

УДК 538.915

ОСОБЕННОСТИ НЕРАВНОВЕСНОГО ПИННИНГА ВОЛНЫ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ В СОЕДИНЕНИЯХ HoTe_3 и TmTe_3 © 2024 г. Д. М. Воропаев^{a, b, *}, А. В. Фролов^a, А. П. Орлов^{a, c}, А. А. Синченко^a^a Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН,
ул. Моховая, 11, стр. 7, Москва, 125009 Российская Федерация^b Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет),
Институтский пер., 9, Долгопрудный, Московская обл., 141701 Российская Федерация^c Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН,
ул. Нагатинская, 16а, стр. 11, Москва, 115487 Российская Федерация

*E-mail: voropaev.dm@phystech.edu

Поступила в редакцию 05.12.2023 г.

После доработки 09.12.2023 г.

Принята к публикации 25.01.2024 г.

Исследовано сходство стекольных систем с пиннингом в соединениях с волной зарядовой плотности (ВЗП) TmTe_3 и HoTe_3 . Измерены дифференциальные вольт-амперные характеристики в микромостиковых структурах, ориентированных вдоль направления скольжения ВЗП, при многоступенчатом изменении температур. Продemonстрировано изменяющееся поведение порогового поля в процессе изотермической выдержки в системе со скользящей ВЗП, с характерной релаксацией в логарифмическом масштабе времени. Обнаружено свойство, присущее стекольным системам — эффект памяти, что позволяет утверждать о необычной стекольной природе системы центров пиннинга ВЗП в данных материалах.

Ключевые слова: волна зарядовой плотности, двумерные соединения, эффект памяти

DOI: 10.31857/S0033849424120078, **EDN:** HNBCTN

ВВЕДЕНИЕ

Волной зарядовой плотности (ВЗП) называют периодическое перераспределение электронного, ионного и суммарных зарядов под воздействием малых периодических смещений ионов вблизи их положений равновесия в кристаллической решетке [1]. На протяжении многих лет ВЗП исследовали в квазиодномерных кристаллах [2, 3]. Относительно недавно ВЗП удалось наблюдать в квазидвумерных соединениях трителлуридов редкоземельных элементов RTe_3 (R: La, Ce, Pr, Nd, Gd, Tb, Dy, Er, Tm) [4, 5]. В них сосуществуют два состояния ВЗП [6, 7]: с антиферромагнитными переходами [8, 9] и под давлением со сверхпроводимостью [10, 11]. В данных соединениях вдоль направления вектора ВЗП измерялись транспортные свойства, и при повышении электрического поля выше некоторого порогового значения $E_{\text{пор}}$ путем повышения напряжения выше порогового напряжения $V_{\text{пор}}$ удавалось наблюдать скольжение ВЗП.

Таким образом, при измерениях вольт-амперной характеристики (ВАХ) на эффект скольжения ВЗП

указывают изменения наклона на ВАХ или более заметный скачок сопротивления на дифференциальной ВАХ. Пороговое поле характеризуется пиннингом, т.е. сцеплением ВЗП с различными дефектами и примесями [2]. При изучении эволюции порогового поля было обнаружено, что закон, описывающий поведение порогового поля при изотермической выдержке, близок к логарифмическому [12], а также такие параметры как ток и температура оказывают влияние на эволюции данных систем [13–15]. Аналогичное поведение проявляют стекольные системы, в том числе очень похожая зависимость намагниченности от температуры, времени и магнитного поля наблюдается в системах спиновых стекол [16–18].

Стекольные системы имеют ряд характерных свойств, одним из которых является эффект памяти [16–18]. Как известно, стекольная система всегда находится в неравновесном состоянии и релаксирует в сторону метастабильного равновесного. Когда спиновое стекло охлаждается, память о процессе охлаждения запечатлевается в спиновой структуре. Эта память может быть проиллюстрирована в спиновых стеклах при измерении чувствительности

к переменному току при непрерывном нагреве. Например, если непрерывный процесс охлаждения периодически приостанавливается в течение определенного времени выдержки при некоторых промежуточных температурах, то следы предыдущей остановки (остановок) проявляются при непрерывном повторном нагреве образца. Однако если нагреть образец выше температуры старения, но при этом поддерживать ее ниже температуры стеклования T_g , то это сотрет память о термической истории. В данной статье через схожие циклы нагрева и охлаждения в спиновых стеклах будем изучать эффект памяти на исследуемых образцах трителлурида тулия ($TmTe_3$) и трителлурида гольмия ($HoTe_3$), представляющих систему с ВЗП.

Выявление эффекта памяти приблизило бы к пониманию систем с ВЗП. Помимо этого, системы спиновых стекол характеризуются релаксацией, описываемой логарифмическим законом. Было увеличено время релаксации по сравнению с работой [13], в которой высказывалось предположение о сходстве систем с ВЗП и спиновых стекол.

Цель данной работы — показать сходство систем с ВЗП и спиновых стекол.

1. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе были изучены транспортные свойства микромоистиков $TmTe_3$ и $HoTe_3$ в диапазоне температур 77...300 К. Образцы были изготовлены по следующей методике: от монокристаллов исследуемых материалов, выращенных методом self-flux [19], отщепляли с помощью скотча небольшую часть кристалла, переносили на сапфировую подложку и прикрепляли тонким слоем эпоксидного клея Stycast. Сапфировая подложка была выбрана, во-первых, из-за высокой теплопроводности, во-вторых, из-за возможности оптического контроля качества поверхности пленки с двух сторон. Возможность контролировать цвет образца помогала выявить, наступил ли процесс окисления. Кроме того, можно было контролировать толщину образца в разных местах при его просмотре на просвет. Полученные сегменты были полупрозрачными, их толщина была порядка десятков атомных слоев, соответственно толщина пленки была ~ 100 нм, что на несколько порядков меньше других параметров, это указывает на его квазидвумерность (рис. 1).

После нахождения нужной тонкой области на нее накладывали маски и затем напыляли на непокрытую маской тонкую область образца золото (рис. 2).

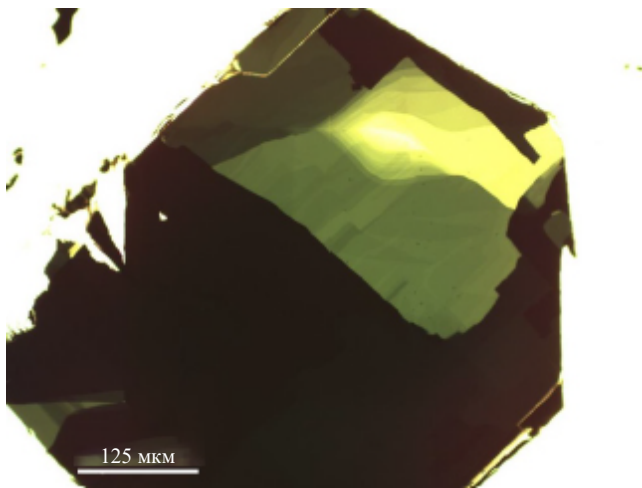


Рис. 1. Оптическая фотография на просвет тонкого кристалла $TmTe_3$.

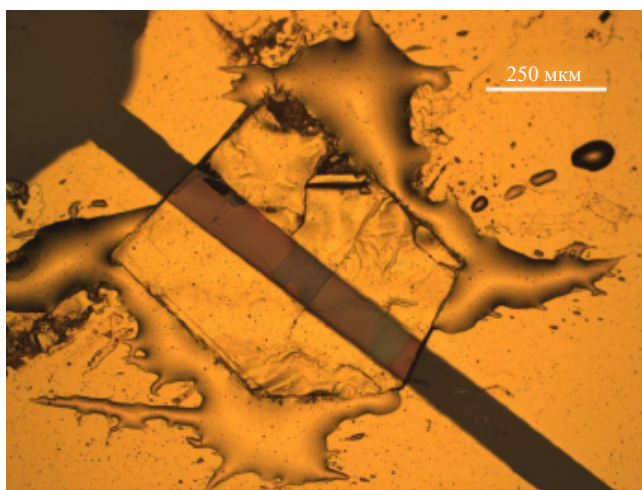


Рис. 2. Оптическая фотография кристалла на подложке с контактами из золота.

Для получения стабильных низкоомных электрических контактов была использована высоковакуумная установка лазерного напыления — лазерная абляция из золотой мишени. После снятия маски образовалась область с открытой частью поверхности кристалла и двумя массивными по площади электрическими контактами.

На следующем этапе из полученной пленки с контактами вырезали с помощью сфокусированного ионного пучка (ФИП) мостиковую структуру с раздельными токовыми и потенциальными контактами, в нужном направлении и геометрии (рис. 3).

В результате получали длинные мостики длиной 20–250 мкм, шириной 8–100 мкм с ровными краями и направлением с большой точностью ориентированно вдоль и поперек скольжения ВЗП. Наличие

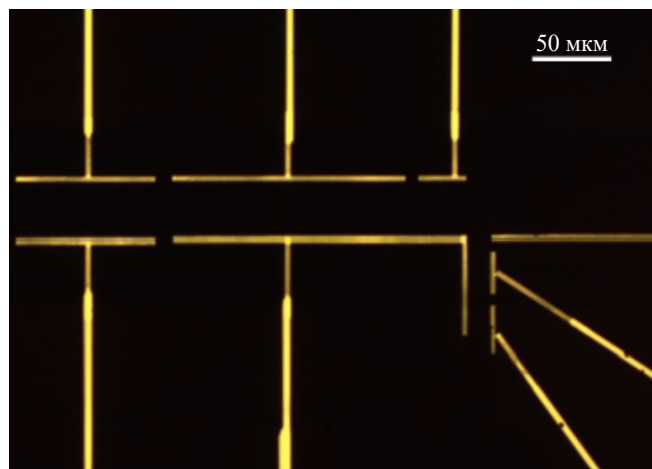


Рис. 3. Оптическая фотография на просвет соединения HoTe_3 многоконтактной мостиковой структуры, вырезанной при помощи ФИП в двух кристаллических направлениях.

двух видов мостиков (параллельных и перпендикулярных) дает возможность исследовать транспортные свойства пленок как вдоль, так и поперек направления движения ВЗП. Кроме того, такая структура позволяет исследовать образец в случае неверно выбранного направления скольжения ВЗП или использования структурно несовершенного кристалла с эффектом двойника (по толщине два разориентированных кристалла), где ВЗП может двигаться в двух направлениях, но при этом для срыва ВЗП требуются большие пороговые поля, что приводит к излишнему джоулеву нагреву.

После всех операций вытравливания мостиковой структуры ее покрывали тонким слоем полимера (т.е. инкапсулировали), поскольку исследуемые соединения окисляются достаточно быстро на воздухе и через пару часов можно наблюдать деградацию поверхности. В связи с этим после вскрытия ампулы для выращивания и хранения кристаллов и расщепления материала до нанометровых толщин эксперимент проводили в условиях низкого давления, например при вытравливании мостиков с помощью ФИП давление в камере составляло порядка 10^{-5} Торр, а также при лазерном напылении поддерживалось низкое давление в системе. Это позволило сократить время контакта образца с воздухом до десятков минут. Причиной таких мер стало то, что образцы TmTe_3 намного больше подвержены окислению на воздухе, чем TbTe_3 и HoTe_3 [12–15].

Исследование транспортных свойств образцов, в том числе определение ВАХ, проводилось с помощью четырехконтактного метода с использованием прецизионного источника тока Keysight B2912A

и нановольтметров Keysight 34420A. Из-за сильной подверженности образцов окислению измерения проводили в инертной атмосфере гелия (теплообменном газе) в специальной высоковакуумной криогенной установке с температурным контролем, находящейся в сосуде Дьюара с жидким азотом. Для подтверждения эффекта, который будет описан далее, было изготовлено и исследовано несколько образцов. На рис. 3 представлен типичный симметричный мостик (с характерной длиной $l=28$ мкм, шириной $w=8$ мкм, толщиной $h \sim 100$ нм) и приведены результаты его измерения, как наиболее наглядные, демонстрирующие полученный эффект памяти.

В соединении TmTe_3 , аналогично другим родственным соединениям (HoTe_3 [12] и TbTe_3 [15]), наблюдается увеличение порогового поля со временем при выдержке образца при температуре меньшей температуры ВЗП ($T < T_{\text{ВЗП}}$). Соответственно, были измерены серии ВАХ при температурах 210 и 220 К. Процесс измерений происходил следующим образом: образец охлаждали с температуры отжига (выше которой полностью отсутствует ВЗП) $T_{\text{отж}} > T_{\text{ВЗП}}$ до температуры выдержки $T_{\text{выд}} < T_{\text{ВЗП}}$, после этого происходила изотермическая выдержка образца, в течение которой измеряли ВАХ. Такие измерения происходили с периодичностью в 10–15 мин. Между измерениями ВАХ на образец подавался ток $I_{\text{выд}} = 10$ мкА и записывалась временная зависимость сопротивления для контролирования процесса выдержки. Такой ток экспозиции эквивалентен нулевому току на образце, где нет воздействия на ВЗП, в этом состоянии она всегда запинингована. Такое состояние соответствует плоской вершине на дифференциальной ВАХ, сопротивление почти не меняется. Начало скольжения ВЗП соответствует резкому излому на дифференциальной ВАХ (сопротивление резко падает вниз), что соответствует пороговому полю. Наблюдение поведения порогового поля в таких режимах временной выдержки позволило получить интересный результат.

2. ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В работе [12] была подробно исследована релаксация порогового поля HoTe_3 при длительных временах выдержки. В данной работе образцы также были выдержаны при температурах $T_{\text{выд}} = 210$ и 220 К на протяжении более 100 ч (рис. 4) для подтверждения результата.

Там же было получено, что график эволюции порогового поля имеет вид не такой, как было

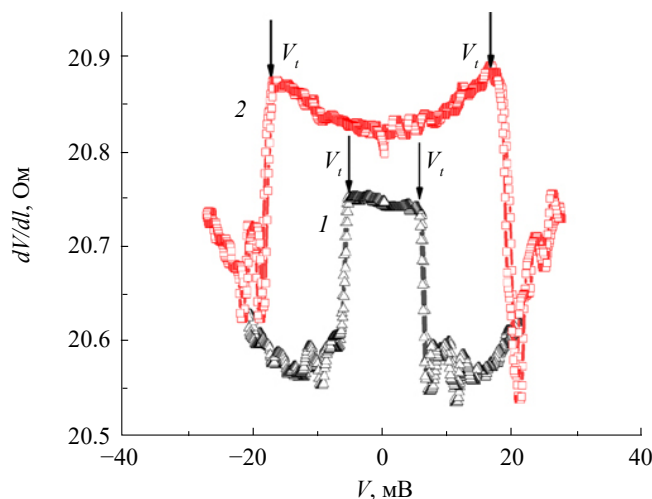


Рис. 4. Дифференциальные вольт-амперные характеристики мостика с характерным порогом (на рисунке обозначены пороговые напряжения V_t), вследствие срыва и скольжения ВЗП, соответственно до (1) и после временной выдержки 138 ч (2). Кривые сдвинуты друг относительно друга по оси u .

предсказано ранее [14], а более сложный, описываемый логарифмическими законами ($E(t) \sim \lg(t/\tau)$). На рис. 5 видно, что графики имеют аналогичный вид, что и в сравниваемой работе. Данное наблюдение лишь подтверждает сходство систем со сложными сильно неупорядоченными системами и усиливает сходство со спиновыми стеклами.

Как уже было сказано, эффект памяти является характерным для стекольных систем. Например, в работе [20] данный эффект проявляется в эволюции значения магнитной восприимчивости в соединении $\text{Cr}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Ga}$. Описанный в ней эксперимент можно разделить на три части. Первая: экспозиция при температуре $T_1 = 12$ К в течение времени $t_1 = 1$ ч, магнитная восприимчивость растет и становится равна χ_1 , затем охлаждение до температуры $T_2 = 5$ К ($T_2 < T_1$). Вторая часть: образец выдерживается при температуре T_2 в течение $t_2 = 1.5$ ч. Третья часть: отогрев до температуры T_1 . При этом $\chi_{1\text{кон}} = \chi_{3\text{нач}}$, т.е. конечное значение магнитной восприимчивости в первой фазе равно начальному значению магнитной восприимчивости в третьей фазе. Далее на протяжении времени $t_3 = 1$ ч продолжают выдерживать образец. При совмещении графиков первой и третьей части (температуры T_1) их слияние выглядит как один график, будто не было промежуточных изменений температуры.

В данной работе был проведен эксперимент по поиску схожего эффекта. Полученный результат представлен на рис. 6.

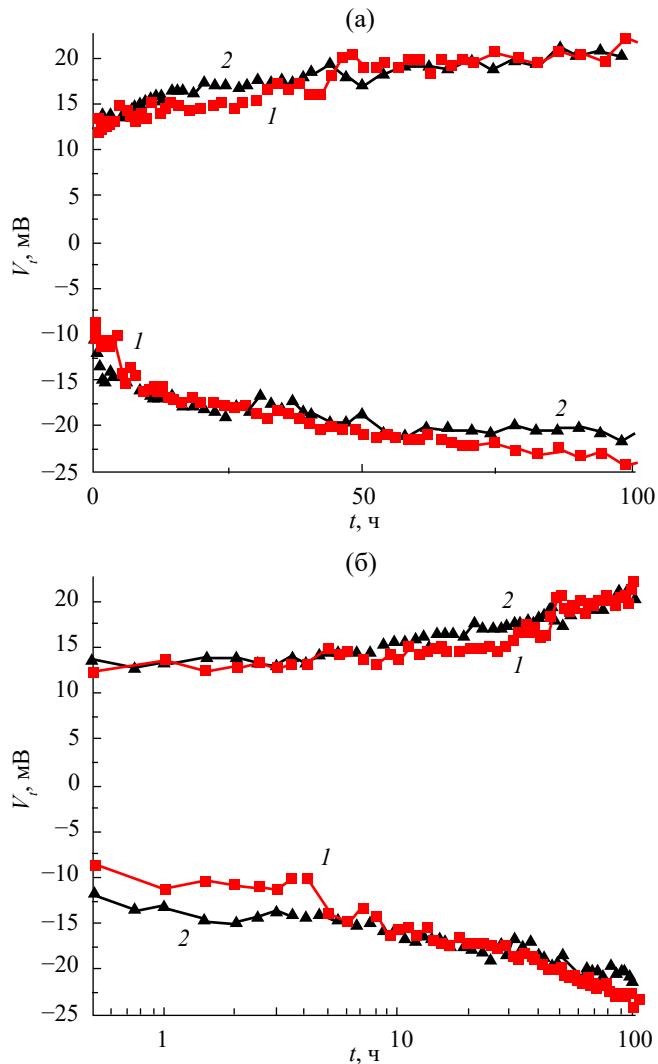


Рис. 5. Эволюция значений порогового поля в соединении TmTe_3 : а – в процессе изотермической выдержки при температурах 210 (1) и 220 К (2), б – построенная в полулогарифмическом масштабе.

Данный эксперимент можно разделить условно на пять частей (см. рис. 6, А–Д).

А. Образец выдерживали на протяжении $t_1 = 137$ ч при нулевом токе при температуре $T_{\text{выд1}} = 220$ К, пороговое поле монотонно увеличивалось аналогично другим экспериментам.

Б. Затем температура была уменьшена до $T_{\text{выд2}} = 210$ К и выдерживалась на протяжении $t_2 = 22$ ч. При понижении температуры был зафиксирован рост порогового поля в начальный момент. Связано это с тем, что при понижении температуры пороговое поле образца линейно увеличивается, соответственно, и произошел скачок в значении.

В. После выдержки при $T_{\text{выд2}}$ был отогрев до первоначальной температуры $T_{\text{выд1}}$, где нас интере-

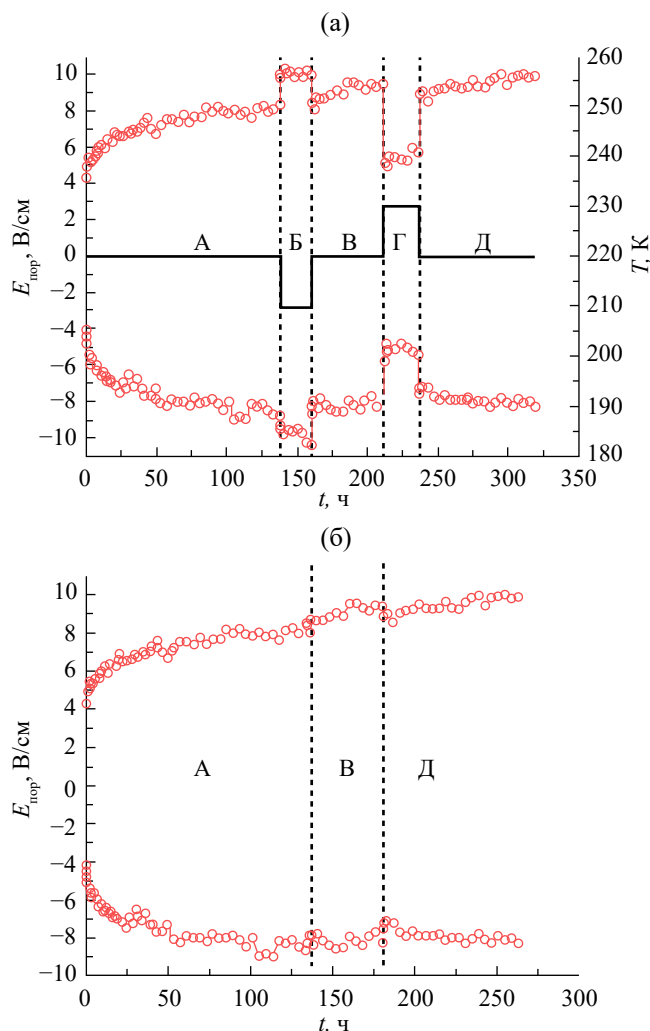


Рис. 6. Эффект памяти в TmTe_3 : а – эволюция порогового поля (кружочки) при различных температурах выдержки (сплошная линия); б – эволюция порогового поля при соединении секторов А, В и Д с одинаковой температурой 220 К.

совало значение порогового поля в начальный момент после отогрева. После этого на протяжении $t_3 = 50$ ч образец выдерживали при заданной температуре. Значение порогового поля в начальный момент третьей фазы совпало со значением в момент перед первым охлаждением, как и в работе [10], где аналогичным образом совпало значение магнетизма. Это показывает, что система центров пиннинга имеет некий аналог памяти при различных значениях температур. Далее было проверено, как повлияет на эволюцию порогового поля повышение температуры до значения, меньшего чем температура пайерлсовского перехода. После выдержки при температуре $T_{\text{выд1}}$ на протяжении $t = 50$ ч, в течение которых наблюдался типичный

рост порогового поля, образец был нагрет до $T_{\text{выд3}} = 230$ К. При данной температуре значение порогового поля резко упало, что описывается все той же линейной зависимостью от температуры.

Г. При $T_{\text{выд3}}$ образец выдерживали около суток, затем охлаждали до $T_{\text{выд1}}$.

Д. Дальнейшая экспозиция образца при температуре $T_{\text{выд1}}$.

При сравнении значений пороговых полей, полученных в условных частях эксперимента В и Д, можно увидеть, что значение поля в начальный момент Д значительно меньше, чем при последнем измерении в В. То есть при повышении температуры происходит разрушение некоторой сформировавшейся системы центров пиннинга, что ведет к уменьшению значений пороговых полей при более низких температурах.

На рис. 6б представлено совмещение секторов А, В, Д, при которых значение температуры выдержки равняется $T_{\text{выд1}}$. Здесь можно увидеть более наглядно как соотносятся значения пороговых полей в различных секторах. Также можно отметить, что участок А–В визуально не имеет промежуточных измерений и получившийся график выглядит как один на этом участке.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, найдено, что при крайне длительной выдержке образцов эволюция порогового поля имеет сложный логарифмический вид. Причиной такого поведения может служить физика, аналогичная той, что есть в спиновых стеклах. Спиновые стекла описываются двумя моделями: капельной и иерархической [18, 21]. Если проводить аналогию с иерархической моделью, то при охлаждении ниже температуры T_c происходит фазовый переход нарушения эргодичности, при котором фазовое пространство делится на множество «долин». Эти долины разделены бесконечными барьерами свободной энергии. Внутри этих долин существуют различные узлы с ненулевыми термодинамическими средними. Данные долины, разделенные между собой, не имеют некоторого локального минимума энергии. Каждая такая долина при температуре $T < T_c$ имеет бесконечно много метастабильных состояний, которые тоже разделены конечными барьерами, высоты этих барьеров принимают любое значение, поэтому состояние равновесия в таких системах достигнуто быть не может в принципе.

Помимо этого в образцах обнаружен характерный для стекольных систем эффект старения — эффект памяти. Описанная модель также описывает поведение образцов при наблюдении эффекта памяти.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность А. Хадж-Аззем и П. Монсо за помощь в предоставлении высококачественных кристаллов трителлурида тулия (TmTe_3) и трителлурида гольмия (HoTe_3), а также за продуктивные обсуждения.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 22-22-00331).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Grüner G. // Rev. Modern Phys. 1988. V. 60. № 4. P. 1129.
2. Monceau P. // Adv. Phys. 2012. V. 61. № 4. P. 325.
3. Monceau P., Ong N. P., Portis A. M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 37. № 10. P. 602.
4. Sinchenko A. A., Lejay P., Monceau P. // Phys. Rev. B. 2012. V. 85. № 24. P. 241104.
5. Sinchenko A. A., Lejay P., Leynaud O., Monceau P. // Solid State Commun. 2014. V. 188. P. 67.
6. Nowadnick E. A., Johnston S., Moritz B. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. № 24. P. 246404.
7. Hu B. F., Cheng B., Yuan R. H. et al. // Phys. Rev. B. 2014. V. 90. № 8. P. 085105.
8. Iyeiri Y., Okumura T., Michioka C., Suzuki K. // Phys. Rev. B. 2003. V. 67. № 14. P. 144417.
9. Ru N., Chu J. H., Fisher I. R. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. № 1. P. 012410.
10. Zocco D. A., Hamlin J. J., Grube K. et al. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. № 20. P. 205114.
11. Hamlin J. J., Zocco D. A., Sayles T. A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102. № 17. P. 177002.
12. Фролов А. В., Орлов А. П., Воронаев Д. П. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2023. Т. 117. № 2. С. 171.
13. Frolov A. V., Orlov A. P., Voropaev D. M. et al. // Appl. Phys. Lett. 2021. V. 118. № 25. P. 253102.
14. Фролов А. В., Орлов А. П., Синченко А. А., Монсо П. // Письма в ЖЭТФ. Т. 109. № 3. С. 196.
15. Frolov A. V., Orlov A. P., Hadj-Azzem A. et al. // Phys. Rev. B. 2020. V. 101. № 15. P. 155144.
16. Jonason K., Nordblad P., Vincent E. et al. // Eur. Phys. J. B — Cond. Matt. Complex Systems. 2000. V. 13. № 1. P. 99.
17. Jonason K., Vincent E., Hammann J. et al. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 81. № 15. P. 3243.
18. Bag P., Baral P. R., Nath R. // Phys. Rev. B. 2018. V. 98. № 14. P. 144436.
19. Di Masi E., Foran B., Aronson M. C., Lee S. // Chem. Mater. 1994. V. 6. № 10. P. 1867.
20. Lefloch F., Hammann J., Ocio M., Vincent E. // Europhysics Lett. 1992. V. 18. № 7. P. 647.
21. Доценко В. С. // Успехи физ. наук. 1993. Т. 163. № 6. С. 1.

FEATURES OF NONEQUILIBRIUM PINNING OF CHARGE DENSITY WAVES IN COMPOUNDS HoTe_3 AND TmTe_3

D. M. Voropaev^{a, b, *}, A. V. Frolov^a, A. P. Orlov^{a, c}, A. A. Sinchenko^a

^a *Kotelnikov Institute of Radioengineering and Electronics of RAS,*

Mokhovaya Str., 11, build 7, Moscow, 125009 Russian Federation

^b *Moscow Institute of Physics and Technology (National Search University),
Institutskii per. 9, Dolgoprudny, Moscow Region, 141701 Russian Federation*

^c *Institute of Nanotechnology of Microelectronics of RAS,
Nagatinskaya Str., 16a, build. 11, Moscow, 115487 Russian Federation*

**E-mail: voropaev.dm@phystech.edu*

Received May 12, 2023, revised June 12, 2023, accepted June 17, 2023

In this paper, the similarity of glass systems with pinning in compounds with a charge density wave (CDW) TmTe_3 and HoTe_3 was investigated. For this purpose, the differential IVs in micro-bridge structures oriented along the sliding direction of the CDW, with a multi-stage temperature change, were studied. In such a system with a sliding CDW, the changing behavior of the threshold field during isothermal exposure was shown, with characteristic relaxation on a logarithmic time scale. A property characteristic of glass systems has been found – the memory effect, which allows us to assert the unusual glass nature of the system of pinning centers in this system.

Keywords: Charge-density-waves, two-dimensional structures, memory effect