Письма в ЖЭТФ, том 120, вып. 11, с. 871 – 876

Магнетосопротивление объемного образца FeSi

А. Е. Петрова[+], *С. Ю. Гаврилкин*[+], *С. С. Хасанов*[*], *В. А. Степанов*[+], *С. М. Стишов*[+1)]

[+]*Физический институт им. П. Н. Лебедева, 119991 Москва, Россия*

[*]*Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия*

Поступила в редакцию 2 сентября 2024 г.
После переработки 21 октября 2024 г.
Принята к публикации 21 октября 2024 г.

Исследовано магнетосопротивление объемного образца FeSi, хорошо охарактеризованного в наших ранних работах. Показано, что после весьма сложного поведения при температурах ниже 6 K магнетосопротивление FeSi становится регулярной функцией температуры и магнитного поля. При повышении температуры магнетосопротивление проходит через максимум при температуре около 12 K и постепенно уменьшается до слабо отрицательных значениий, стремясь к нулю. Таким образом, наши наблюдения свидетельствуют о существовании отрицательной компоненты магнетосопротивления, которая появляется при температуре около 12 K и, в конечном итоге, определяет отрицательные значения как поперечного, так и продольного магнетосопротивления FeSi при высоких температурах. Отрицательная компонента магнетосопротивления, возможно, связана с топологическими особенностями хиральной структуры FeSi.

DOI: 10.31857/S0370274X24120085, EDN: FMLBMJ

Введение. Силициды переходных металлов с нецентросимметричной кристаллической структурой типа B20 уже несколько десятилетий привлекают большое внимание исследователей благодаря своим замечательным магнитным и электрическим свойствам. В последние годы интерес к соединениям такого рода, включая также ряд германатов, значительно возрос благодаря их топологическим свойствам, определяемым специфической симметрией кристаллической решетки. Нарушение пространственной симметрии в структурном типе B20 приводит к существованию особых точек, в том числе точек Вейля в электронном и фононном спектрах.

Уникальные физические свойства моносилицида железа FeSi изучаются несколько последних десятилетий. Фактически, FeSi при высоких температурах является металлом, и, с понижением температуры превращается в узкозонный полупроводник [1, 2]. FeSi характеризуется необычным поведением магнитной восприимчивости, теплоемкости, удельного сопротивления и других физических свойств [3–5]. Характерные особенности FeSi описаны и проанализированы в ряде публикаций (см., например, [3–9]). В результате FeSi был охарактеризован как сильно коррелированный изолятор [6, 8, 9], хотя в [5] было отмечено, что описание изолятора Кондо согласуется с физическими свойствами FeSi. Однако физика FeSi кажется еще более удивительной. При металлизации FeSi было обнаружено смягчение фононного спектра [10]. При изучении фононов методом неупругого рентгеновского рассеяния в FeSi [11] обнаружены топологические точки Вейля. Были также изучены топологические особенности электронных спектров в FeSi [12]. Авторы статьи [12] утверждают, что металлическое состоянии FeSi существует вне температурного диапазона 75–143 K. Недавно была обнаружена низкотемпературная металлическая проводимость в нитевидном FeSi [13], что указывает на существование проводящей поверхности, как это имеет место в топологическом изоляторе. Сравнивая свойства нитевидного FeSi и SmB_6, авторы [14] пришли к выводу, что нитевидный FeSi является новым d-электронным изолятором Кондо. В связи с тем, что большинство аргументов в работе [14] основано на результатах измерения магнетосопротивления (MR – *magnetoresistance*), мы решили подробно изучить поведение MR объемного образца FeSi.

Описание эксперимента. Образцы для измерений были вырезаны из известного монокристалла FeSi (см., например, обзор [15]), выращенного методом Чохральского. Подробную характеристику образца можно найти в обзоре [15]. Однако здесь мы сообщаем о некоторых дополнительных данных, которые добавляют новые черты к характеристике нашего образца FeSi. Химический состав образца, определенный методом электронно-зондового микроанализа, показывает некоторый избыток содержания Fe

[1)]e-mail: stishovsm@lebedev.ru

(средние данные в атомных процентах: Fe 50.555; Si 49.045). Параметр решетки получен из анализа порошковой рентгеновской дифракции по методу Ритвельда и равен 4.4860(1) Å. Общая мозаичность, следующая из кривой качания с использованием отражения (400), составляет около 0.05^0. Размеры образца для измерения MR $2.5 \times 0.9 \times 0.6$ мм^3. Сопротивление измерялось в направлении [100], соответствующем наибольшей длине образца.

Теплоемкость образца измерялась с помощью системы измерения физических свойств Quantum Design с модулем теплоемкости и вставкой He-3. Удельное сопротивление измерялось по стандартной четырехконтактной схеме с золотыми проводами, прикрепленными к образцу серебряной пастой в качестве электрических контактов. Магнитная восприимчивость измерялись с помощью системы измерения магнитных свойств Quantum Design. Результаты измерений теплоемкости FeSi представлены на рис. 1 в сравнении с теплоемкостью CoSi.

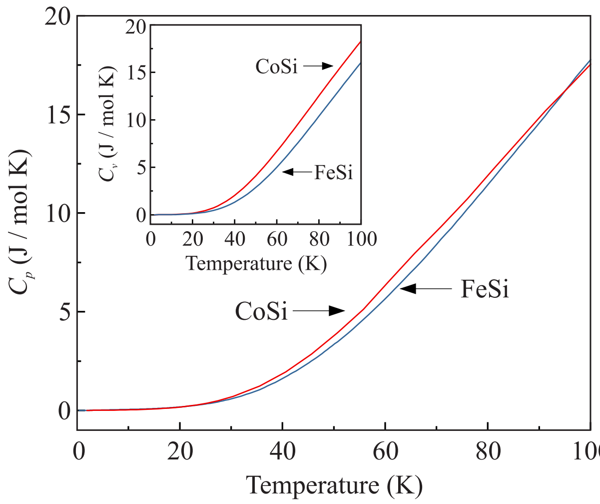

Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость теплоемкости C_p от температуры FeSi (настоящие измерения) и CoSi [15]. На вставке показаны теоретически рассчитанная фононная теплоемкость FeSi и CoSi [15]

Удельное сопротивление FeSi демонстрирует разные режимы проводимости (рис. 2) (см. также табл. 1)

Таблица 1. Удельное сопротивление FeSi

T, K	ρ, Ом см
1.83	3.50
77.05	3.62×10^{-3}
300.02	2.58×10^{-4}

Рисунок 2 (см. линию *1* на вставке) показывает, что в узком диапазоне температур 100–150 K сопротивление объемного образца FeSi может быть описано стандартной активационной формулой с энергетической щелью E_g 0.06 эВ или 700 K. Линия *2* на вставке рис. 2 – это кривая сопротивления нитевидного FeSi, которая, как утверждается в [13], демонстрирует вторую щель в диапазоне 30–54 K, и которая не наблюдается в нашем объемном FeSi. Таким образом, значительное различие в свойствах объемного и нитевидного образцов вполне очевидно.

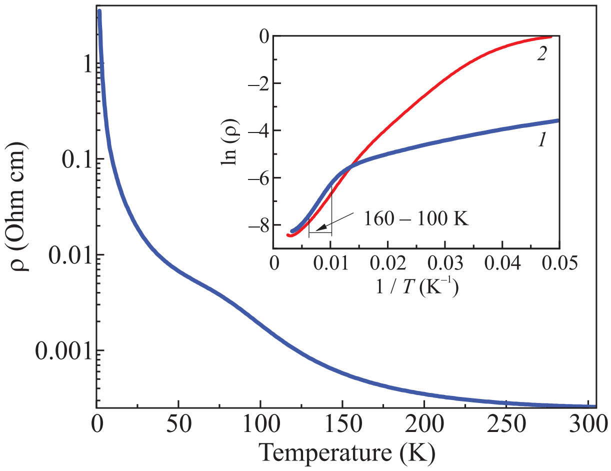

Рис. 2. (Цветной онлайн) Удельное сопротивление ρ FeSi как функция температуры. На вставке две линии демонстрируют поведение удельного сопротивления образцов *1* и *2* в координатах $\ln(\rho)$ и T^{-1}. *1* – объемный образец FeSi, *2* – нитевидный образец FeSi [13]

Измерения MR проводились в двух ориентациях магнитного поля: продольной ($\mathbf{I}\|\mathbf{H}$) и поперечной ($\mathbf{I}\perp\mathbf{H}$), ток всегда был направлен вдоль направления [100] ($\mathbf{I}\|[100]$). Во время измерений образец ступенчато охлаждался от 300 до 1.8 K (см. рис. 3, 4). При каждом шаге магнитное поле прикладывалось от 0 до 9 Тл, и сопротивление измерялось в конфигурации $\mathbf{I}\perp\mathbf{H}$, затем измерение продолжалось в конфигурации $\mathbf{I}\|\mathbf{H}$ при уменьшении магнитного поля от 9 Тл до 0. Результаты измерений магнетосопротивления показаны на рис. 3 и 4. Видно, что нет существенной разницы в результатах, полученных в двух разных ориентациях. Изменение направления магнитного поля при измерениях сопротивления FeSi показывает отсутствие значимого холловского вклада в текущих измерениях.

Результаты и обсуждения. Принято считать, что CoSi может служить стандартным немагнитным материалом при изучении фононных свойств соединений с кристаллической структурой B20 (см., например, [3]). На рисунке 1 показаны экспериментальные кривые теплоемкости FeSi и CoSi в диапазоне 100 K градусов [15]. Очевидна небольшая раз-

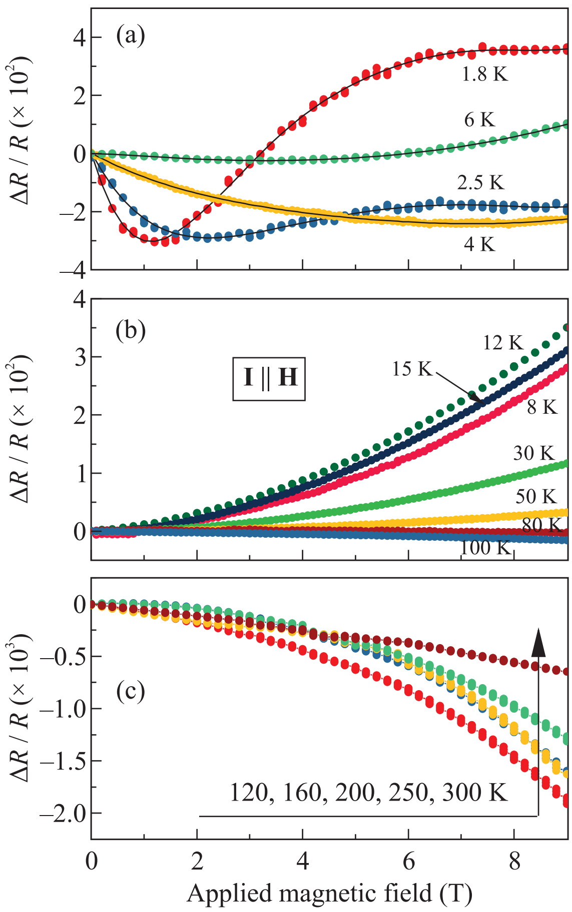

Рис. 3. (Цветной онлайн) Магнетосопротивление FeSi как функция температуры и продольного магнитного поля ($\mathbf{I}\|\mathbf{H}, \mathbf{I}\|[100]$ для всех панелей). Изменен масштаб $\Delta R/R$ на панели (c)

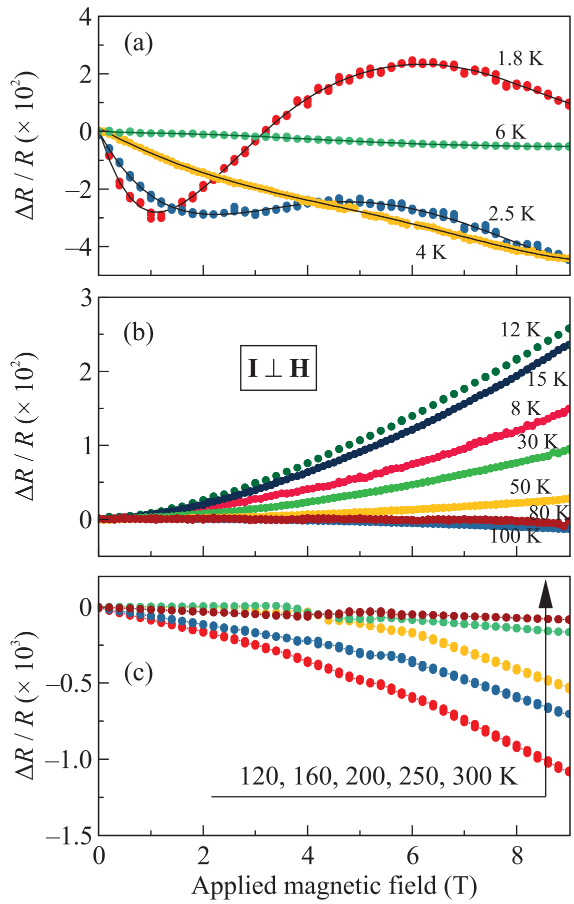

Рис. 4. (Цветной онлайн) Магнитосопротивление FeSi как функция температуры и поперечного магнитного поля ($\mathbf{I}\perp\mathbf{H}, \mathbf{I}\|[100]$ для всех панелей). Изменен масштаб $\Delta R/R$ на панели (c)

ница, которая фактически соответствует теоретическим расчетам примерно до 60 K. Затем теплоемкость FeSi начинает быстро расти, что, вероятно, свидетельствует о начале металлизации [10].

Возвращаясь к данным MR (рис. 3, 4), видно, что они не очень чувствительны к ориентации магнитного поля и тока, и что их можно разделить на три группы по диапазону температур: низкие $T < 6$ K и высокие температуры $6 < T < 100$ и $100 < T <$ < 300 K. Такое поведение магнетосопротивления не отмечалось в предыдущих измерениях магнетосопротивления в FeSi [7, 16–19]. В отличие от низкотемпературной области, при повышении температуры MR ведет себя довольно регулярно в зависимости от магнитного поля и температуры. Как видно из рис. 5, MR проходит через максимум примерно при температуре 12 K и постепенно уменьшается, приближаясь к небольшим отрицательным значениям, стремясь к нулю.

Экстремум вблизи 12 K также наблюдается на кривой зависимости показателя n выражения $\Delta R/R \sim H^n$ от температуры (рис. 6). Видно, что при температуре 8 K “продольный” изотермический показатель n близок к каноническому значению 2. Несмотря на схожесть MR FeSi для поперечной и продольной ориентации магнитного поля (см. рис. 3 и 4), оно становится анизотропным при магнитных полях выше 3–4 Тл. В этом обсуждении мы, вероятно, упускаем важный момент, которым является влияние неоднородного распределения тока (current jetting) [20]. Потенциально это может влиять на измерения продольного MR. Однако мы не можем оценить этот эффект в настоящих измерениях.

Мы опускаем анализ MR FeSi при $T \leqslant 6$ K. Низкотемпературная область, содержащая частично отрицательные изотермы MR, характеризуется взаимодействием локализованных и свободных носителей. Поэтому каждая кривая $\rho(M)$ требует специаль-

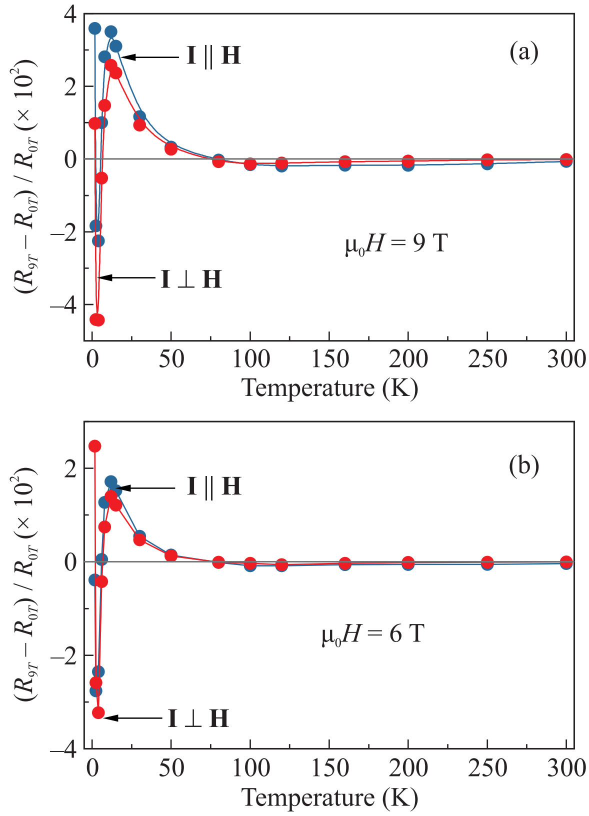

Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурная зависимость магнетосопротивления FeSi в магнитных полях 6 и 9 Тл

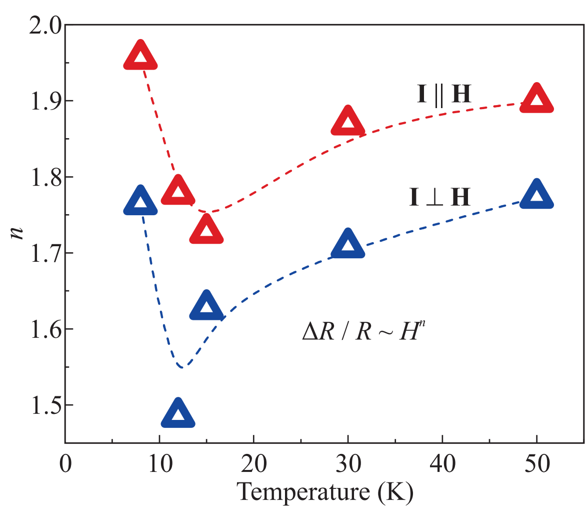

Рис. 6. (Цветной онлайн) Значения показателя степени n в формуле $\Delta R/R \sim H^n$, описывающего кривые MR на рис. 3 и 4 при $T > 6K$

ного анализа. Возникновение отрицательного MR в неупорядоченных металлических системах в настоящее время хорошо изучено [21, 22]. Однако до сих пор не было предложено общего механизма для объяснения отрицательного MR в системах с прыжковой проводимостью, как это происходит в FeSi при низких температурах. Некоторые специальные механизмы, описывающие MR в этих системах, предлагаются в [23–26].

Переходя к более высоким температурам при $T >$ > 6 K, можно увидеть общее уменьшение MR FeSi с температурой, что, на первый взгляд, можно было бы объяснить увеличением концентрации носителей индуцированной металлизацией и уменьшением средней длины свободного пробега носителей. Однако, как показывает максимум MR при 12 K (рис. 5), не все так просто. Для описания ситуации можно предположить существование двух компонент MR, положительную и отрицательную, причем последняя начинает увеличиваться вблизи 12 K, как показано на рис. 5.

Результаты измерений MR, представленные на рис. 3, 4 и 5, вероятно, подтверждают эту точку зрения. Как видно, MR FeSi становится слегка отрицательным при температурах выше $\cong 60$ K. Симптоматично, что анизотропия магнетосопротивления FeSi полностью не исчезает (рис. 3, 4). Полезно сравнить рис. 2 и 5. MR FeSi значительно уменьшается в диапазоне температур, соответствующих полупроводниковому поведению, хотя это очень близко к переходу в металлическое состояние [27]. Стоит обратить внимание, что рис. 7 также показывает существование

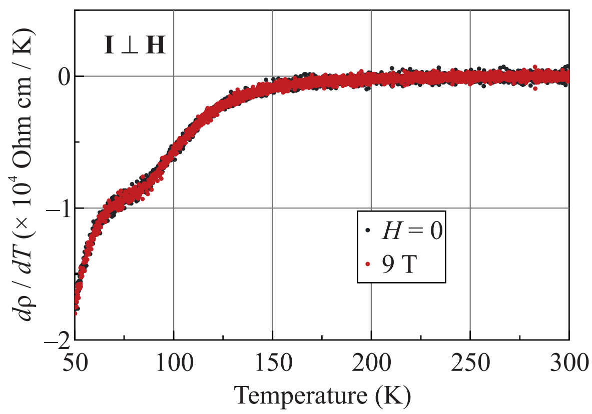

Рис. 7. (Цветной онлайн) Производная удельного сопротивления FeSi в нулевом магнитном поле и при 9 Тл, **I⊥H**. То же самое наблюдается в параллельной ориентации. Заметим, что FeSi находится на грани металлического состояния при 180–200 K

двух ветвей на кривой $d\rho/dT$, возможно, связанных с резким ростом числа носителей в зоне проводимости. С другой стороны, плато $d\rho/dT$ в диапазоне 150–200 K на рис. 7 указывает на то, что концентрация носителей могла достичь своего максимума (см. также [27]), а затем при очевидно малой длине свободного пробега неизвестная отрицательная компонента определяет отрицательные значения магнетосопротивления FeSi при высоких температурах. Связана ли отрицательная компонента MR в FeSi с его хиральной природой, еще предстоит выяснить в будущих исследованиях; действительно, можно было бы ожидать, что уровень Ферми в металлическом FeSi приблизится к узлу Вейля при некоторой температуре. Однако хиральная аномалия Вейля приводит только к отрицательному продольному MR [28]. Любопытно, однако, что в FeSi, как показано на рис. 3c и 4c, продольное MR является конечным и отрицательным при 300 K, тогда как поперечное MR практически равно нулю, что, по-видимому, соответствует теоретическим выводам [28, 29].

Перейдем далее к рис. 8, на котором изображены кривые, иллюстрирующие MR в магнитном поле 9 Тл для нитевидного образца FeSi и изолятора Кондо SmB_6, доказывающие их близкое сходство по утверждениям авторов [14]. С другой стороны, зависимость $\Delta R/R$ для объемного образца FeSi по текущим данным, как видно, больше похожа на соответствующую зависимость для SmB_6, чем на таковую для нитевидного образца FeSi, хотя MR объемного FeSi на порядок меньше, чем нитевидного. Фактически, минимумы в MR SmB_6 и объемного FeSi являются результатом небольшого несоответствия двух кривых с высоким сопротивлением в нулевом магнитном поле и при 9 Тл, в то время как минимум в MR нитевидного FeSi связан с образованием проводящей поверхности при 19 K. Стоит также отметить отсутствие второй энергетической щели на кривой сопротивления нашего объемного образца FeSi (рис. 2), как это было обнаружено для нитевидного FeSi [13, 14]. Более того, сходство между температурной зависимостью магнетосопротивления нитевидного FeSi и изолятора Кондо SmB_6 [14] кажется не очевидным. Возможно, нитевидный FeSi является абсолютно уникальным материалом и нет необходимости сравнивать его с хорошо изученным материалом.

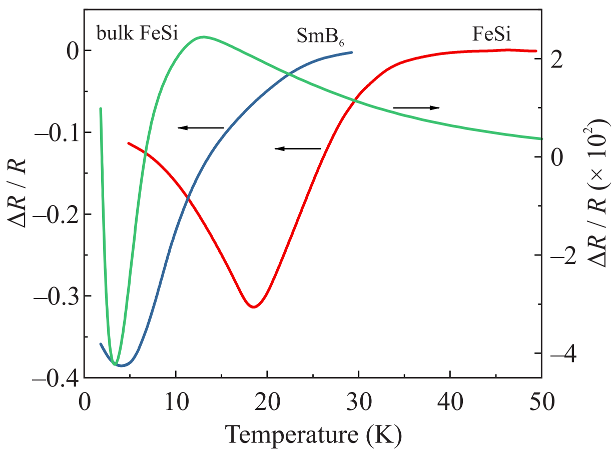

Рис. 8. (Цветной онлайн) Сравнение MR ($\Delta R/R = (R_{9T} - R_{0T})/R_{0T}$) FeSi и SmB_6 в зависимости от температуры в магнитном поле $B = 9$ Тл из работы [14]. Данные настоящей работы в объемном образце FeSi также представлены на графике. Отметим, что MR объемного FeSi на порядок меньше MR нитевидного [14]. Размеры образцов в обоих случаях существенно различаются: мкм и мм в нитевидных и объемных образцах соответственно

Заключение. Итак, исследовано MR хорошо охарактеризованного объемного образца FeSi. Магнетосопротивление FeSi (рис. 3, 4) (1) слабо чувствительно к ориентации образца относительно магнитного поля, (2) MR можно разделить на две группы по температуре измерений: низкая $T < 6$ K и высокая $T > 6$ K. В отличие от низкотемпературной зоны, MR при высоких температурах ведет себя довольно регулярно в зависимости от магнитного поля и температуры. Высокотемпературная часть MR проходит через максимум примерно при 12 K и постепенно уменьшается, приближаясь к слегка отрицательным значениям, а затем к нулю. Таким образом, наблюдения предполагают существование отрицательной компоненты MR, появляющейся примерно при 12 K, окончательно определяя отрицательные значения как поперечного, так и продольного MR FeSi при высоких температурах. Однако следует отметить, что, как показано на рис. 3c и 4c, в FeSi продольное MR конечно и отрицательно, тогда как поперечное MR практически равно нулю при 300 K, что предположительно указывает на топологическую природу отрицательной компоненты MR. Действительно, при переходе FeSi в металлическое состояние при высоких температурах, как это, возможно, указано на рис. 1 и 7 (см. также [1, 2]), уровень Ферми может касаться соответствующих узлов Вейля в электронных спектрах, что приведет к отрицательному продольному магнетосопротивлению [28, 29].

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Физического института имени П. Н. Лебедева Российской академии наук. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. K. Ishizaka, T. Kiss, T. Shimojima, T. Yokoya, T. Togashi, S. Watanabe, C. Q. Zhang, C. T. Chen, Y. Onose, Y. Tokura, and S. Shin, Phys. Rev. B **72**, 233202 (2005).

2. M. Arita, K. Shimada, Y. Takeda, M. Nakatake, H. Namatame, M. Taniguchi, H. Negishi, T. Oguchi, T. Saitoh, A. Fujimori, and T. Kanomata, Phys. Rev. B **77**, 205117 (2008).
3. V. Jaccarino, G.K. Wertheim, J.H. Wernick, L.R. Walker, and S. Arajs, Phys. Rev. **160**, 476 (1967).
4. M.B. Hunt, M.A. Chernikov, E. Felder, H.R. Ott, Z. Fisk, and P. Canfield, Phys. Rev. B **50**, 14 933 (1994).
5. D. Mandrus, J.L. Sarrao, A. Migliori, J.D. Thompson, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **51**, 4763 (1995).
6. C. Fu and S. Doniach, Phys. Rev. B **51**(17), 439 (1995).
7. S. Paschen, E. Felder, M.A. Chernikov, L. Degiorgi, H. Schwer, H.R. Ott, D.P. Young, J.L. Sarrao, and Z. Fisk, Phys.Rev. B **56**, 12916 (1997).
8. V.V. Mazurenko, A.O. Shorikov, A.V. Lukoyanov, K. Kharlov, E. Gorelov, A.I. Lichtenstein, and V.I. Anisimov, Phys. Rev. B **81**, 125131 (2010).
9. J.M. Tomczak, K. Haule, and G. Kotliar, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **109**, 3243 (2012).
10. O. Delaire, K. Marty, M.B. Stone, P.R.C. Kent, M.S. Lucas, D.L. Abernathy, D. Mandrus, and B.C. Sales, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **108**, 4725 (2011).
11. H. Miao, T.T. Zhang, L. Wang, D. Meyers, A.H. Said, Y.L. Wang, Y.G. Shi, H.M. Weng, Z. Fang, and M.P.M. Dean, Phys. Rev. Lett. **121**, 035302 (2018).
12. Susmita Changdar, S. Aswartham, Anumita Bose, Y. Kushnirenko, G. Shipunov, N.C. Plumb, M. Shi, Awadhesh Narayan, B. Büchner, and S. Thirupathaiah, Phys. Rev. B **101**, 235105 (2020).
13. Y. Fang, Sh. Ranc, W. Xied, Sh. Wange, Y.Sh. Menge, and M.B. Maple, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **115**, 8558 (2018).
14. A. Breindel, Y. Deng, C.M. Moir, Y. Fang, Sh. Ran, H. Lou, Sh. Li, Q. Zeng, L. Shu, Ch.T. Wolowiec, IK. Schuller, P.F.S. Rosa, Z. Fisk, J. Singleton, and M.B. Maple, Proc Natl Acad Sci USA **120**(8), e2216367120 (2023).
15. S.M. Stishov and A.E. Petrova, Phys.-Uspekhi **66**, 576 (2023).
16. K. G.Lisunov, E.K. Arushanov, Ch. Kloc, J. Broto, J. Leotin, H. Rokoto, M. Respaud, and E. Bucher, Physica B **229**, 37 (1996).
17. H. Ohta, T. Arioka, Y. Yamamoto, S. Mitsudo, T. Hamamoto, M. Motokawa, Y. Yamaguchi, E. Kulatov, Physica B **237–238**, 463 (1997).
18. V.V. Glushkov, I.B. Voskoboinikov, S.V. Demishev, I.V. Krivitskii, A. Menovsky, V.V. Moshchalkov, N.A. Samarin, and N.E. Sluchanko, ZhETF **126**, 444 (2004).
19. P. Sun, B. Wei, D. Menzel, and F. Steglich, Phys. Rev. B **90**, 245146 (2014).
20. A.B. Pippard, *Magnetoresistance in Metals*, Cambridge University Press, N.Y. (1989).
21. B.L. Al'tshuler, A.G. Aronov, A.I. Larkin, and D.E. Khmel'nitskil, ZhETF **81**, 768 (1981).
22. A.A. Abrikosov, *Fundamentals of the Theory of Metals*, North Holland, Amsterdam (1988).
23. B.L. Al'tshuler, A.G. Aronov, and D.E. Khmel'nitskil, JETP Lett. **36**, 157 (1982).
24. V.L. Nguen, B.Z. Spivak, and B.I. Shklovskii, ZhETF **89**, 1770 (1985).
25. H.L. Zhao, B.Z. Spivak, M.P. Gelfand, and Sh. Feng, Phys. Rev. B **44**, 10760 (1991).
26. M.E. Raikh and C.E. Glazman, Phys. Rev. Lett. **75**, 128 (1995).
27. B.C. Sales, E.C. Jones, B.C. Chakoumakos, J.A. Fernandez-Baca, H.E. Harmon, J.W. Sharp, and E.H. Volckmann, Phys. Rev. B **50**, 8207 (1994).
28. D.T. Son and B.Z. Spivak, Phys. Rev. B **88**, 104412 (2013).
29. A.A. Burkov, Phys. Rev. B **91**, 245157 (2015).