# PARTICULARITĂȚILE EFECTELOR GALVANOMAGNETICE ÎN CÂMPURI MAGNETICE PUTERNICE ÎN BICRISTALE DE TORSIUNE ALE IZOLATORULUI TOPOLOGIC 3D Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 $\leq$ x $\leq$ 0.2) Fiodor MUNTEAN<sup>1</sup>, dr. hab., prof. univ. Eugeniu GHEORGHIȚĂ<sup>2</sup>, dr. hab., prof. univ. Viorel MUNTEANU<sup>1</sup>, doctorand Victoria BEJAN<sup>2</sup>, doctorand Vitalie CHISTOL<sup>3</sup>, dr., conf. univ. <sup>1</sup> Institutul de Inginerie Electronică și Nanotehnologii al AŞM, 2028 Chisinau, Moldova

# <sup>1</sup> Institutul de Inginerie Electronică şi Nanotehnologii al AŞM, 2028 Chisinau, Moldova <sup>2</sup> Universitatea de Stat din Tiraspol, 2069 Chişinău Moldova <sup>3</sup> Universitatea Tehnică a Moldovei, 2004 Chisinau, Moldova

**Rezumat**. Se prezintă rezultatele studiului efectelor galvanomagnetice în bicristale de torsiune ale aliajelor  $Bi_{1-x}Sb_x$  (0.07 < x < 0.15) în câmpuri magnetice puternice (de până la 40T), direcționate în planul interfețelor cristaline. S-a depistat că în bicristalele cu unghi mic de torsionare tranzițiile semiconductor-semimetal sunt induse în cristalite și straturile componente ale interfeței la diferite valori ale câmpului magnetic, ceea ce indică o schimbare semnificativă a interacțiunii spin-orbită. Pe de altă parte, în bicristalele cu unghi mare de torsionare în aceleași regiuni ale câmpului magnetic asemenea tranziții nu se detecteză, dar se manifestă în mod evident oscilații cuantice, care denotă densități mai înalte de stare în componentele interfețelor, precum și purtători de sarcină cu masa mult mai mare ca în cristalite. Datele obținute certifică diverse stări electronice în isolatorul topologic 3D, induse și controlate de unghiul de dezorientare a cristalitelor și de câmpul magnetic aplicat.

**Abstract**. We report an investigation of the galvanomagnetic effects of twisting bicrystals of  $Bi_{1-x}Sb_x$  (0.07 < x < 0.15) in high (up 40T) magnetic fields, directed along the crystallite interface plane (near the C<sub>3</sub> axes of crystallites). It has been found that in bicrystals with small crystallite disorientation angle, the semiconductor-semimetal transition is induced in crystallites and interface layers at different values of magnetic field. On the other hand, in the same region of magnetic fields a semiconductor – semimetal transitions in large disorientation angle interfaces are unlikely, but clearly manifest the quantum oscillations of galvanomagnetic effects, denoting the high density of state in layer components of CI and the heavier than in crystallites charge carriers.

#### I. INTRODUCERE

Aliajele semiconductoare cu bandă interzisă îngustă Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15), posedănd o ordine a benzilor energetice în punctele *L* inversă relative celei a Bi, precum și o bandă interzisă (gap) indirectă între L- minimum electronic și T- maximum goluri, sunt niște isolatori tridimensionali topologici (3D TI), cu proprietăți semiconductoare în bulk, dar care manifestă stări de suprafață metalice protecționate.<sup>1-4</sup> La general, 3D TI este un material cu gap de excitație electronică în bulk , număr impar de inversări de bandă, stări de suprafață Dirac asimetrice,<sup>5</sup> stări spin polarizate de interacțiunea spinorbită, care conectează benzile de valență și de conducție bulk într-un mod topologic non-trivial.<sup>6</sup> Având o structură de bandă excepțională în bulk și la suprafață,<sup>6,7</sup> aliajele  $Bi_{1-x}Sb_x$  (0.07 < x < 0.15) oferă o posibilitate unică de a studia efectul câmpului magnetic puternic asupra mișcării purtătorilor de sarcină, care conduce la: (i) schimbări drastice în dimensionalitatea sistemului electronic, (ii) la diverse tranziții electronice de fază.<sup>8,9</sup>

Efectele galvanomagnetice sunt foarte atractive pentru evaluarea caracteristicilor purtătorilor de sarcină în cazul limitei ultracuantice (UQL) și pentru elucidarea specificului tranzițiilor electronice de fază induse de câmpul magnetic. UQL-ul sistemului electronic poate fi obținut la temperaturi joase și în câmpuri magnetice puternice și permite efectuarea unor studii ale sistemului electronic în condițiile când doar ultimul nivel Landau este populat. Bicristalele Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15), constituite din două cristalite monocristaline cu 3D TI proprietăți și o interfață cristalină(CI) supraconductoare de grosimi nano, conduc la oportunitatea unică de a investiga interacțiunea purtătorilr de sarcină în diferite sisteme solide, inclusiv quasi 2D supraconductor-TI interfață.<sup>10</sup>

În prezenta lucrare se raporteză resultatele măsurătorilor magnetoresistenței și efectului Hall în bicristale de torsiune ale 3D TI  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  (0.07 < x < 0.15) pentru a elucida particularitățile sistemului electronic în câmpuri magnetice puternice, în special la limită ultracuantică. La aceste bicristale, stările cuantice topologic distincte pot fi racordate prin dopaj, schimb de unghi de dezorientare sau cu ajutorul câmpului magnetic aplicat.<sup>11</sup>

#### **II. PROCEDURI EXPERIMENTALE**

Bicristalele de torsiune ale aliajelor Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15) au fost preparate prin metoda recristalizării zonare, utilizind germenul dublu. Eșantioanele pentru masurători au fost fabricate în formă de bare rectangulare (1x2x4 mm<sup>3</sup>), fracțiunea de volum a CI coraportată la volumul total a bicristalului constituia ~ 10<sup>-4</sup>. Compoziția eșantioanelor a fost controlată cu SEM echipat cu Oxford și PV 9800 energy-dispersive X-ray (EDX) analyzers, precum și prin metodele spectometriei optice de emisie folosind Jobin-Yvon spectrometr JY-38-S. Au fost studiate două grupe de bicristale: cu unghi mic de dezorientare (SDA,  $\theta_1 < 9^\circ$ ) și cu unghi mare de dezorientare (LDA,  $\theta_1 > 12^\circ$ ) a cristalitelor. Definiția lui  $\theta_1$  este dată în insetul Figurei 1(a). Lățimea interfețelor cristaline de ~100 nm a fost estimată prin intermediul microscopiei electronice de scanare (SEM) și prin valoarea câmpului magnetic la care oscilațiile cuatice încep să se developeze. Magnetorezistența și efectul Hall s-au studiat după tranziția arealului CI în stare normală (non-supraconductibilă), aplicînd câmpul magnetic ori/și curentul electric. Masurătorile au fost efectuate în câmpuri magnetice staționare (până la 18 T) și de impuls (până la 40 T), orientate în planul CI, în apropierea axelor *C*<sub>3</sub> ale cristalitelor. Interfețele cristaline ale bicristalelor  $Bi_{1-x}Sb_x$  manifestă simultan proprietăți feromagnetice și supraconductibile cu o temperatură critică onset ~36 K,<sup>12,13</sup> în timp ce monocristalele masive nu sunt nici supraconductoare nici feromagnetice. Interfața cristalină este compusă, la rîndul ei, dintr-un strat solitar cu ~60 nm grosime și două straturi similare adiacente de ~20 nm, amplasate din ambele părți ale stratului central.<sup>12</sup>

Investigațiile au fost efectuate în Laboratorul Internațiolnal de Temperature Joase și Câmpuri Magnetice Puternice din Wroclaw, Polonia.

## III. REZULTATE ȘI DISCUȚII

Monocristalele aliajelor  $Bi_{1-x}Sb_x$  (0.07 < x < 0.15) oferă o oportunitate unică de obținere a UQL în câmpuri magnetice mai mici de 40T. În această stare electronii (sau golurile) populeză doar ultimile nivele Landau (j=0), care se pot deplasa în cămp magnetic (vezi Fig.1 (b)) în funcție de raportul dintre despicarea după spin  $\Delta \varepsilon_s$  și cea orbitală  $\Delta \varepsilon_0$ , valoarea deplasării

 $\Delta \varepsilon = \frac{1}{2} h\omega \left(1 - \frac{\Delta \varepsilon_s}{\Delta \varepsilon_0}\right)$ . Și mai inportant este faptul, că în camp magnetic ultracuantic se pot realiza tranziții electronice de fază, inclusv tranziții semiconductor-semimetal [8,9].

Fig.1 prezintă dependențele de câmp ale magnetorezistenței  $\Delta \rho / \rho$  în monocristale și SDA bicristale de torsiune ale aliajelor Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15). În cîmpuri magnetice staționare orientate în planul CI se observă (vezi Fig.1a, curba No 3) oscilații Shubnikov- de Haas ordinare doar până la 2 T. În câmpuri magnetice mai puternice de 2T purtătorii de sarcină se află deja în UQL și la B ~8.5 T (vezi maximumul în Fig. 1a) are loc tranziția semiconductor-semimetal concomitent în monocristale (curba No 1), dar și în SDA bicristale (curbele No 2, 3, și 4). Notăm, că la SDA bicristale, primul maximum la dependențele  $\Delta \rho / \rho(B)$  se observă la aceeași valoare a cîmpului magnetic ca și la monocristale, cea ce denotă că tranziția semiconductor-semimetal se induce la cristalitele bicristalelor.

În câmpuri magnetice B>11 T, se face observabil la bicristale un maximum adițional (al doilea). Acest maximum apare în cîmpuri distincte după valoare pentru bicristalele cu diferite unghiuri de dezorientare  $\Theta_1$  și  $\Theta_2$ . Se poate afirma cu certitudine, că maximul secund reflectă tranziția semiconductor-semimetal în straturile adiacente ale CI din SDA bicristale. Tranziția apare la valori complet diferite ale câmpului magnetic, astfel că masele ciclotronice ale purtătorilor de sarcină relevanți și coraportul despicărilor după spin și orbită ale nivelelor energetice  $\Delta \varepsilon_s / \Delta \varepsilon_o$  în cristallite și în aria CI a SDA bicristalelor diferă considerabil. Aceasta implică o creștere semnificativă a interacțiunii spin-orbită și denotă existență unor stări electronice gaples la interfața bicristalelor.



Fig.1. Magnetoresistenţa Δρ/ρ versus câmpul magnetic în monocristale şi SDA bicristale de torsiune (vezi textul) ale 3D isolator topologic Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (x = 0.08 şi 0.09) la 4.2 K. (a) Resultatele obținute în câmpuri magnetice staționare: (1) monocristale, x = 0.08; (2), (3), şi (4) bicristale, x = 0.08.
Caracteristicele unghiulare: (2) Θ<sub>1</sub> = 4°, Θ<sub>2</sub> = 2°; (3) Θ<sub>1</sub> = 1°, Θ<sub>2</sub> = 4°; (4) Θ<sub>1</sub> = 9°, Θ<sub>2</sub> = 2°. (b) Resultatele obținute în cămpuri magnetice de impuls: (1) monocristale, x = 0.08; (2) şi (3) bicristale: (2) x = 0.08, Θ<sub>1</sub> = 4°, Θ<sub>2</sub> = 2°; (3) x = 0.09, Θ<sub>1</sub> = 12°, Θ<sub>2</sub> = 2°. Săgețile indică valorile câmpului la care se produc tranzițiile semiconductor-semimetal: primele (la câmpuri mai slabe) pentru bicristale şi monocristale şi secundare şi

terțe doar pentru bicristale. Fig.1a inset: Diagrama schematică a bicristalului cu IC de torsiune;  $\Theta_1$  unghiul de dezorientare a cristalitelor ,  $\Theta_2$  – unghiul de rotație în planul interfeței. Fig. 1b inset: Evoluția benzilor energetic în câmp magnetic UQL în bulk (cristalite) Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15). B<sub>C1</sub> este valoarea câmpului magnetic critic a tranziției semiconductor-semimetal.

Rezultatele obținute în câmpuri magnetice de impuls sunt prezentate în Fig.1b. La câmpuri mai puternice de 25 T apare al treilea maximum, care poate fi atribuit tranziției semiconductor-semimetal în stratul central al CI. Curbele No (2) în Fig.1a și 1b sunt obținute pentru același bicristal. Maximumul secund în Fig.1b se manifestă în cîmpuri mai puternice, probabil, din cauza efectelor de încălzire, conexate cu măsurătorile în camp magnetic de impuls.

Particularități  $\Delta \rho / \rho$  specifice tranziției semiconductor-semimetal nu au fost depistate la LDA ( $\Theta_1 > 12^\circ$ ) Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> bicristale. În schimb, la acestea apar niște harmonice ale oscilațiilor cuantice  $\rho_{ii}(B)$  și Hall-efect longitudinal  $\rho_{ij}(B_i)$ , similare celor observate la bicristale de Bi.<sup>14</sup> Oscilații vizate sunt prezentate în Fig. 2 și, desigur, se atribue specificului proprietăților suprafeței Fermi din arealul interfețelor.

Spectrele oscilațiilor LDA bicristalelor Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> au fost analizate grafic în baza poziției piscurilor oscilațiilor B<sub>n</sub> versus indicelui nivelului *n*, unde *B<sub>n</sub>* este câmpul la care nivelul Fermi trece printre două nivele Landau consecutive. Relația dintre *B<sub>n</sub>* și *n* se descrie prin formula:  $1/B_n = ne/(hN_s)$ , unde: *e* este sarcina elementară, *h* constanta Planck, și *N<sub>s</sub>* densitatea stărilor de suprafață. Dependențele *B<sub>n</sub>-n* obținute pentru trei LDA bicristale sunt redate în insetul Fig. 2. Au fost depistate două frecvențe conexate cu suprafață Fermi a straturilor centrale și adiacente ale interfețelor. În insetul Fig. 2, acestea corespund: liniile (1) și (3) la bicristalul cu curbele oscilatorii (2), liniile (2) și (5) la bicristalul cu curbele oscilatorii (1), și în sfîrșit linia (4) la bicristalul cu curbele oscilatorii (3). Rezultatele obținute denotă că stările electronice la CI sunt de tipul Schrödinger, dat fiind faptul că *n* preia valori întregi (pentru electronii Dirac,  $n_D = n+\frac{1}{2}$ ). La bicristalele Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> nu s-au înregistrat anomalii ale efectului Hall longitudinal (quasi-platouri, deplasamentul piscurilor oscilațiilor, *etc.*) altele decât cele reportate pentru bicristalel de Bi.<sup>15</sup>



**Fig.2.** Oscilațiile cuantice  $\rho_{ii}(B)$  și  $\rho_{ij}(B_i)$  în LDA bicristale de torsiune ale aliajelor Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (x = 0.08, 0.12, 0.15) și Bi<sub>0.93</sub>Sb<sub>0.07</sub>Te at 4.2 K: (1)  $\rho_{ii}(B)$ , x = 0.08,  $\Theta_1 = 15^\circ$ ,  $\Theta_2 = 3^\circ$ ; (2)  $\rho_{ij}(B_i)$ , x = 0.12,  $\Theta_1 = 12^\circ$ ,  $\Theta_2 = 2^\circ$ ; (3)  $\rho_{ii}(B)$ , Bi<sub>0.93</sub>Sb<sub>0.07</sub>Te,  $\Theta_1 = 19^\circ$ ,  $\Theta_2 = 2^\circ$ ; (4)  $\rho_{ii}(B)$ , x = 0.15,  $\Theta_1 = 15^\circ$ ,  $\Theta_2 = 3^\circ$ . Inset: Indicele nivelelor Landau *n*, versus posiției  $B_n^{-1}$  a piscurilor oscilațiilor: dependențele (2) și (5) au fost obținute pentru curbele oscilatorii (1), (1) și (3) pentru curbele (2) iar (4) pentru curbele oscilatorii (3).

S-a constatat, că masele ciclotronice ale purtătorilor de sarcină, evaluate din dependențele de temperatură ale amplitudinilor oscilațiilor, precum și ariile secțiunilor

transversal ale suprafeței Fermi a straturilor CI depășesc de câteva ori pe cele observate la cristalite.<sup>16</sup> De exemplu, în câmp magnetic orientat de-a lungul planului interfeței la LDA Bi<sub>0,93</sub>Sb<sub>0,07</sub>Te bicristale, masele ciclotronice ale purtătorilor de sarcină  $m_c/m_e$  (unde  $m_e$  este masa electronului liber) în cristallite (bulk) și straturile centrale și adiacente ale CI sunt: 0.05, 0.25 și 0.5, respectiv. Oscilațiile cuantice în LDA bicristale Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> posedă caracteristici spectrale similare cu cele ale Bi, deși acesta este un semimetal tipic, iar aliajele Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15) sunt semiconductori cu banda interzisă îngustă. Densitatea stărilor straturilor  $N_s$  la CI ale LDA bicristale Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> a fost estimată din oscilațiile cuntice conform metodicii descrie în.<sup>17</sup> Valorile  $N_s$  constitue (0.2-0.3) 10<sup>19</sup> m<sup>-2</sup> și (1.5-2.5) 10<sup>19</sup> m<sup>-2</sup>, pentru straturile adiacente și stratul central, respectiv, ceea ce este cu câteva ordine mai înalt decât  $N_s$  obținut la pelicule subțiri a aliajelor Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>.<sup>18</sup>

Toate aceste rezultatele indică faptul că straturile CI ale LDA bicristalelor 3D TI  $Bi_{1-x}Sb_x$  (0.07 < x < 0.15) sunt puternic degenerațe, adică benzile relevante conțin stări care captează purtători de sarcină mult mai grei decât în cristallite.

### **IV. CONCLUZII**

Au fost specificate caracteristicile cuantice ale bicristalelor de torsiune ale 3D izolator topologic Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> (0.07 < x < 0.15). La SDA bicristale au fost depistate tranzții semiconductor-semimetal induse de câmp magnetic puternic mai întâi în cristalite (bulk) la ~8.5 T, iar apoi în câmpuri mai înalte și în straturile central și adjacent ale nanointerfețelore cristaline. La LDA bicristale, tranzții semiconductor-semimetal nu au fost observate. În schimb, la aceste bicristale au fost revelate oscilații cuantice ale efectelor galvanomagnetice în straturile CI, care caracterizază o densitate mai înaltă de stare și purtători de sarcină mai grei decât în bulk. <sup>19</sup> Bicristalele investigate par a fi obiecte de studiu utile în cercetările exotice a fizicii moderne, precum ar fi: superfluidul topologic, sistemul supraconductibil fermionic cu puncte Dirac nodale, Majorana mode<sup>20-24</sup> și spin Hall faze cuantice.<sup>6</sup>

#### **BIBLIOGRAFIE**

- (1) Fu, L.; Kane, C. L. *Phys. Rev. B* 2007, *76*, 045302.
- (2) Bernevig, B. A.; Hughes, T.; Zhang, S. C. Science 2006, 314,1757.
- (3) Moore, J. E. *Nature* 2010, *464*, 194-198.
- (4) Fu, L.; Kane, C. L.; Mele, E. J. *Phys.Rev.Lett.* 2007, *98*, 106803.
- (5) Teo, J. C. Y.; Fu, L.; Kane, C. L. *Phys. Rev. B* 2008, 78, 045426.
- (6) Hsieh, D.; Qian, D; Wray, L.; Xia, Y.; Hor, Y.; Cava, R. J.; Hasan, M. Z. *Nature* (*London*) 2008, 452, 970.

(7) Brandt, N. B.;. Ponomarev, Ya. G.; Chudinov, S. M. J. Low Temp. Phys. 1972, 8, 389.

- (8) Fenton, E. W. Phys. Rev. 1968, 170, 816.
- (9) Brandt, N. B.; Chudinov, S. M. J. Low Temp. Phys. 1972, 8, 339.
- (10) Qi, X. L.; Zhang, S. C. Rev. Mod. Phys. 2011, 83, 1057-1110.
- (11) He, L. P.; Hong, X. C.; Dong, J. K.; Pan, J.; Zhang, Z.; Zhang, J.; Li, S. Y. *Phys. Rev. Lett.* 2014, *113*, 246402.
- (12) Muntyanu, F. M.; Gilewski, A.; Nenkov, K.; Zaleski, A.; Chistol, V. Solid State Comm. 2008, 147, 183.
- (13) Muntyanu, F. M.; Gilewski, A.; Nenkov, K.; Rogacki, K.; Zaleski, A. J.; Fuks G.; Chistol, V. *Physics Lett. A* 2014, *378*, 1213.
- (14) Muntyanu, F. M.; Gilewski, A.; Nenkov, K.; Zaleski, A. J.; Palewski, T.; Chistol,V. Solid State Comm. 2013, 158, 9.
- (15) Muntyanu, F. M.; Gilewski, A.; Nenkov, K.; Zaleski, A. J.; Chistol, V. *Phys. Rev. B* 2007, *76*, 014532.
- (16) Muntyanu, F. M.; Dubkovetskii, Yu. A.; Gilevski, A. Sov. Phys. Solid State 2004, 46, 1822.
- (17) Hajdu, J.; Landwehr, G. Strong and Ultrastrong Magnetic Fields and Their Applications 1985, edited by F. Herlach (Springer-Verlag, Berlin).
- (18) Van Hulst, J. A.; Jaeger, H. M.; Radelaar, S. Phys. Rev. B 1995, 52, 5953.
- (19) Diehl, S.; Micheli, A.; Kantian, A.; Kraus, B.; Büchler, H. P.; Zoller, P. *Nature Phys.* 2008, *4*, 878.
- (20) Zhu, Z.; Cheng, Y.; Schwingenschlögl, U. Sci. Rep. 2014, 4, 4025.
- (21) Wilczek, F. New J. Phys. 2014, 16, 082003.
- (22) Wilczek, F. Nature 2012, 486, 195.
- (23) Sasaki, S.; Kriener, M.; Segawa, K.; Yada, K.; Tanaka, Y.; Sato, M.; Ando, Y. *Phys. Rev. Lett.* 2011, *107*, 217001.
- (24) Tian, M.; Wang, J.; Ning, W.; Mallouk, T. E.; Chan, M. H. W. *Nano Lett.* 2015, DOI: 10.1021/nl503398d.