# КВАНТОВЫЕ ОСЦИЛЛЯЦИИ В СИЛЬНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ, ФАЗА БЕРРИ И СВЕРХПРОВОДИМОСТЬ В ТРЕХМЕРНЫХ ТОПОЛОГИЧЕСКИХ ИЗОЛЯТОРАХ ${ m Bi}_{2-x}{ m Cu}_x{ m Se}_3$

С. И. Веденеев<sup>а</sup><sup>\*</sup>, Д. А. Князев<sup>а,b</sup>, В. А. Прудкогляд<sup>а</sup>, Т. А. Романова<sup>а,b</sup>, А. В. Садаков<sup>а,b</sup>

<sup>а</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук 119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур 53-421, Вроцлав, Польша

Поступила в редакцию 16 января 2015 г.

Сообщается о наблюдении двумерных осцилляций Шубникова – де Гааза и холловских 2D-осцилляций в трехмерных монокристаллах  $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Se}_3$ , легированных медью, в полях до 19.5 Тл при температурах до 0.3 К. Исследованы три образца с высокой объемной концентрацией носителей  $n \approx 10^{19} - 10^{20}$  см<sup>-3</sup>. Вращение образцов в магнитном поле показало, что эти осцилляции связаны с множеством параллельных двумерных проводящих каналов толщиной 1–5 нм. Найдены их основные кинетические параметры. В проводящих двумерных каналах толщиной около 1 нм при высоких полях наблюдалось квантованное холловское сопротивление  $R_{xy}$ . Расстояние  $\Delta(1/R_{xy})$  между ступеньками на полевой зависимости величины  $1/R_{xy}$  оказалось постоянным для различных уровней Ландау и равным  $1.3e^2/h$  на каждый слой толщиной около 1 нм. Веерные диаграммы двумерных уровней Ландау для различных углов наклона образцов относительно направления магнитного поля позволяют заключить, что в проводящих двумерных каналах тот направления магнитного поля. Изучением угловой зависимости резистивного верхнего критического магнитного поля  $H_{c2}$  в одном из сверхпроводящих образцов показано, что его можно рассматривать как массивный сверхпроводник, состоящий из сверхпроводящих слоев с эффективной толщиной примерно 50 нм.

**DOI**: 10.7868/S004445101507007X

### 1. ВВЕДЕНИЕ

В последние несколько лет в физике конденсированного состояния появился новый класс квантовых материалов — трехмерных (3D) топологических изоляторов (TИ), которые привлекли внимание большого числа исследователей (см., например, работы [1,2]). В 2006 г. три теоретические группы независимо открыли, что топологическая характеристика состояний квантового спинового изолятора Холла или двумерного (2D) ТИ может быть естественным образом обобщена на 3D-TИ (см., например, [3]). Была установлена связь между объемным состоянием со щелью изолятора и уникальным бесщелевым поверхностным проводящим состоянием. Электроны на поверхности в 3D-ТИ (дираковские фермионы), ведущие себя как безмассовые частицы, являются необычными электронами и описываются двухкомпонентными волновыми функциями, однозначно связанными со спином и импульсом, поэтому рассеяние на примесях и дефектах невозможно. Дираковские фермионы характеризуются линейной зависимостью энергии от импульса, которая изображается в виде конуса Дирака с вершиной в точке Дирака. Очень быстро это открытие было подтверждено экспериментально в 3D-ТИ  $Bi_{1-x}Sb_x$  с помощью фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (angle-resolved photoemission spectroscopy, ARPES) [4].

Теория [5] предсказывает, что когда электрон в ТИ циркулирует вокруг дираковской точки в импульсном пространстве, его спин поворачивается на  $2\pi$  и волновая функция электрона приобретает фазу Берри  $\gamma = \pi$ , если дисперсия линейна вблизи точки Дирака [6]. Однозначная корреляция между спином

<sup>\*</sup>E-mail: vedeneev@sci.lebedev.ru

и импульсом лежит в основе фазы Берри, связанной с поверхностью Ферми, и наблюдение ненулевой фазы Берри указывает на исчезновение массы частиц в точке Дирака. Действительно, авторы работы [7] нашли, что в отличие от обычных материалов со спин-орбитальным взаимодействием и параболическим законом дисперсии, фаза Берри которых равна нулю, поверхностные состояния Sb в  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ имели фазу Берри отличную от нуля.

В 2009 г. было предсказано [8], что давно известный хороший термоэлектрический материал Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> с большой энергетической щелью в объемном состоянии относится к новому классу 3D-ТИ. В последние годы это соединение исследовалось главным образом методом ARPES, который позволяет, в частности, измерить распределение спиновой ориентации на поверхности Ферми, что может быть использовано для оценки фазы Берри на поверхности [1]. Однако далеко не все материалы можно изучать в ARPES-экспериментах, так как для них требуются образцы с очень чистой и плоской поверхностью. В этом случае могут оказаться полезными эксперименты с переносом заряда [2]. Последние, успешные в случае 2D-ТИ, оказались проблематичными в 3D-материалах, поскольку проводимость, связанная с объемными носителями, всегда доминирует над вкладом поверхностной проводимости [9]. В силу этого имеется очень мало доступной информации о транспортных и магнитотранспортных свойствах 3D-ТИ.

Вопрос относительно величины фазы Берри в ТИ до сих пор остается открытым, поскольку в литературе отсутствуют однозначные данные, полученные как в ARPES-, так и в транспортных экспериментах, хотя фаза Берри должна оказывать важное влияние на поведение ТИ в магнитном поле [9]. Тем не менее несколько магнитотранспортных экспериментов было проведено с ТИ, в которых из наблюдений осцилляций Шубникова-де Гааза (ШдГ) и эффекта Холла, по-видимому, доказано существование поверхностных 2D-состояний (см., например, работы [1, 10]). В силу этого дальнейшее изучение 3D-ТИ и особенно образцов Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> представляет большой интерес, поскольку их нетрудно получить в виде высококачественных монокристаллов, и этот материал может быть полезен для практических применений. Есть основание полагать, что в 3D-ТИ Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, легированном медью, обнаружена поверхностная сверхпроводимость при 3.8 К [11]. Необычная сверхпроводимость в ТИ может быть обусловлена наличием бесщелевых поверхностных состояний Майорана, с которыми связаны майорановские фермионы

(предсказанные, но пока не открытые экспериментально) [12].

Ранее мы сообщили [13] о наблюдении 2D-осцилляций ШдГ и холловских осцилляций в 3D-монокристаллах Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, легированных медью, в полях до 9 Тл и при температурах до 2 К. Образцы имели высокую концентрацию носителей  $n = (3-5) \cdot 10^{18}$  см<sup>-3</sup>, хотя из ARPES-экспериментов [1] следовало, что в 3D-ТИ за транспорт отвечают поверхностные 2D-состояния лишь в образцах с концентрацией носителе<br/>й $n~\lesssim~10^{17}~{\rm cm}^{-3}.$ Было предположено, что наблюденные нами осцилляции связаны с несколькими параллельными проводящими 2D-каналами в монокристалле, как это имеет место в нелегированном Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> [14]. Однако эксперименты показали, что фаза Берри равна 1.44 вместо  $\pi$ , как следует из теории. Таким образом, вопрос относительно величины фазы Берри в ТИ остался открытым.

Следует подчеркнуть, что в реальных 3D-ТИ дисперсия не строго линейна, содержит параболическую компоненту и фаза Берри может не равняться точно  $\pi$ . Тем не менее теория утверждает, что из осцилляций ШдГ должно следовать  $\gamma = \pi$ , по крайней мере при больших номерах осцилляций N. Поэтому для получения однозначных данных о поверхностных 2D-состояниях и о величине фазы Берри в 3D-ТИ необходимы магнитотранспортные исследования при более высоких полях H и при более низких температурах T, чтобы была возможность извлекать информацию из большого числа осцилляций ШдГ и холловских осцилляций.

Настоящая работа является продолжением исследований транспортных и магнитотранспортных свойств 3D-TИ, но уже в полях до 19.5 Тл и при температурах до 0.3 К. Как и ранее, эксперименты проводились с монокристаллами Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, легированными медью. ARPES-эксперименты показали, что Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> имеет идеальный конус Дирака [1,9] и, как отмечалось выше, при легировании медью он может оказаться сверхпроводником.

Квантование Ландау, связанное с квазиклассическим циклотронным движением электронов в магнитном поле, должно выявлять разницу между обычными и дираковскими электронами. В обоих случаях плотность состояний становится периодической функцией магнитного поля, что приводит к осцилляциям ШдГ и эффекта Холла [15]. Но поскольку осцилляции, связанные с уровнями Ландау 2D-поверхности Ферми, зависят только от перпендикулярной компоненты магнитного поля, то, вращая образец в магнитном поле, можно отделить их от 3D-осцилляций, обусловленных объем-



Рис.1. Дифрактограмма одного из образцов, на которой видны только рефлексы 00L базовых плоскостей кристалла. На вставке показана кривая качания рефлекса (0015) с полушириной  $0.1^{\circ}$  (предел разрешения нашего дифрактометра)

ными носителями. Кроме того, фазовый множитель 2D-осцилляций прямо отражает фазу Берри системы и тем самым позволяет выяснить, связаны ли наблюдаемые осцилляции с дираковскими фермионами. В ТИ в магнитном поле проводимость осциллирует как

$$\Delta \sigma_{xx} \propto \cos \left[ 2\pi \left( \frac{F}{H_N} - \frac{1}{2} + \beta \right) \right],$$

где F — частота осцилляций,  $H_N$  — значение магнитного поля в экстремумах  $\Delta \sigma_{xx}$ , а параметр  $\beta = -\gamma/2\pi$ . Для дираковских фермионов  $\beta = 1/2$  и фаза Берри  $\gamma = \pi$  (см., например, работу [16]).

# 2. ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТА

В настоящей работе исследовались три монокристалла  $\operatorname{Bi}_{2-x}\operatorname{Cu}_x\operatorname{Se}_3$  (BiCuSe) с разной концентрацией носителей. Метод выращивания аналогичных монокристаллов и их характеристики описаны в предыдущей работе [13]. Образцы размерами до  $10 \times 5 \times 0.2 \, \mathrm{mm}^3$  с зеркальной поверхностью получались расслоением больших кристаллов (см. рис. 1 в [13]) по плоскости (001). На высокое качество образцов указывает рис. 1, где в качестве примера приведена дифрактограмма одного из образцов, на которой видны только рефлексы 00L базовых плоскостей кристалла. На вставке показана кривая качания рефлекса (0015) с полушириной 0.1° (предел разрешения нашего дифрактометра). Измерения проводились в постоянных магнитных полях до 14 Тл при температурах до T = 1.5 К в Международной лаборатории сильных магнитных полей и низких температур (Польша, Вроцлав), а в полях до 19.5 Тл и до T = 0.3 К — в ЦКП ФИАН. Были изучены зависимости продольного  $R_{xx}$  и поперечного  $R_{xy}$  (холловского) сопротивлений от магнитного поля. В каждом измерении поле изменялось от «–» до «+», чтобы вычесть вклад от  $R_{xy}$  в сопротивление  $R_{xx}$  и наоборот. Методика измерений осцилляций ШдГ и холловских осцилляций описана в работе [13].

На рис. 2 показаны температурные зависимости продольных удельных сопротивлений  $\rho_{xx}$  для трех исследованных монокристаллов BiCuSe (образцы №№ 1–3) в области температур 2–300 К. На вставках показаны полевые зависимости удельного холловского сопротивления  $\rho_{xy}$  для тех же образцов, измеренные при указанных на вставках температурах. Образцы вели себя как металл,  $d\rho/dT > 0$ , до температуры около 30 К с насыщением при низких температурых. Как видно, образец № 3 является сверхпроводящим с температурой начала перехода 3.5 К. Как и нелегированные образцы Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> [17], выращенные при термодинамическом равновесии, наши монокристаллы были *n*-типа.

#### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

#### 3.1. Квантовые осцилляции

На рис. 3-5 представлены зависимости от магнитного поля продольного  $\rho_{xx}$  и холловского  $\rho_{xy}$  сопротивлений монокристаллов BiCuSe, измеренные при различных углах наклона  $\theta$  между направлением магнитного поля и осью с образца (схематически показано на вставке к рис. 3) при температурах 1.5, 0.3 и 0.4 К. Видно, что с увеличением магнитного поля сопротивление  $\rho_{xx}$  осциллирует и расстояние между максимумами возрастает. При увеличении угла  $\theta$  перпендикулярная компонента магнитного поля уменьшается, начало ШдГ-осцилляций смещается в сторону больших полей и их амплитуда уменьшается. При  $\theta > 30^{\circ}$  осцилляции  $\rho_{xx}(H)$  не наблюдались даже в полях до 19.5 Тл. На вставке на рис. 4 показано холловское сопротивление  $R_{xy}$  в области полей 15–19.5 Тл в перпендикулярном магнитном поле. На зависимости  $R_{xy}(H)$  при высоких полях вместо осцилляций имеются плато, речь о которых пойдет ниже. На рис. За показаны верхние части кривых  $\rho_{xx}(H)$ , но тем не менее ясно, что образец № 1 также является сверхпроводящим.



Рис.2. Температурные зависимости продольного удельного сопротивления  $\rho_{xx}$  для трех исследованных монокристаллов BiCuSe в области температур 4.2–300 К (*a*) и 2–300 К (*б*, *b*). На вставках показано удельное холловское сопротивление  $\rho_{xy}$  для тех же образцов как функция магнитного поля, измеренное при указанных на вставках температурах. Объемная концентрация носителей в образцах №№ 1, 2, 3 составляла соответственно  $n_{3D} = 2.8 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> (*a*),  $1.1 \cdot 10^{20}$  см<sup>-3</sup> (*b*),  $1.2 \cdot 10^{20}$  см<sup>-3</sup> (*b*)

Известно, что в случае квантования Ландау плотность состояний является периодической функцией магнитного поля. Это приводит к осцилляциям ШдГ и холловского сопротивления, которые периодичны по обратному магнитному полю. Чтобы лучше выявить зависимость осцилляций от магнитного поля, мы использовали величины  $\Delta \rho_{xx}$  и  $\Delta \rho_{xy}$ , полученные в результате вычитания из сопротивлений  $\rho_{xx}$  и  $\rho_{xy}$  их гладких составляющих. На рис. 6*a* приведены осцилляции  $\Delta \rho_{xy}$  как функции обратной



Рис. 3. Продольное  $\rho_{xx}$  (a) и холловское  $\rho_{xy}$  (б) сопротивления монокристалла BiCuSe (образец № 1) как функция магнитного поля, измеренные при различных углах наклона  $\theta$  между направлением магнитного поля и осью c образца (схематически показано на вставке) при температуре 1.5 К

величины перпендикулярной составляющей магнитного поля  $1/H_{\perp} = 1/H \cos \theta$ , измеренные на образце № 1 при различных углах наклона  $\theta$  в полях до 14 Тл. На этом рисунке осцилляции разрешены лучше, но их амплитуда по-прежнему уменьшается с увеличением угла  $\theta$ , и при  $\theta > 31.5^{\circ}$  осцилляции исчезают. 2D-характер этих осцилляций очевиден, так как положение максимумов на кривых зависит только от перпендикулярной компоненты магнитного поля  $H_{\perp}$  и оно не меняется с изменением угла  $\theta$ .

На рис. 6*б* приведены те же осцилляции  $\Delta \rho_{xy}$ , что и на рис. 6*a*, но в более широкой области полей. На кривых хорошо видны осцилляции с большим периодом, на которые налагаются осцилляции с малым периодом при высоких полях (левая часть ри-





Рис.4. Продольное  $\rho_{xx}$  и холловское  $R_{xy}$  сопротивления монокристалла  $\operatorname{BiCuSe}$  (образец  $N^{\circ}$  2) как функция магнитного поля, измеренные при различных углах наклона  $\theta$  при температуре 0.3 К



Рис.5. Продольное  $\rho_{xx}$  и холловское  $\rho_{xy}$  сопротивления монокристалла  $\operatorname{BiCuSe}$  (образец  $N^{\mathfrak{g}}$  3) как функция магнитного поля, измеренные при различных углах наклона  $\theta$  при температуре 0.4 К

сунка). Амплитуда осцилляций с большим периодом практически не уменьшается с изменением угла наклона, но их период и положение максимумов (отмечены стрелками) уже зависят от угла наклона магнитного поля в отличие от осцилляций с малым пе-



Рис. 6. *а*) Осцилляции  $\Delta \rho_{xy}$  как функции обратной величины перпендикулярной составляющей магнитного поля  $1/H_{\perp} = 1/H \cos \theta$ , измеренные на образце № 1 при различных углах наклона  $\theta$  в полях до 14 Тл и при температуре T = 1.5 К. Штриховыми линиями отмечено положение максимумов. Для ясности кривые смещены вниз относительно кривых для  $\theta = 0.6$ ) Те же осцилляции  $\Delta \rho_{xy}$ , что и на рис. 3a, но в более широкой области полей (от 14 до 4.5 Тл)

риодом. Это позволяет предположить, что осцилляции с большим периодом обусловлены квантованием Ландау 3D-поверхности Ферми. Фурье-анализ осцилляций показал наличие двух частот,  $F_B$  и  $F_S$ , соответствующих 3D- и 2D-вкладам в проводимость. Оказалось, что  $F_B = 39$  Тл и  $F_S = 287$  Тл при  $\theta =$ = 0. На рис. 7 показаны результаты фурье-анализа осцилляций ШдГ  $\Delta \rho_{xy}$ , которые отражают зависимость частот осцилляций от угла  $\theta$ . Видно, что час $A_{FT}$ 



Рис.7. Результаты фурье-анализа осцилляций ШдГ  $\Delta \rho_{xy}$ , которые отражают зависимость частот осцилляций от угла  $\theta$  (образец № 1, T = 1.5 K). На вставке: точки — зависимость  $F_S(\theta)$ ; сплошная линия —  $F_S/\cos \theta$ 

тота  $F_B$  объемных осцилляций не меняется с углом  $\theta$ , что соответствует малой анизотропии поверхности Ферми в плоскости изменения угла  $\theta$ . Частота  $F_S$  поверхностных осцилляций изменяется с  $\theta$  и, как показано на вставке, данные для частоты  $F_S$ при разных углах хорошо ложатся на зависимость  $F_S(\theta)/\cos\theta$  (сплошная линия). Это еще раз подтверждает, что эти осцилляции зависят только от перпендикулярной компоненты магнитного поля  $H_{\perp}$  и связаны с уровнями Ландау 2D-поверхности Ферми.

На рис. 8 показаны продольная  $\sigma_{xx}$  и холловская  $\sigma_{xy}$  проводимости монокристалла (образец № 3) как функции перпендикулярной составляющей магнитного поля  $H_{\perp} = H \cos \theta$  при различных углах наклона  $\theta$  в полях до 19.5 Тл. Проводимости были рассчитаны по данным на рис. 5. Эти величины и проводимости для образцов № 1 и № 2 использовались в дальнейшем для определения фазы Берри. Штриховыми линиями отмечено положение минимумов. Для ясности кривые смещены вниз относительно кривых для  $\theta = 0$ . Как и на рис. 6, положение минимумов на кривых зависит только от перпендикулярной ком-





ЖЭТФ, том **148**, вып. 1 (7), 2015

Рис. 8. Осцилляции  $\Delta \sigma_{xx}$  и  $\Delta \sigma_{xy}$ , где  $\sigma_{xx} = = \rho_{xx}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$  и  $\sigma_{xy} = -\rho_{xy}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$  — продольная и холловская проводимости образца № 3, как функции перпендикулярной составляющей магнитного поля  $H_{\perp} = H \cos \theta$  при различных углах наклона  $\theta$  в полях до 19.5 Тл (T = 0.4 K). Проводимости рассчитаны по данным на рис. 5

поненты магнитного поля  $H_{\perp}$  и оно не меняется с изменением угла  $\theta$ , что указывает на 2D-характер осцилляций.

Из периода осцилляций ШдГ можно найти концентрацию  $n_{2D}$  носителей в 2D-слое через соотношение Лифшица–Онзагера [15], в котором частота F осцилляций прямо связана с поперечным сечением поверхности Ферми. Тогда для спин-отфильтрованных 2D-состояний концентрация выражается как  $n_{2D} = 2eF/h$ , где e— заряд электрона и h— постоян-



Рис. 9. Обратное холловское сопротивление  $1/R_{xy}$  в области полей 15-19.5 Тл в перпендикулярном магнитном поле, деленное на число Z, как функция обратного магнитного поля 1/H (экспериментальные данные показаны на вставке на рис. 4). Число  $Z = 43 \cdot 10^3$  равно количеству пятикратных слоев толщиной 1 нм [18] в образце № 2, толщина которого составляла 43 мкм (T = 0.3 K)

ная Планка. Для образца № 1 величина  $F_1 = 287$  Тл, и мы получили  $n_{2D} = 13.8 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>. Из фурье-анализа осцилляций, приведенных на рис. 8, была получена частота  $F_3 = 300$  Тл, из которой следовало, что  $n_{2D} = 14.4 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup> для образца № 3. Для образца № 2 мы нашли  $F_2~=~330$  Тл и  $n_{2D} = 15.9 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>. Сравнивая эти величины с концентрациями n<sub>3D</sub> носителей в объеме, найденными из холловских измерений, можно определить эффективную толщину 2D-слоев,  $d_{2D} = n_{2D}/n_{3D}$ . Из указанных выше концентраций была найдена толщина 2D-слоя в образце № 1, равная 4.9 нм, что приблизительно составляет 5 «пятикратных слоев» в структуре кристалла, каждый из которых имеет толщину 1 нм [18]. В случае образцов № 2 и № 3, у которых концентрация носителей в объеме выше, соответственно  $d_{2D} = 1.4$  нм и  $d_{2D} = 1.2$  нм, что приблизительно соответствует уже одному пятикратному слою.

На рис. 9 показано обратное холловское сопротивление  $1/R_{xy}$  в области полей 15–19.5 Тл в перпендикулярном магнитном поле, деленное на число Z, как функция обратного магнитного поля 1/H. Нетрудно видеть, что на зависимости  $1/R_{xy}$ 

от 1/Н при высоких полях вместо осцилляций имеются плато. Расстояние  $\Delta(1/R_{xy})$  между плато оказалось постоянным для различных уровней Ландау и равным  $1.3e^2/h$  на каждый пятикратный слой. По-видимому, как и в случае нелегированного Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> [14], мы наблюдаем «объемный квантовый эффект Холла», обусловленный транспортом через множество параллельных проводящих 2D-каналов в 3D-монокристалле BiCuSe. Объемный квантовый эффект Холла, в котором квантованные величины сопротивления  $R_{xy}$  определяются обратной толщиной образца, ранее наблюдался в слоистых 3D-материалах, например, в мультиквантовых ямах GaAs/AlGaAs [19]. Действительно, как и в цитируемых работах, в нашем случае  $R_{xy}$  =  $= (h/e^2)/NZ$ , где N — соответствующий номер уровня Ландау. Например, для N = 22 (см. рис. 9) соответствующее последнее плато на сопротивлении  $R_{xy}$  при H = 18.5 Тл должно наблюдаться при 0.027 Ом, как это и следует из вставки на рис. 4. Это означает, что в наших монокристаллах №2 и № 3 2D-осцилляции ШдГ и квантовый эффект Холла связаны с каждым пятикратным слоем, который представляет собой проводящий 2D-канал. В некотором приближении эти образцы можно представить как слоистые высокотемпературные купраты на основе Ві. В образце №1 параллельные проводящие каналы по какой-то причине (возможно, из-за дефектов) состоят из 5 пятикратных слоев. По всей вероятности, из-за этого в образце №1 сказывается сильное влияние квантования Ландау 3D-поверхности Ферми, видное на рис. 6, и квантовый эффект Холла не наблюдается.

Известно, что измерение температурной зависимости осцилляций ШдГ позволяет найти с помощью формулы Лифшица-Косевича [15] основные кинетические параметры, связанные с проводимостью системы. На рис. 10 показаны сопротивления  $\rho_{xx}$  и  $\Delta \rho_{xx}$  для образца  $\mathbb{N} 2$  в магнитном поле, перпендикулярном поверхности образца, при разных температурах. Хорошо видно, что с увеличением температуры амплитуда осцилляций значительно уменьшается. На вставке к рис. 10б показаны относительные амплитуды  $\Delta \rho_{xx}$  18-го максимума как функции температуры (образец № 2). Сплошная линия отвечают формуле Лифшица-Косевича [15] при  $\Delta E = 12$  мэВ. Для образца №1 была получена величина  $\Delta E = 8.4$  мэВ. Найдя значения  $\Delta E$  для разных максимумов  $\Delta \rho_{xx}$ , мы определили эффективную массу  $m_{eff}^{2D}$  носителей, исходя из выражения  $\Delta E(H) = heH/2\pi m_{eff}^{2D} \ [15].$ 

Затем, следуя общепринятой процедуре анали-

	Образец				
Параметр	№ 1	№ 2	№ 3	$Cu_{0.25}Bi_2Se_3$ [20]	$\operatorname{Bi}_2\operatorname{Se}_3[14]$
$n_{3D}^{Hall},  {\rm cm}^{-3}$	$-2.8\cdot10^{19}$	$-1.1\cdot10^{20}$	$-1.2\cdot10^{20}$	$-4.3 \cdot 10^{19}$	$-4.7\cdot10^{19}$
$F_S$ , Тл	287	330	300	325	162
$n_{2D}^{SdH},  \mathrm{cm}^{-2}$	$1.4\cdot 10^{13}$	$1.6\cdot 10^{13}$	$1.5\cdot 10^{13}$	—	$7.8\cdot 10^{12}$
$k_F$ , $\mathrm{Hm}^{-1}$	0.94	1.01	0.97	0.44	—
$m_{eff}$	$0.16m_{0}$	$0.18m_{0}$	—	$0.194m_{0}$	$0.14m_{0}$
$T_D, \mathbf{K}$	21.8	23.6	—	23.5	25
$ au_D, c$	$5.6 \cdot 10^{-14}$	$5.2 \cdot 10^{-14}$	—	$5.2 \cdot 10^{-14}$	$5 \cdot 10^{-14}$
$\mu_{2D}^{SdH},\mathrm{cm}^2/\mathrm{B}\cdot\mathrm{c}$	614	513	—	_	620
$v_F, \mathrm{~m/c}$	$6.8\cdot 10^5$	$6.4 \cdot 10^5$	—	$5.8\cdot 10^6$	—
$l_F$ , нм	38	34	—	30	_

Таблица. Параметры 2D- и 3D-систем для образцов  ${\operatorname{Bi}}_{2-x}{\operatorname{Cu}}_x{\operatorname{Se}}_3$  и  ${\operatorname{Bi}}_2{\operatorname{Se}}_3$ 

Примечание: то — масса свободного электрона

за осцилляций ШдГ, мы определили температуру Дингла T<sub>D</sub> из полулогарифмического графика зависимости  $D = \Delta R H \operatorname{sh}(\alpha T / \Delta E)$  от 1/H. Из величины  $T_D$  были найдены время релаксации  $\tau_D$  =  $= h/4\pi^2 T_D k_B \ (k_B -$  постоянная Больцмана), эффективная 2D-подвижность  $\mu_{2D} = e\tau/m_{eff}^{2D}$ , длина свободного пробега l<sub>F</sub>, фермиевский волновой вектор  $k_F$  и фермиевская скорость  $v_F$  для образцов № 1 и № 2 при температурах соответственно 1.5 К и 0.3 К. Указанные параметры 2D-системы в наших образцах приведены в таблице. Величины этих параметров очень близки к полученным ранее для 2D-проводимости в нелегированном и легированном медью образцах Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> [14, 20]. Из таблицы видно, что при увеличении на порядок 3D-концентрации носителей в образцах вследствие легирования медью значения  $v_F$ ,  $\tau_D$  и  $l_F$  остаются практически неизменными. Подобные зависимости наблюдались в работах [14, 21] для Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> и Bi<sub>2</sub>Te<sub>2</sub>Se.

### 3.2. Фаза Берри

Когда в образце сосуществуют 2D- и 3D-носители, значение магнитного поля  $H_N$  в осцилляциях ШдГ играет ключевую роль при определении фазы Берри [1, 7]. Однако до сих пор в литературе нет однозначного ответа на два вопроса: 1)  $H_N$ следует выбирать по минимумам или максимумам в осцилляциях ШдГ? 2) что следует использовать при определении фазы Берри, магнитосопротвление или магнитопроводимость? Ниже будем придерживаться подхода, развитого в работах [10, 21]. Очевидно, что совпадение уровня Ферми с уровнем Ландау приводит к максимуму в плотности состояний электронов и, соответственно, к максимуму в проводимости. Если уровень Ферми лежит между уровнями Ландау, где нет электронов, имеет место минимум в плотности состояний и минимум в проводимости. В последнем случае некое число уровней Ландау ниже уровня Ферми заполнено и следующий уровень пустой. Тогда этому минимуму в  $\sigma_{xx}$  или  $\sigma_{xy}$  можно поставить в соответствие определенный индекс N, а максимуму — N + 1/2. Кроме того, экстремумы  $\sigma_{xy}$ сдвинуты по фазе на 90° относительно  $\sigma_{xx}$ .

Поскольку в 3D-ТИ 2D- и 3D-проводимости аддитивны, можно измеренные сопротивления преобразовать в проводимости:

$$\sigma_{xx} = \rho_{xx} / (\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2), \quad \sigma_{xy} = -\rho_{xy} / (\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2).$$

На рис. 11 приведено положение минимумов  $\sigma_{xx}$  в обратном магнитном поле 1/H в зависимости от N(веерная диаграмма уровней Ландау) для образца № 1. Величина  $\sigma_{xx}$ , показанная на верхней вставке, была рассчитана по данным на рис. 3 при  $\theta = 0$ . Видно, что данные хорошо ложатся на прямую линию с фиксированным наклоном, который следует также и из зависимости  $F/H_N$  от N, где F = 287 Тл — результат фурье-анализа осцилляций (нижняя вставка). На рис. 11 прямая линия пересекает горизонтальную ось N в точке 0.5. Как отмечалось выше, в магнитном поле проводимость ТИ осциллирует как

$$\Delta \sigma_{xx} \propto \cos \left[ 2\pi \left( \frac{F}{H_N} - \frac{1}{2} + \beta \right) \right].$$



Рис. 10. Сопротивления  $\rho_{xx}$  (*a*) и  $\Delta \rho_{xx}$  (*б*) для образца № 2 в магнитном поле, перпендикулярном поверхности образца, при разных температурах. Для ясности на рис. 10*a* кривые смещены вверх относительно нижней кривой. На вставках: *a* — сопротивление  $\rho_{xy}$  для образца при тех же условиях (кривые смещены вверх относительно нижней); *б* — относительные амплитуды  $\Delta \rho_{xx}$  18-го максимума в зависимости от температуры (сплошная линия отвечает формуле Лифшица – Косевича [15] при значении  $\Delta E = 12 \text{ муB}$ )



Рис.11. Положение минимумов  $\sigma_{xx}$  в обратном магнитном поле 1/H от N (веерная диаграмма уровней Ландау) для образца  $N^{\circ}$ 1 ( $\theta = 0, T = 1.5$  K). Величина  $\sigma_{xx}$ , показанная на верхней вставке, была рассчитана по данным на рис. З при  $\theta = 0$ . Стрелками отмечены индексы N уровней Ландау. Нижняя вставка — результаты фурьеанализа осцилляций

Тогда при  $1/H_N \to 0$  пересечение прямой линией оси N дает фазовый параметр  $\beta = \gamma/2\pi$  и фазы Берри  $\gamma = \pi$ .

На рис. 12 и 13 приведены веерные диаграммы уровней Ландау для различных углов наклона  $\theta$  образцов  $\mathbb{N} 2$  и  $\mathbb{N} 3$  относительно направления магнитного поля. Данные соответствуют минимумам  $\sigma_{xx} = \rho_{xx}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$  и  $\sigma_{xy} = -\rho_{xy}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$ , полученным из измеренных  $\rho_{xx}$  и  $\rho_{xy}$ . Чтобы убедиться в справедливости выбора  $H_N$  согласно работам [10, 21], мы на рис. 12 приводим также данные, соответствующие максимумам N + 1/2 проводимости  $\sigma_{xx}$ . Все прямые линии (экстраполяция данных  $1/H \rightarrow 0$ ) пересекают горизонтальные оси в точках  $\beta = 0.45$  (рис. 12) и  $0.7 \pm 0.1$  (рис. 13). Исходя из рис. 11–13, можно заключить, что в трех исследованных образцах фаза Берри  $\gamma \approx \pi$  и не зависит от направления магнитного поля.

Наконец, мы попытались извлечь фазу Берри из угловой зависимости сопротивления  $\rho_{xx}$  при постоянной величине магнитного поля. В ТИ сопротив $1/H, T\pi^{-1}$ 

 $A_{FT}$ 

0.12



Рис. 12. Веерные диаграммы уровней Ландау для двух углов наклона  $\theta$  образца  $\mathbb{N}^{9}$  2 относительно направления магнитного поля (T = 0.3 K). Данные соответствуют минимумам  $\sigma_{xx} = \rho_{xx}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$ , полученным из экспериментальных кривых на рис. 5. Приведены также данные, соответствующие максимумам N + 1/2 проводимости  $\sigma_{xx}$ . На вставке показаны результаты фурье-анализа

ление в магнитном поле осциллирует как  $\Delta \rho_{xx} \propto$  $\propto \cos[2\pi (F/H_{eff}+\gamma)]$ , где  $H_{eff}=H\cos heta,\;F$  и  $\gamma$  частота и фаза осцилляций. Максимумы в сопротивлении имеют место при  $F/H_{eff} + \gamma = N (N - ин$ декс поля или номер уровня Ландау). Следовательно, уровень Ферми пересекает N-й уровень Ландау при углах  $\theta = \arccos[F/H_N(N-\gamma)]$  [22]. На рис. 14 показана угловая зависимость сопротивления  $\Delta \rho_{xx}$ образца № 3 в магнитном поле 18.5 Тл при температуре 0.6 К. Хорошо видны три максимума в сопротивлении при  $\theta = 17^{\circ}, 27^{\circ}, 34^{\circ}$ . Значения эффективных магнитных полей при этих углах равнялись  $H_{eff} = 17.7, 16.5, 15.3$  Тл. Фурье-анализ осцилляций  $\Delta \rho_{xx}$  при этих углах показал величины частот F = 313.7, 336.7, 361.9 Тл, которые хорошо ложатся на зависимость  $1/\cos\theta$  (точки и сплошная линия на вставке), как и должно быть в случае 2D-эффекта ШдГ. Частота  $F_3 = 300$  Тл при  $\theta = 0$  была получена из фурье-анализа осцилляций, приведенных на рис. 8. Исходя из выражения  $F/H_{eff} + \gamma = N$ , мы нашли, что первый максимум соответствует индексу N = 18 при  $\gamma = 0.27$ , второй — N = 21 при  $\gamma = 0.57$ , а третий — N = 24 при  $\gamma = 0.41$ ; тогда среднее значение фазы  $\gamma \approx 0.42$ , и это близко к  $\pi$ . Таким образом, эти данные еще раз доказывают, что квантовые осцилляции ШдГ в нашем случае связаны с



Рис.13. Веерные диаграммы уровней Ландау для различных углов наклона  $\theta$  образца № 3 относительно направления магнитного поля (T = 0.4 K). Данные соответствуют минимумам  $\sigma_{xx} = \rho_{xx}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$  (a) и  $\sigma_{xy} = -\rho_{xy}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$  (б), полученным из экспериментальных кривых

дираковскими фермионами в параллельных проводящих 2D-каналах в 3D-монокристалле BiCuSe.

## 3.3. Сверхпроводимость

Из приведенных выше рис. 3a и 2s видно, что образцы № 1 и № 3 оказались сверхпроводящими. Выше отмечалось, что сверхпроводимость в ТИ может оказаться необычной, поскольку она, возможно, обусловлена майорановскими фермионами. Представляло интерес измерить в этих образцах одну из основных характеристик сверхпроводника — верх-



Рис. 14. Угловая зависимость сопротивления  $\Delta \rho_{xx}$ образца № 3 в магнитном поле 18.5 Тл при температуре 0.6 К. Стрелками отмечены максимумы в сопротивлении при  $\theta = 17^{\circ}$ ,  $27^{\circ}$ ,  $34^{\circ}$ . Фурье-анализ осцилляций  $\Delta \rho_{xx}$  при этих углах показал величины частот F = 313.7, 336.7, 361.9 Тл, которые хорошо ложатся на зависимость  $1/\cos\theta$  (точки и сплошная линия на вставке). Частота  $F_3 = 300$  Тл при  $\theta = 0$ была получена из фурье-анализа осцилляций, приведенных на рис. 8



**Рис.15.** Сопротивление  $\rho_{xy}$  образца № 3 в магнитных полях H = 0, 0.5 Тл в области температур 2-4 К

нее критическое магнитное поле  $H_{c2}$  и его анизотропию. На рис. 15 показано сопротивление  $\rho_{xy}$  образца № 3 в магнитных полях H = 0, 0.5 Тл в области температур 2–4 К. В этом образце сверхпроводящий переход в нулевом поле начинается при 3.4 К и заканчивается при 2.6 К. В магнитном поле 0.5 Тл кривая перехода смещается в сторону низких температур на 1 К, как и в обычных сверхпроводниках.

Далее мы изучили угловую зависимость  $H_{c2}$  в образце №1. С этой целью были измерены кривые сверхпроводящего перехода при различных углах наклона  $\theta$  между направлением магнитного поля и осью с образца. Результаты этих измерений представлены на рис. 16а (геометрия эксперимента показана на вставке к рис. 3а). Исходя из того, что транспорт в магнитном поле в наших образцах определяется проводящими 2D-слоями, мы обработали данные рис. 16а с помощью модели, которая была успешно использована для описания угловой зависимости  $H_{c2}$  в слоистых высокотемпературных сверхпроводящих купратах на основе Ві [23]. Согласно этой модели, соотношение между угловой зависимостью критического поля  $H(\theta)$  и верхним критическим полем  $H_{c2\perp}$  имеет вид

$$H(\theta)\sin\theta + \gamma' H^2(\theta)\cos^2\theta = H_{c2\perp},$$

где  $\gamma' = H_{c2\perp}/H_{c2\parallel}^2 \approx ed^2/6\hbar c$ . На рис. 166 мы показываем угловую зависимость резистивного верхнего критического магнитного поля  $H_{c2}(\theta)$  (точки), полученного из рис. 16*a* для  $\rho = 0.98\rho_{xx}$ . Сплошная линия отвечает приведенному выше выражению с экспериментальным параметром  $\gamma' \approx 2.1 \text{ Tz}^{-1}$ .

Видно, что экспериментальные данные хорошо описываются этим уравнением для обычного тонкопленочного сверхпроводящих. Оценка эффективной толщины сверхпроводящих слоев в образце дала величину  $d \approx \sqrt{6\hbar c \gamma'/e} = 50$  нм, хотя толщина 2D-слоя в образце № 1 равна 4.9 нм. Таким образом, сверхпроводящий ТИ можно рассматривать как массивный сверхпроводник, состоящий из сверхпроводящих слоев с эффективной толщиной около 50 нм.

## 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Наши результаты показали, что 3D-монокристаллы  $Bi_2Se_3$ , легированные медью, с высокой объемной концентрацией носителей  $n \approx 10^{19} - 10^{20}$  см<sup>-3</sup> являются топологическими изоляторами с множеством параллельных проводящих 2D-каналов тол-



Рис. 16. а) Кривые сверхпроводящего перехода при различных углах наклона  $\theta$  между направлением магнитного поля и осью c образца (образец № 1, T = 1.5 К, геометрия эксперимента показана на вставке к рис. 3а). б) Угловая зависимость резистивного верхнего критического магнитного поля  $H_{c2}(\theta)$  (точки), полученного из рис. 16a для  $\rho = 0.98 \rho_{xx}$  (отмечено стрелкой). Сплошная линия отвечает модели работы [23] с экспериментальным параметром  $\gamma' \approx 2.1$  Тл<sup>-1</sup>

щиной 1–5 нм, как это имеет место в нелегированном  ${\rm Bi}_2{
m Se}_3$  [14]. В проводящих 2D-каналах толщиной около 1 нм при высоких полях наблюдался объемный квантовый эффект Холла. Расстояние  $\Delta(1/R_{xy})$  между ступеньками на полевой зависимости обратного холловского сопротивления оказалось

постоянным для различных уровней Ландау и равным  $1.3e^2/h$  на каждый слой толщиной около 1 нм. Веерные диаграммы 2D-уровней Ландау для различных углов наклона образцов относительно направления магнитного поля позволили заключить, что в проводящих 2D-каналах фаза Берри  $\gamma$  примерно равна  $\pi$  и не зависит от направления магнитного поля. Изучением угловой зависимости резистивного верхнего критического магнитного поля  $H_{c2}$  в одном из сверхпроводящих образцов показано, что его можно рассматривать как массивный сверхпроводник, состоящий из сверхпроводящих слоев с эффективной толщиной около 50 нм.

# ЛИТЕРАТУРА

- X.-L. Qi and Sh.-Ch. Zhang, Rev. Mod. Phys. 83, 1057 (2011).
- 2. Y. Ando, J. Phys. Soc. Jpn. 82, 102001 (2013).
- L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. 98, 106803 (2007).
- D. Hsieh, D. Qian, L. Wray et al., Nature (London) 452, 970 (2008).
- J. C. Y. Teo, L. Fu, and C. L. Kane, Phys. Rev. B 78, 045426 (2008).
- 6. M. V. Berry, Proc. Roy. Soc. London A 392, 45 (1984).
- D. Hsieh, Y. Xia, L. Wray et al., Science 323, 919 (2009).
- H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi et al., Nature Phys. 5, 438 (2009).
- M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. 82, 3045 (2010).
- D.-X. Qu, Y. S. Hor, J. Xiong et al., Science 329, 821 (2010).
- Y. S. Hor, A. J. Williams, J. G. Checkelsky et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 057001 (2010); M. Kriener, K. Segawa, Z. Ren et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 127004 (2011).
- 12. H. C. Manoharan, Nature Nanotech. 5, 477 (2010).

- **13**. М. В. Голубков, Ю. И. Горина, Г. А. Калюжная и др., Письма в ЖЭТФ **98**, 533 (2013).
- H. Cao, J. Tian, I. Miotkowski et al., Phys. Rev. Lett. 108, 216803 (2012).
- 15. D. Shoenberg, *Magnetic Oscillations in Metals*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1984).
- Y. Zhang, Y.-W. Tan, L. Stormer et al., Nature (London) 438, 201 (2005).
- 17. H. Kohler, Sol. St. Comm. 13, 1585 (1973).
- 18. S. S. Hong, W. Kundhikanjana, J. J. Cha et al., Nano Lett. 10, 3118 (2010).

- H. Stormer, J. P. Eisenstein, A. C. Gossard et al., Phys. Rev. Lett. 56, 85 (1986).
- 20. B. J. Lawson, Y. S. Hor, and L. Li, Phys. Rev. Lett. 109, 226406 (2012).
- 21. J. Xiong, Y. Luo, Y. Khoo et al., Phys. Rev. B 86, 045314 (2012).
- 22. A. A. Taskin, K. Segawa, and Y. Ando, Phys. Rev. B 82, 121302 (2010).
- 23. S. I. Vedeneev and Yu. N. Ovchinnikov, Письма в ЖЭТФ 75, 228 (2002).