайджана в рамках программы “Развитие технологии приготовления мультифункциональных Конверторов на основе наноструктур”.

1. M. M. Otrokov, I. I. Klimovskikh, H. Bentmann et al. (Collaboration), Nature **576**(19/26), 416 (2019).
2. Y. Gong, J. Guo, J. Li et al. (Collaboration), Chin. Phys. Lett. **36**, 076801 (2019).
3. D. Zhang, M. Shi, T. Zhu, D. Xing, H. Zhang, and J. Wang, Phys. Rev. Lett. **122**, 206401 (2019).
4. J. Li, Y. Li, S. Du, Z. Wang, B.-L. Gu, and Y. Xu, Sci. Adv. **5**, eaaw5685 (2019).
5. M. M. Otrokov, I. P. Rusinov, M. Blanco-Rey, M. Hoffmann, A. Yu. Vyazovskaya, S. V. Eremeev, A. Ernst, P. M. Echenique, A. Arnau, and E. V. Chulkov, Phys. Rev. Lett. **122**, 107202 (2019).
6. I. I. Klimovskikh, M. M. Otrokov, D. Estyunin et al. (Collaboration), npg Quantum Mater. **5**, 54 (2020).
7. Z. A. Jahangirli, E. H. Alizade, Z. S. Aliev, M. M. Otrokov, N. A. Ismayilova, S. N. Mammadov, I. R. Amiraslanov, N. T. Mamedov, G. S. Orudjev, M. B. Babanly, A. M. Shikin, and E. V. Chulkov, J. Vac. Sci. Technol. B **37**, 062910 (2019).
8. Z. S. Aliev, I. R. Amiraslanov, D. I. Nasonova, A. V. Shevelkov, N. A. Abdullayev, Z. A. Jahangirli, E. N. Orujlu, M. M. Otrokov, N. T. Mamedov, M. B. Babanly, and E. V. Chulkov, J. Alloys Compd. **789**, 443 (2019).
9. L. Ding, C. Hu, E. Feng, C. Jiang, I. A. Kibalin, A. Gukasov, M. F. Chi, N. Ni, and H. Cao, J. Phys. D: Appl. Phys. **54**, 174003 (2021).
10. J. Z. Wu, F. Liu, M. Sasase, K. Ienaga, Y. Obata, R. Yukawa, K. Horiba, H. Kumigashira, S. Okuma, T. Inoshita, and H. Hosono, Sci. Adv. **5**, eaax9989 (2019).
11. N. A. Abdullaev, I. R. Amiraslanov, Z. S. Aliev, Z. A. Jahangirli, I. Yu. Sklyadneva, E. G. Alizade, Y. N. Aliyeva, M. M. Otrokov, V. N. Zverev, N. T. Mamedov, and E. V. Chulkov, JETP Lett. **115**, 749 (2022).
12. F. Fei, S. Zhang, M. Zhang, S. A. Shah, F. Song, X. Wang, and B. Wang, Adv. Mater. **32**, 1904593 (2019).
13. C. Liu, Y. Wang, H. Li, Y. Wu, H. Li, Y. Wu, Y. Li, J. Li, K. He, Y. Xu, J. Zhang, and Y. Wang, Nat. Mater. **19**, 522 (2020).

14. M. Z. Shi, B. Lei, C. S. Zhu, D. H. Ma, J. H. Cui, Z. L. Sun, J. J. Ying, and X. H. Chen, Phys. Rev. B **100**, 155144 (2019).
15. J.-Q. Yan, Y. H. Liu, D. Parker, Y. Wu, A. A. Aczel, M. Matsuda, M. A. McGuire, and B. C. Sales, Phys. Rev. Materials **4**, 054202 (2020).
16. C. Hu, L. Ding, K. N. Gordon et al. (Collaboration), Sci. Adv. **6**, eaba4275 (2020).
17. I. R. Amiraslanov, Z. S. Aliev, P. A. Askerova, E. H. Alizade, Y. N. Aliyeva, N. A. Abdullayev, Z. A. Jahangirli, M. M. Otrokov, N. T. Mamedov, and E. V. Chulkov, Phys. Rev. B **106**, 184108 (2022).
18. A. Ruiz, N. P. Breznay, M. Li, R. D. McDonald, and R. J. McQueeney, Phys. Rev. B **103**, 184429 (2021).
19. J. Cai, D. Ovchinnikov, Z. Fei, M. He, T. Song, Z. Lin, C. Wang, D. Cobden, J.-H. Chu, Y.-T. Cui, C.-Z. Chang, D. Xiao, J. Yan, and X. Xu, Nat. Commun. **13**, 1668 (2022).
20. J.-Q. Yan, Q. Zhang, T. Heitmann, Z. Huang, K. Y. Chen, J.-G. Cheng, W. Wu, D. Vaknin, B. C. Sales, and R. J. McQueeney, Phys. Rev. Materials **3**(6), 064202 (2019).
21. A. Tan, V. Labrasherie, N. Kunchur, A. U. B. Wolter, J. Cornejo, J. Dufouleur, B. Büchner, A. Isaeva, and R. Giraud, Phys. Rev. Lett. **124**, 197201 (2020).
22. J. Shao, Y. Liu, M. Zeng et al. (Collaboration), Nano Lett. **21**, 5874 (2021).
23. A. Alfonsov, K. Mehlawat, A. Zeugner, A. Isaeva, B. Büchner, and V. Kataev, Phys. Rev. B **104**, 195139 (2021).
24. R. Lu, H. Sun, S. Kumar et al. (Collaboration), Phys. Rev. X **11**, 011039 (2021).
25. S. V. Eremeev, I. P. Rusinov, Yu. M. Koroteev, A. Yu. Vyazovskaya, M. Hoffmann, P. M. Echenique, A. Ernst, M. M. Otrokov, and E. V. Chulkov, J. Phys. Chem. Lett. **12**, 4268 (2021).
26. M. Ahlberg, M. Marcellini, A. Taroni et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **81**, 214429 (2010).
27. C. Yan, Y. Zhu, L. Miao et al. (Collaboration), Nano Lett. **22**, 9815 (2022).
28. A.-V. Tcakaev, B. Rubrecht, J. I. Facio et al. (Collaboration), Adv. Sci. **10**, 2203239 (2023).