



Transport properties of the Mott 2D system $\text{Ba}(\text{Co},\text{Ni})\text{S}_2$

David Santos-Cottin, Yannick Klein, Andrea Gauzzi
IMPMC (Institut de Minéralogie et de Physique de la Matière
Condensée) , Université Pierre et Marie Curie Paris

GDR MICO, Roscoff 10-01-2013

Sommaire

- Le composé $\text{Ba}(\text{Co},\text{Ni})\text{S}_2$
- Synthèse de monocristaux
- Mesures de transport:
 - Résistivité dans BaCoS_2
 - Résistivité dans BaNiS_2
- Magnétotransport dans BaNiS_2 :
 - Effet Hall
 - Magnéto-résistance
- Conclusions et perspectives

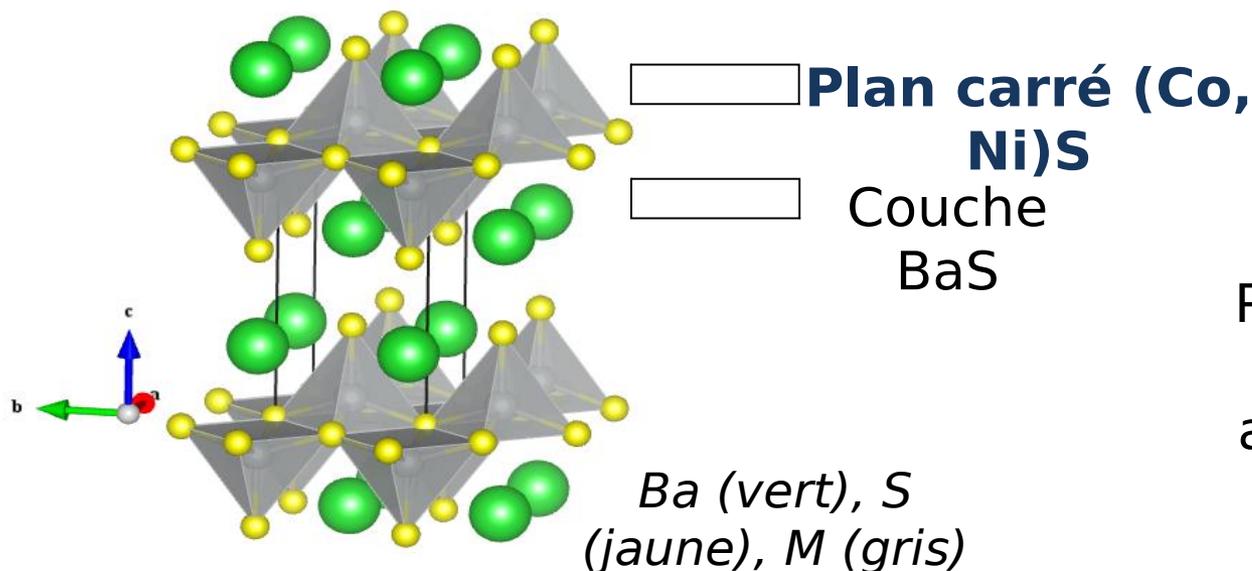
Structure cristalline Ba(Co,Ni)S₂

BaNiS₂[1]:

Tétragonal, P4/nmm,

$a = 4.430(1) \text{ \AA}$, $c = 8.893$

$(2) \text{ \AA}$



Simplicité de la structure:

- **3 paramètres libres: Z(co,Ni), ZBa, ZS1**

Notre étude structurale sur monocristaux



BaNiS₂

P4/nmm, R=1.37%,

Rw=1.42%

$a = 4.4404(6) \text{ \AA}$, $c =$

$8.897(2) \text{ \AA}$

BaCoS₂

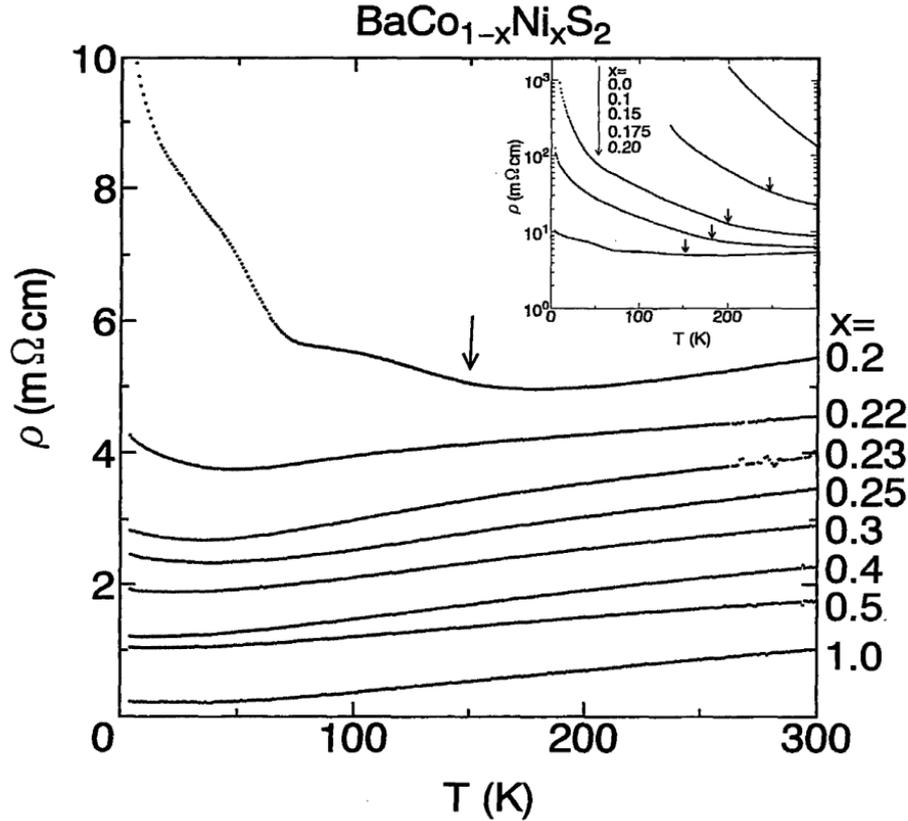
P4/nmm, R=1.9%,

Rw=1.43%

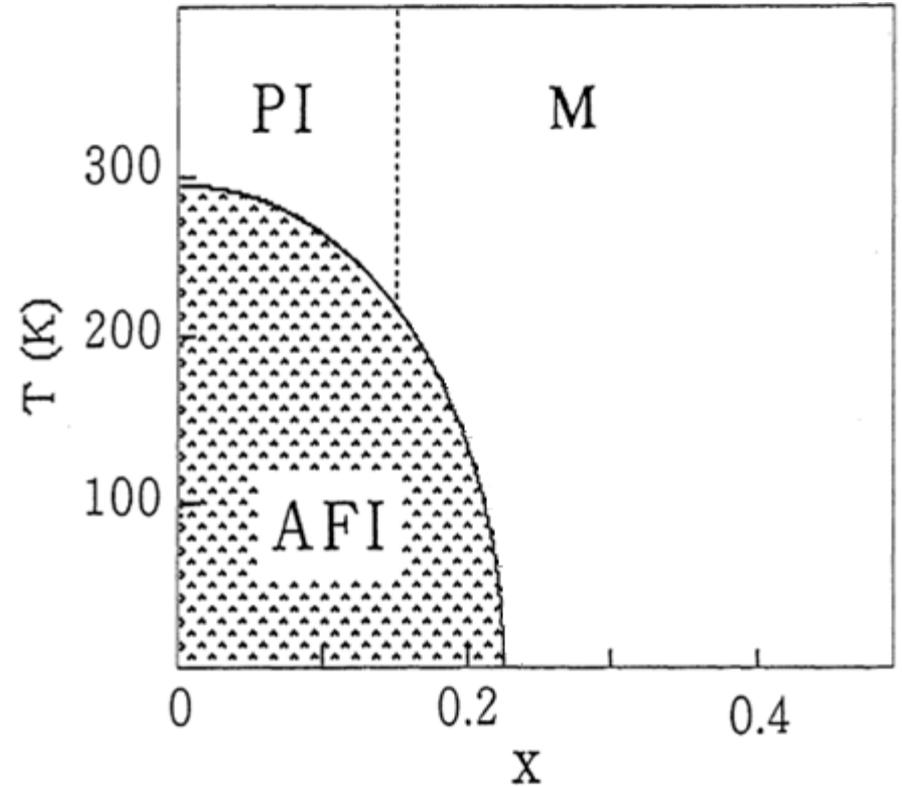
$a = 4.5498(7) \text{ \AA}$, $c =$

$8.908(3) \text{ \AA}$

Transition de Mott dans $\text{BaCo}_{1-x}\text{Ni}_x\text{S}_2$



$$x_{CR} = 0.22[1]$$



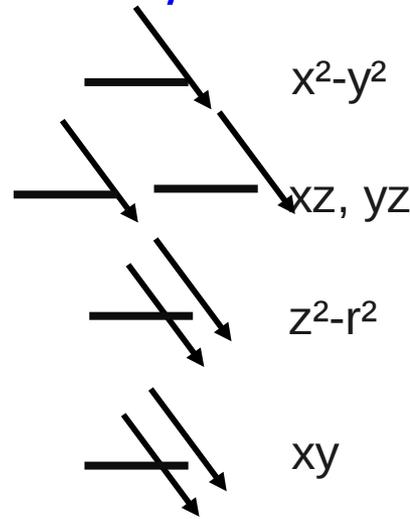
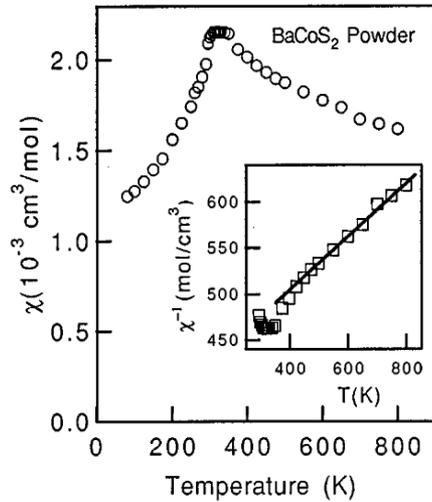
Le mécanisme de la TMI dans ces composés n'est toujours pas compris!

[1]: J. Takeda et al. . *Phys. Soc. Jpn.* 66 (1995) 2550.

[2]: H. Sasaki et al. *J. Phys. Soc. Jpn.* 67 (1998) 4235.

Mécanisme de la MIT ? Modèle ionique:

Co²⁺: 3d⁷ S=3/2



Ni²⁺: 3d⁸

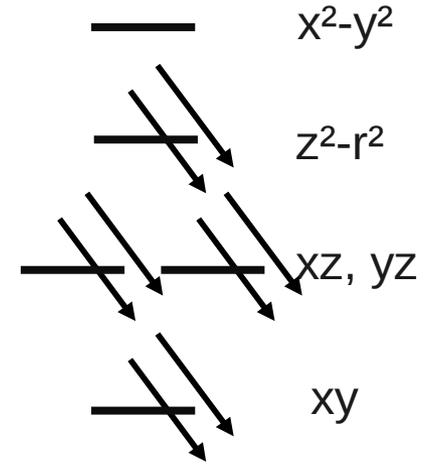
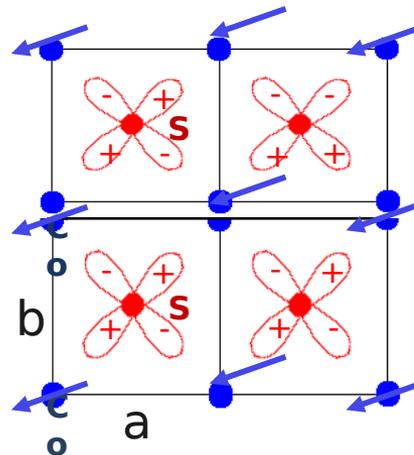


FIG. 2. Magnetic susceptibility of polycrystalline BaCoS₂. The inset shows the inverse susceptibility, and the straight line represents a Curie-Weiss fit to the high temperature portion of the data.

Co²⁺ (HS): $P = 4.3-5.2 \mu B$

Co²⁺ (LS): $P = 1.8-2.0 \mu B$

• Ici $P(\text{fit})[2] = 5.26 \mu B$

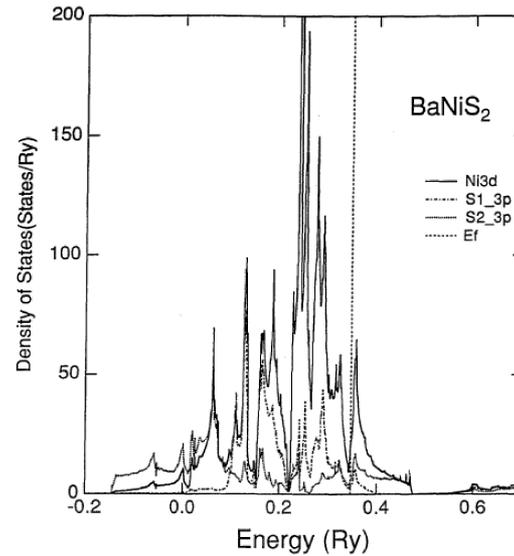
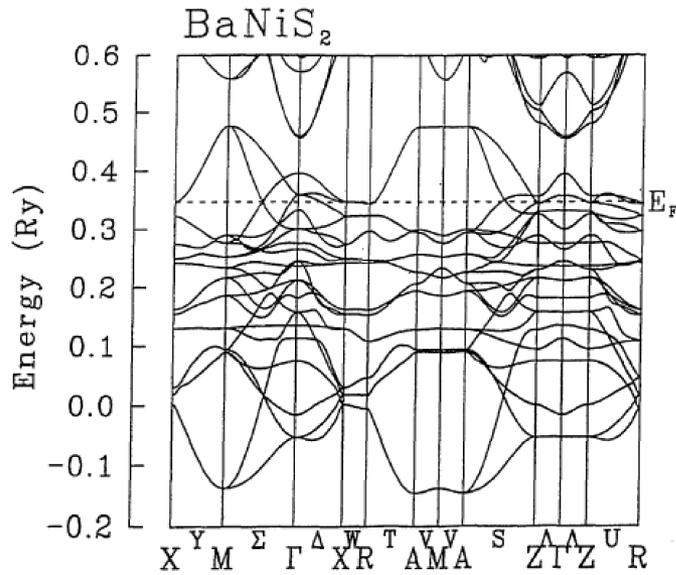


Structure AFM[2] à 20K
(plan ab)

[1] K. Kodoma et al., *J. Phys.Soc. JPN.* 65 1782 (1996)

[2]: D. Mandrus *J. Appl. Phys.* 81, 4620 (1997)

Calcul de bandes



Modèle rigide:
Prédiction d'un Etat
métallique [1] de même
pour le BaCoS2[2], [3]

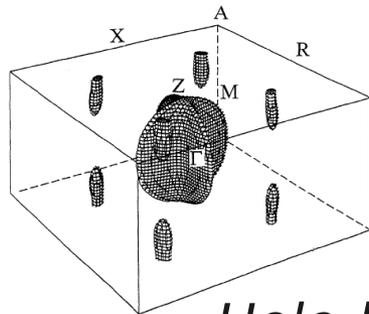


Expérimentalement
BaCoS2 est isolant!

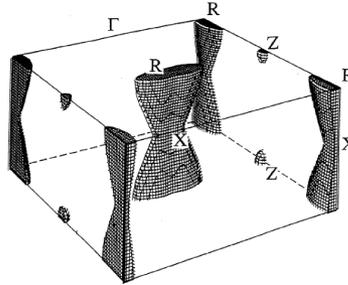


3 bandes au niveau de Fermi:

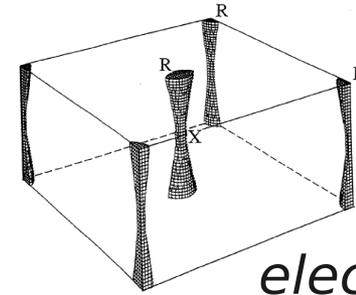
- $3d_{x^2-y^2}$, $3d_{z^2-r^2}$, $3d_{xz}$ et $3d_{yz}$
- Surface Fermi: BaNiS2



Hole-like



electron-like



electron-like

Système fortement corrélé

Confirmé par les calculs
LDA+U[4].

[1]: L. F. Mattheiss, Solid State Commun. 93 (1995) 879 [3]: T. Sato et al., PRB, 64 (2001)
[2]: I. Hase, et al. J. Phys. Soc.Jpn. 64 (1995) 2533 [4]: V. M. Zainullina et al. Phys. Solid State 53 (2011) 978.

Ba(Co,Ni)S₂: Motivation

- Sulfure (ionocité modérée) 2D réseau carré
- Structure simple: 3 paramètres libres: $Z(\text{Co,Ni})$, Z_{Ba} , Z_{S1}
- Transition de Mott isolant AFM \Rightarrow Métallique PM
 **Système unique !**

Questions ouvertes:

Mécanisme de la TMI Mott

- Evolution, en fonction de x , de la hiérarchie et de l'occupation des 3 bandes
 - Peu de données expérimentales sur monocristaux

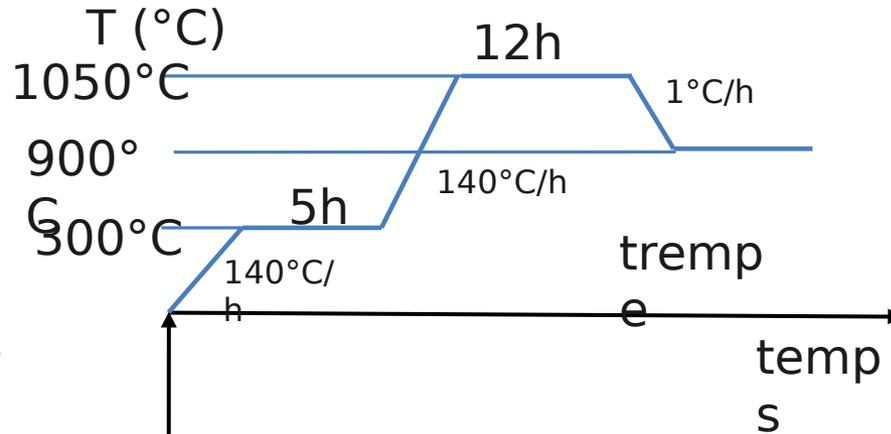
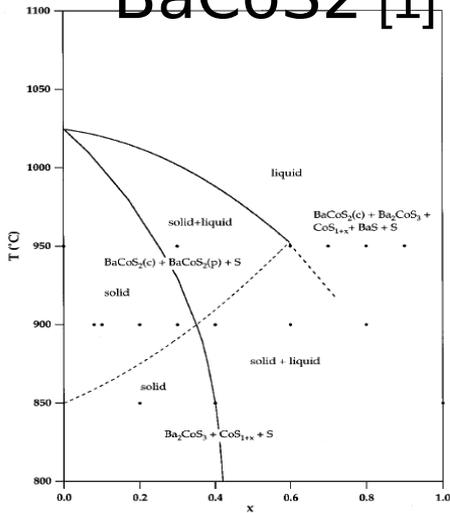
\Rightarrow **Besoin de monocristaux de bonne qualité**

\Rightarrow **Mesures de transport**

Synthèse de monocristaux

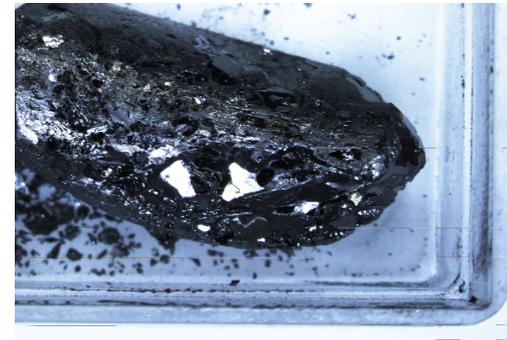
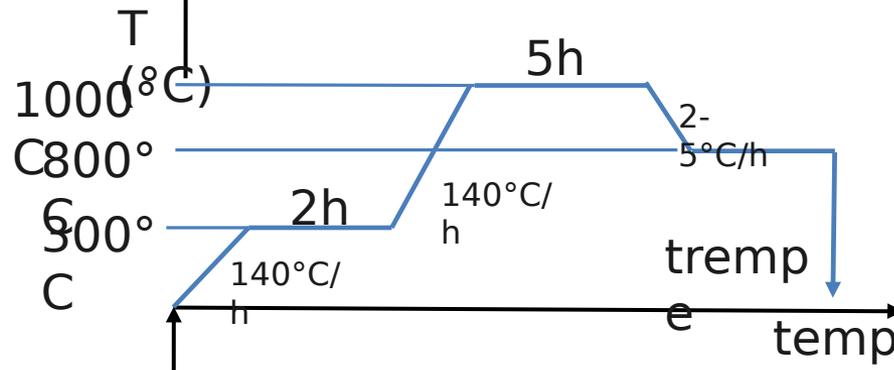
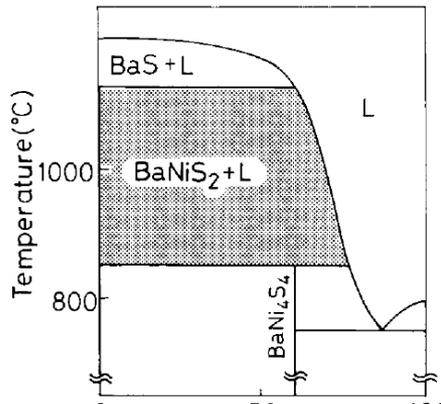
Tube scellé sous vide
Dans un creuset en graphite

BaCoS2 [1]



0,5cm

BaNiS2 [2]

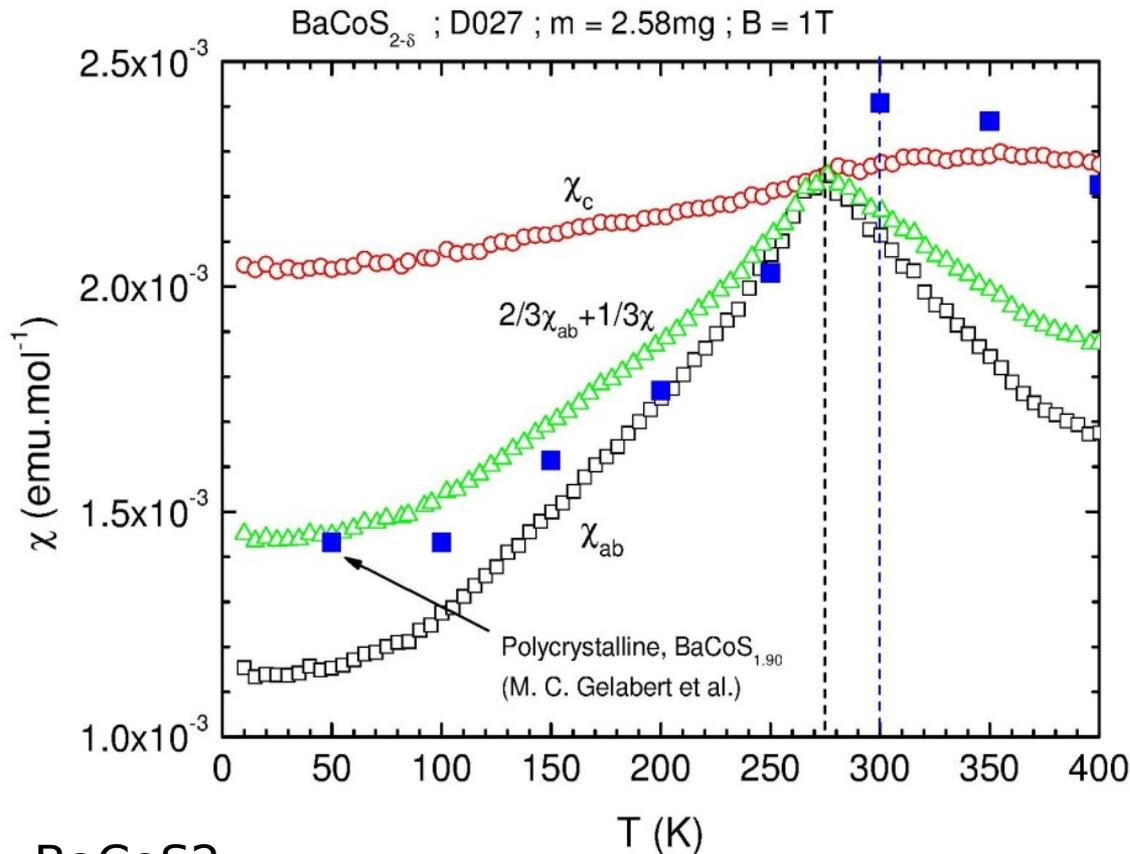


1cm

[1] : M.C Gelabert *Journal of Phys. State. Chem* 127 (1996)

[2] : S. Shamoto, et al. *journal of crystal growth* 154 (1995) 197.

Susceptibilité magnétique de BaCoS2



Suivant 2 axes: χ_{ab} ,
 χ_c
=> Anisotropie

Mesuré (cristaux):
TN ~ 275K

M. C. Gelabert et al.
[1] (polycristaux):
TN ~ 300K

=> Lacunes de
soufre?

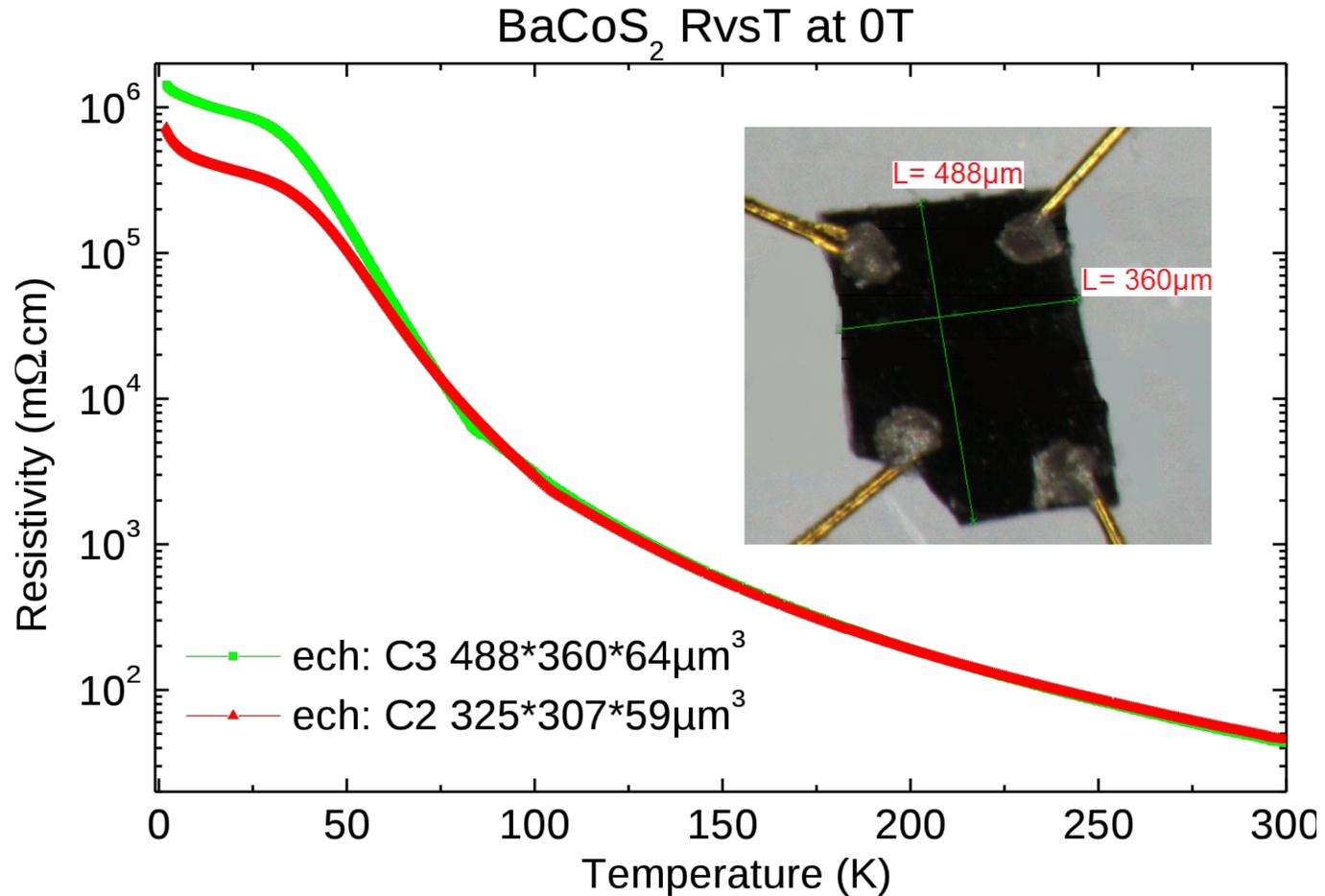
BaCoS2 :

- Isolant de Mott
- Antiferromagnétique, TN ~ 275 K - 300K

[1] : M.C Gelabert Journal of Phys. State. Chem 127 (1996)

[2] : D. Mandrus et al. J. Appl. Phys. 81 (1997) 4620

Mesure de transport dans BaCoS₂

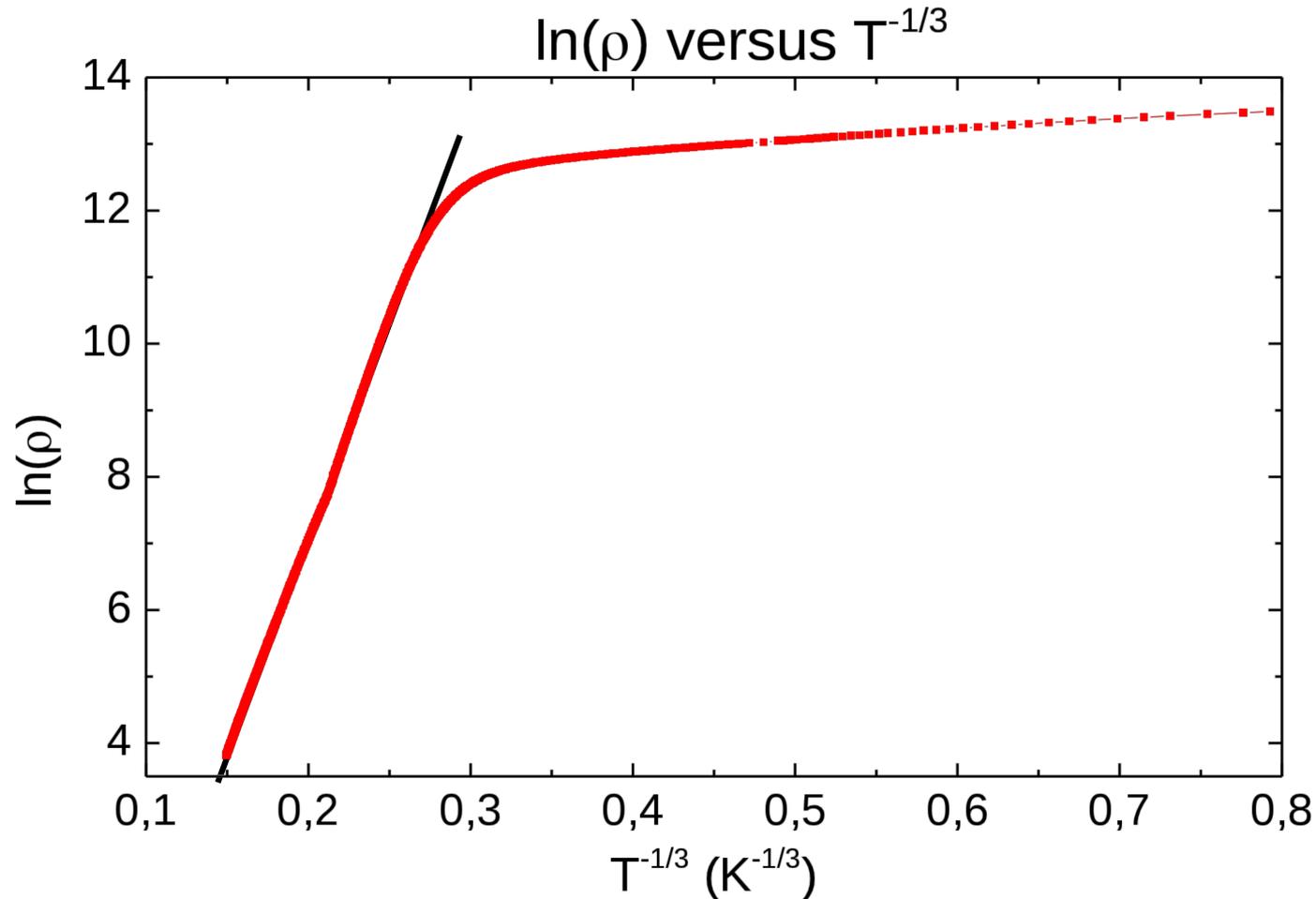


$\rho_{\text{C3}}(300\text{K}) = 43.3 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$

$\rho_{\text{C2}}(300\text{K}) = 45.4 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$

Littérature [1] : $\rho(300\text{K}) \sim 100 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$

Mécanisme de transport 2D dans BaCoS2?



$$\rho(T) \propto \exp\left[\frac{T_0}{T}\right]^{1+d}$$

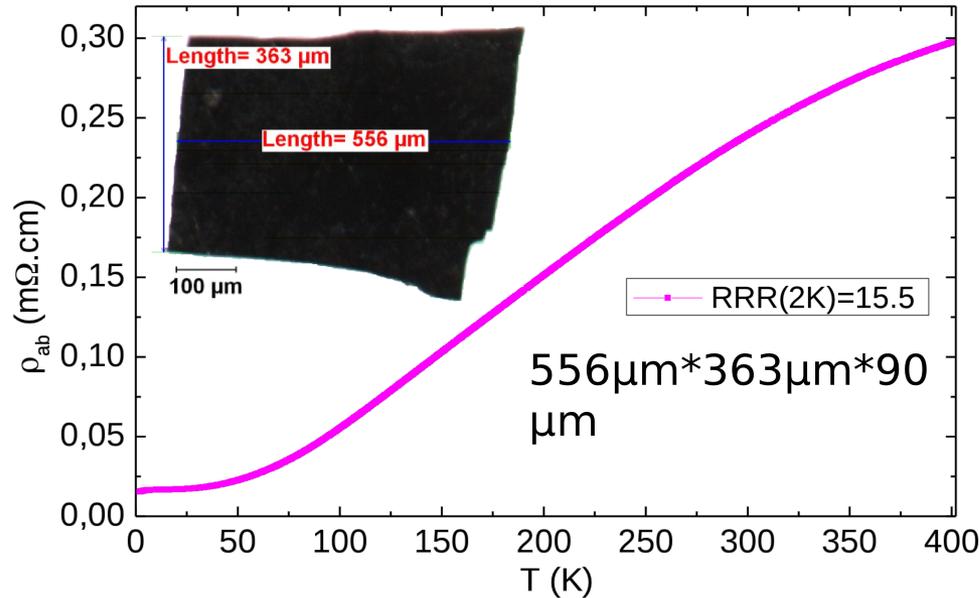
Variable range hopping:

Dimension du saut: 2D

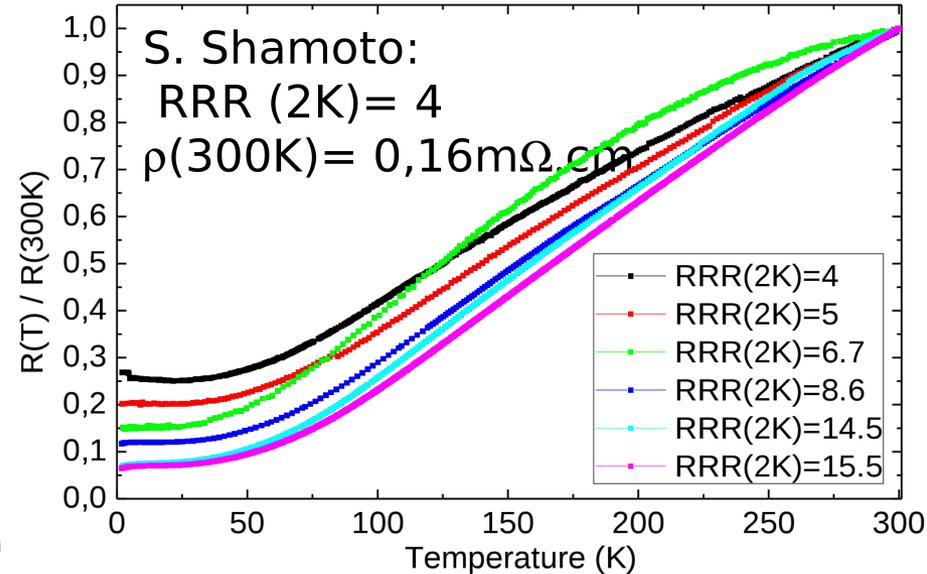
Energie du saut: $T_0=273\ 000\text{K} \rightarrow \sim 24\text{eV}$

Transport métallique dans BaNiS₂

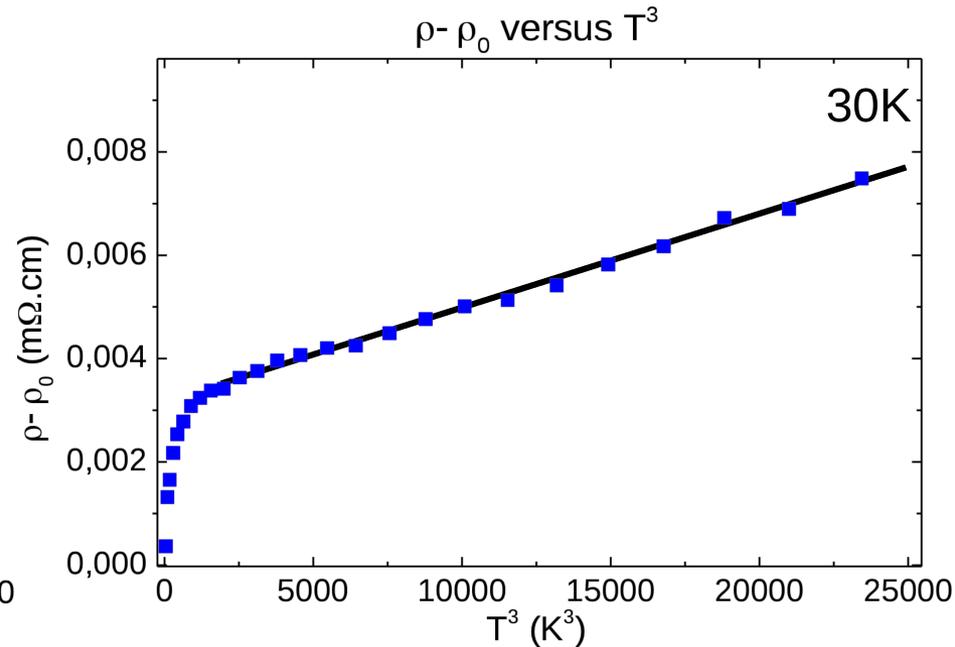
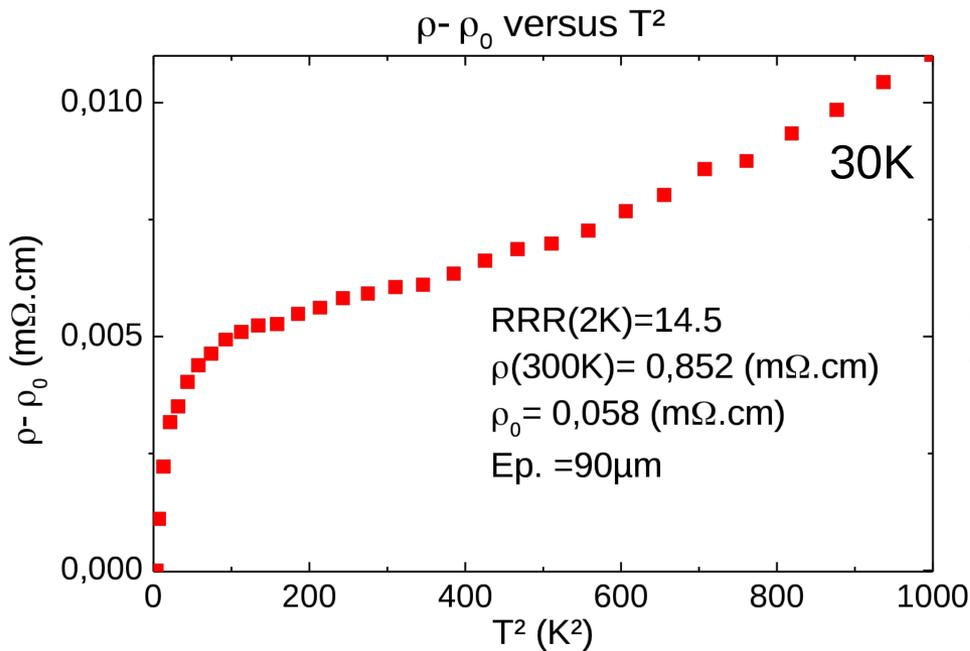
BaNiS₂ resistivity versus Temperature



BaNiS₂ R(T) / R(300K) versus Temperature



Bonne qualité des cristaux:
RRR max= 15.5 => 4 fois mieux que la
littérature[1] (RRR=4)

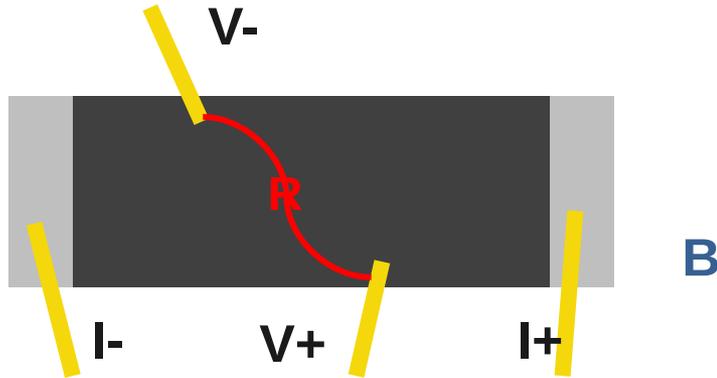


- Pas un comportement liquide de fermi
- Comportement en $T^3 \Rightarrow ?$
 \Rightarrow Conducteur organique :(DI-DCNQI) $_2$ Ag[1]
- Faible réduction de 8% de la résistivité en dessous de 10K

[1] T. Itou et al. PRL 21 (2004)

Magnétotransport

Configuration barre



Partie impaire de R:

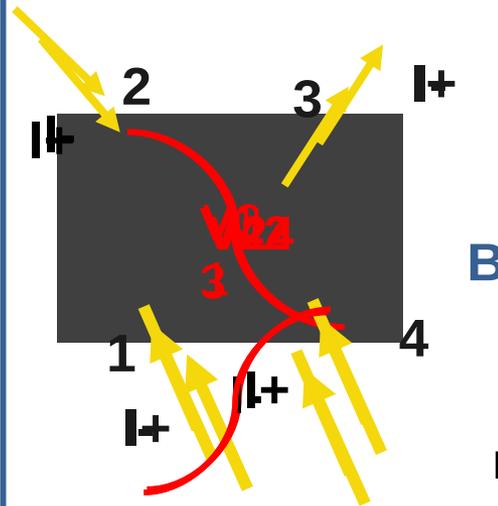
$$R_{xy} = \frac{R(B) - R(-B)}{2} \quad R_H = \frac{R_{xy}}{B} ep$$

Partie paire de R:

$$R_{xx} = \frac{R(B) + R(-B)}{2}$$

$$MR = \frac{R_{xx}(B) - R_{xx}(0T)}{R_{xx}(0T)}$$

Configuration van der Pauw



Conditions:

ep constante
ep << L

Mesures:

I13 => V24 (B) et V24 (-B)

I31 => V42 (B) et V42 (-B)

I24 => V13 (B) et V13 (-B)

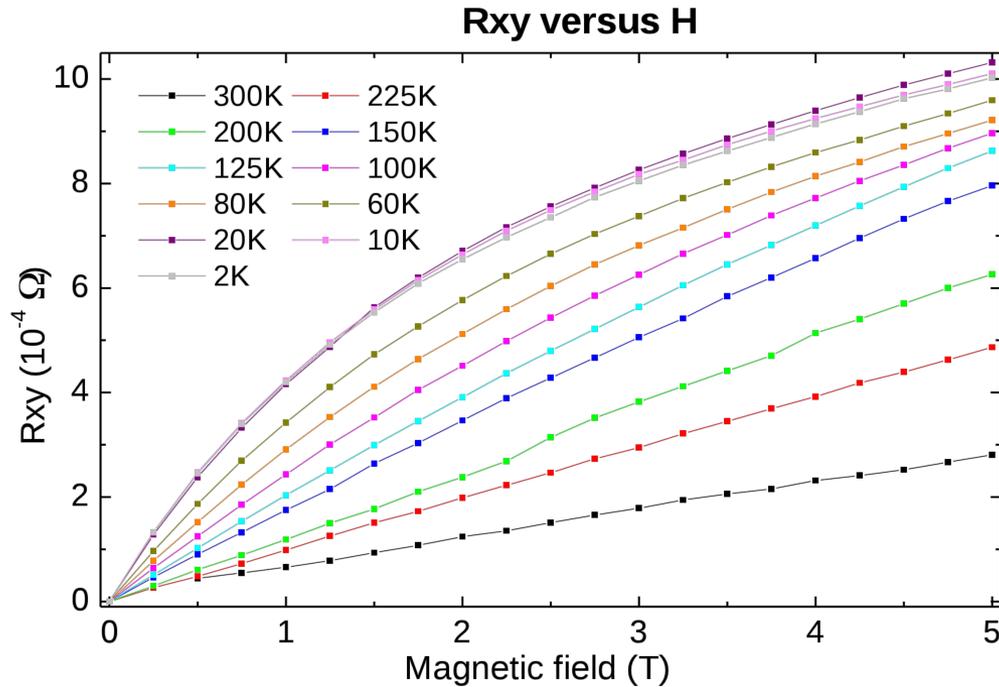
I42 => V31 (B) et V31 (-B)

$$V_H = \frac{\sum [V_{i,j}(B) - V_{i,j}(-B)]}{8} \quad R_H = \frac{V_H}{I \cdot B} ep$$

$$V_{MR} = \frac{\sum [V_{i,j}(B) + V_{i,j}(-B)]}{8}$$

$$MR = \frac{V_{MR}(B) - V_{MR}(0T)}{V_{MR}(0T)}$$

Mesure d'effet Hall dans BaNiS2



T < 150K \Rightarrow RH dépend de B (pour B > 0.5T)

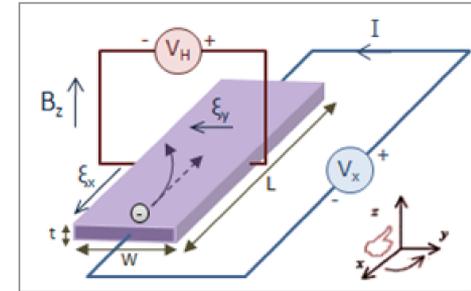
Pourquoi ?

- **Deux types de porteurs (ex: électrons et trous)**
- **$\Rightarrow \omega\tau \ll 1$ (car monocristal) $\Rightarrow \mu \cdot B$ pas négligeable**

$$R_H = \frac{(p - b^2n) + (\mu_n B)^2(p - n)}{q[(p + bn)^2 + (\mu_n B)^2(p - n)^2]}$$

Avec :

- **$b = \mu_n / \mu_p$; $q = |e|$; n, p : concentration électrons, trous**



$$\omega_{n,p} = \frac{eB}{m_{n,p}}$$

$$\mu_{n,p} = \frac{e\tau_{n,p}}{m_{n,p}}$$

$$\mu_{n,p} B = \omega_{n,p} \tau_{n,p}$$

Cas 1 type de porteurs (p):

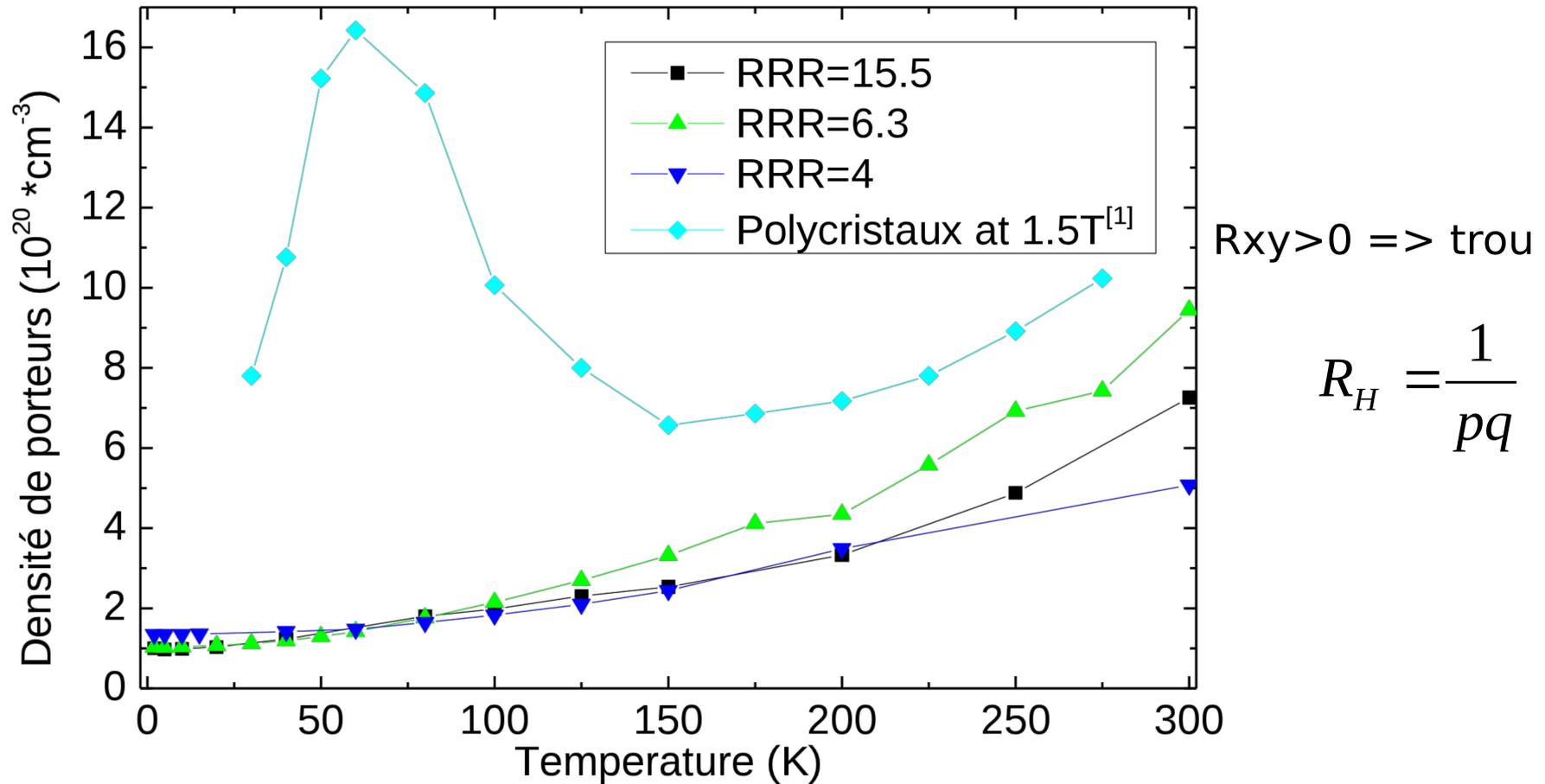
$$R_H = \frac{1}{pq}$$

Cas 2 type de porteurs avec $\mu \cdot B \ll 1$:

$$R_H = \frac{(p - b^2n)}{q[(p + bn)^2]}$$

Effet Hall dans BaNiS2 monocristaux Vs polycristaux

Hypothèses: 1 seul type de porteurs contribue et $B < 1T \Rightarrow \mu B \ll 1$

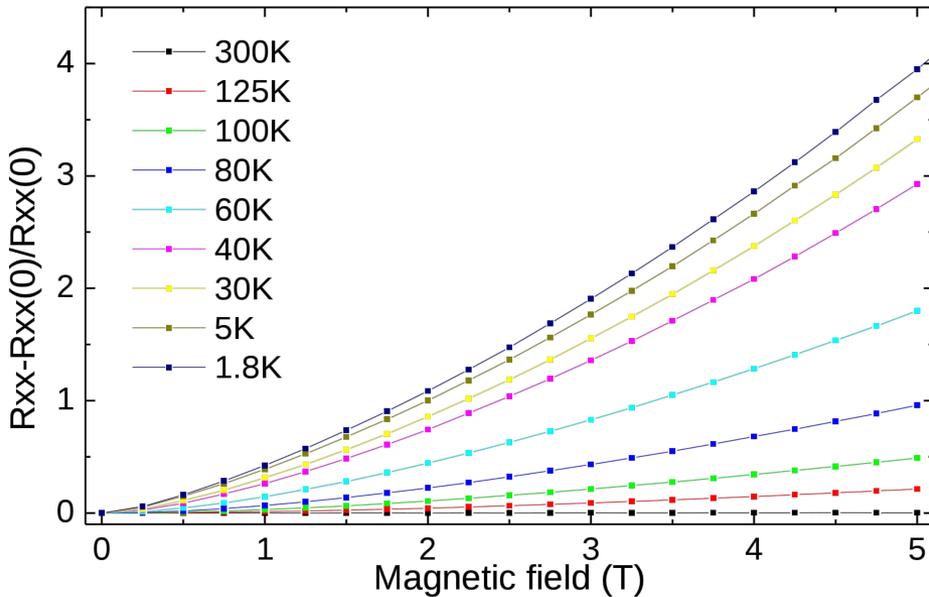


Bon ordre de grandeur pour un semi-métal $\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$

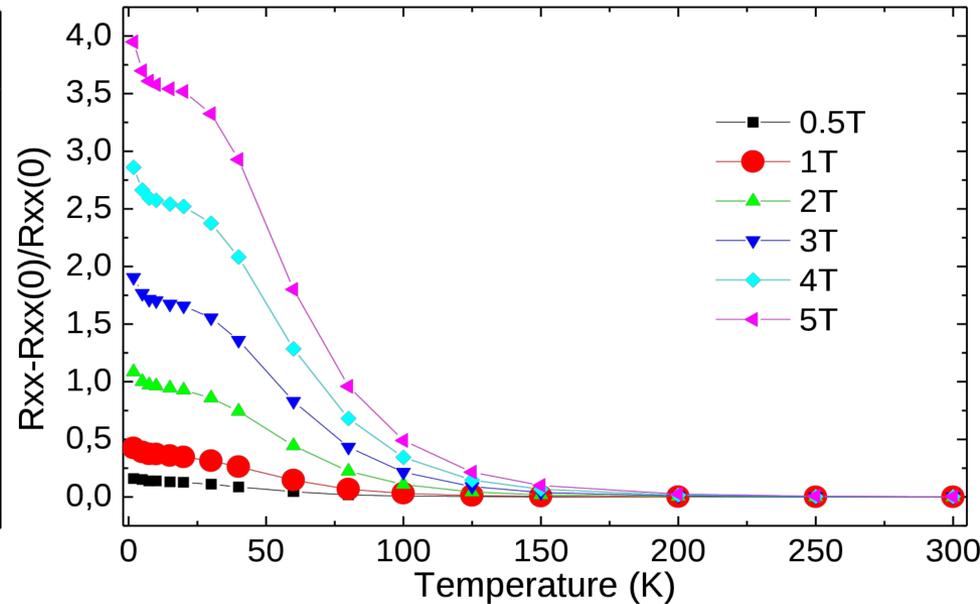
[1]: J. Takeda et al. J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 2550

Magnétorésistance transverse dans BaNiS2

Magnetoresistance versus H



Magnetoresistance versus T



- Magnétorésistance $\sim 400\%$ à 1.8K

Hypothèses :

1. BaNiS2 semi-métal compensé ($p \sim n$)
2. Temps relaxation (τ) très anisotrope

Conclusions

- Synthèse de monocristaux de bonne qualité
- BaCoS₂ suit la théorie de variable range hopping: 2D
- BaNiS₂ n' est pas un liquide de Fermi $\rho \propto T^3$ (pour $T < 30\text{K}$)
- 1eres mesures de magnétotransport sur monocristaux
- Effet hall dépend de B à basse T°, $p \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$
- Magnéto-résistance compatible avec:
 1. Semi-métal compensé
 2. Surface de Fermi anisotrope

Perspectives

- Surface de Fermi: ARPES et oscillations quantiques
- Contribution du moment magnétique orbital et spin : XMCD

Merci de votre attention