

## Supraconductibilitate și feromagnetism în bicristale și tricristale ale aliajelor Bi-Sb

F. M. Muntyanu<sup>1</sup>, V. Chistol<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institutul de Inginerie Electronică și Tehnologii Industriale, Academia de Științe din Moldova, MD – 2028, Chişinău, Moldova

<sup>2</sup>Universitatea Tehnică a Moldovei, MD – 2004, Chişinău, Moldova

**Abstract** – Au fost studiate proprietățile bicristalelor și tricristalelor aliajelor  $\text{Bi}_{1-x} - \text{Sb}_x$  ( $x \leq 0.2$ ) în intervalul de temperaturi (1.8 - 100) K și câmpuri magnetice de până la 70 kOe. S-a stabilit că la temperaturi joase bicristalele și tricristalele acestor aliaje manifestă un comportament specific supraconductibilității și feromagnetismului, în timp ce eşantioanele monocristaline posedă diamagnetism anomal și nu sunt supraconductoare. Temperatura la care se începe tranziția supraconductoare la unele eşantioane ajunge până la 36 K și depășește considerabil valorile obținute la alte nanoobiecte semimetalice.

**Cuvinte cheie** – bicristal, tricristal, supraconductibilitate, proprietăți magnetice.

### I. Introducere

Studiile recente ale bicristalelor de Bi au depistat [1, 2] două faze supraconductoare cu temperaturile critice  $T_{c2} \sim 8.4$  K și  $T_{c1} \sim 4.3$  K. Unele din aceste bicristale cu interfață de înclinație aveau temperatura critică a tranziției supraconductoare  $\sim 21$  K [3]. Aceste două faze manifestă un comportament specific supraconductibilității dure de speța II și sunt localizate în partea centrală și straturile adiacente ale interfeței cristaline (IC) a bicristalelor [1]. Temperatura de tranziție a interfeței cristaline a bismutului este cu mult mai mare decât cea a altor nanoobiecte de Bi [4, 5, 6]. Faptul acesta este surprinzător, deoarece Bi monocristalin romboedral nu este supraconductor.

Un interes deosebit îl prezintă obiectele cu tensiuni mecanice mai complicate, precum ar fi, de exemplu, tricristalele, în care se întâlnesc trei cristalite cu diferite orientări în spațiu și în care sunt prezente un număr foarte mare de defecte și dislocații.

În lucrarea dată sunt expuse rezultatele măsurărilor proprietăților magnetice ale bi- și tricristalelor aliajelor de  $\text{Bi}_{1-x} - \text{Sb}_x$  ( $x \leq 0.2$ ) cu scopul de a studia conexiile dintre supraconductibilitate și stările similare celor feromagnetice, depistate la temperaturi joase.

Proprietățile magnetice ale bi- și

tricristalelor aliajelor de  $\text{Bi}_{1-x} - \text{Sb}_x$  ( $x \leq 0.2$ ) au fost studiate în diapazonul temperaturilor (1.8 - 100) K și în câmpuri magnetice de până la 70 kOe, utilizând „Quantum Design SQUID magnetometer” și „Physical Property Measurement System”.

### II. Rezultate și discuții

Proprietățile magnetice ale monocristalelor aliajelor  $\text{Bi}_{1-x} - \text{Sb}_x$  ( $x \leq 0.2$ ) au fost investigate detaliat atât teoretic [7], cât și experimental [8]. Pentru a defini suprafața Fermi a acestor aliaje au fost utilizate cu mare succes oscilațiile susceptibilității magnetice (efectul de Haas-van Alphen)

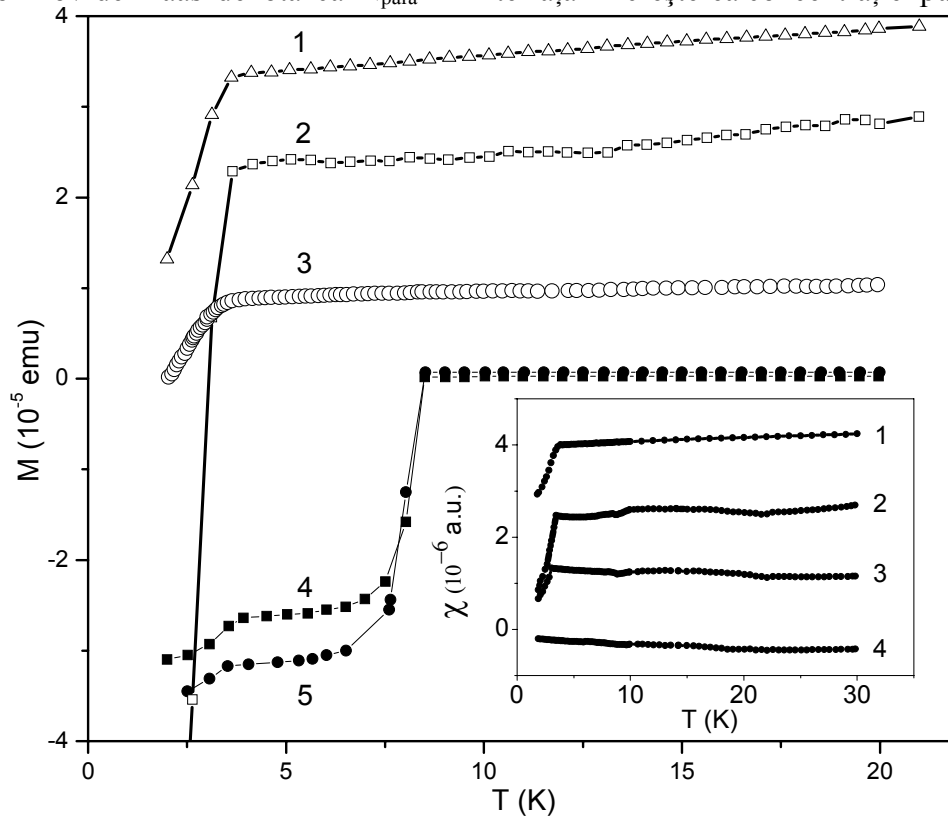
La temperaturi joase, partea monotonă a susceptibilității conține o componentă diamagnetică esențială, de un ordin mai mare decât valorile caracteristice metalelor, redată prin formula Pauli-Landau și care este cauzată de electronii din banda populată și o altă componentă determinată de purtătorii de sarcină liberi, care, de fapt, este paramagnetică în câmpuri magnetice joase și diamagnetică în câmpuri puternice.

În fig.1 sunt prezentate exemple ale dependenței de temperatură a momentului magnetic  $M(T)$  pentru bi- și tricristale ale aliajelor  $\text{Bi}_{1-x} - \text{Sb}_x$  ( $x \leq 0.2$ ).

Din figură se vede că, la temperaturi joase

( $T < 30$  K) în bi- și tricristale se observă două tipuri de dependențe  $M(T)$ : diamagnetică și paramagnetică. Estimarea densității purtătorilor de sarcină  $N_{para}$  (dia) prin efectul Hall și oscilațiile Shubnikov-de Haas denotă că  $N_{para}$  în interfața

paramagnetică a bicristalului este aproximativ de 1,5-2 ori mai mare decât  $N_{dia}$  în interfața diamagnetică. De aceea putem afirma că cauza principală a intensificării paramagnetismului este creșterea concentrației purtătorilor de sarcină.



**Fig. 1.** Dependența de temperatură a momentului magnetic pentru bicristale (*bi-*) și tricristale (*tri-*) ale aliajelor  $Bi_{1-x} - Sb_x$  ( $x \leq 0.2$ ). 1.  $Bi_{0,91}Sb_{0,09}Te$  *tri-*, 50 Oe; 2.  $Bi_{0,93}Sb_{0,07}Sn$  *bi-*,  $\Theta=75^\circ$ , 50 Oe; 3.  $Bi_{0,93}Sb_{0,07}Sn$  *tri-*, 50 Oe; 4.  $Bi_{0,93}Sb_{0,07}Sn$  *bi-*,  $\Theta = 4,6^\circ$ , 50 Oe, Scala pentru  $M(T)$  1:100; 5.  $Bi_{0,94}Sb_{0,06}Te$  *bi-*,  $\Theta = 9^\circ$ , 50 Oe, Scala pentru  $M(T)$  1:100; Insertul (a): Dependența de temperatură a susceptibilității pentru  $Bi_{0,93}Sb_{0,07}Sn$  *tri-* la diferite câmpuri magnetice, 1. 0,175 Oe; 2. 100 Oe, Scala pentru  $\chi(T)$  100:1; 3. 1 kOe, Scala pentru  $\chi(T)$  1000:1; 4. 5 kOe, Scala pentru  $\chi(T)$  5000:1.

Prezența tranzițiilor supraconductoare (una sau două) în dependențele  $M(T)$  pentru  $T < 10$  K este surprinzătoare, deoarece monocristalele de Bi și Bi-Sb nu sunt supraconductoare. În tricristale și în unele bicristale  $M(T)$  are valori pozitive și la temperaturi joase paramagnetismul brusc se micșorează. În anumite cazuri, în dependența  $M(T)$  are loc trecerea de la caracteristici pozitive la cele negative. În câmpuri magnetice  $H > 5$  kOe diminuarea bruscă a paramagnetismului dispare și eșantioanele devin diamagnetice. Un astfel de comportament al dependenței  $M(T)$  indică prezența supraconductibilității în unul din straturile IC pe fondul unui paramagnetism considerabil.

Pentru o identificare mai detaliată a

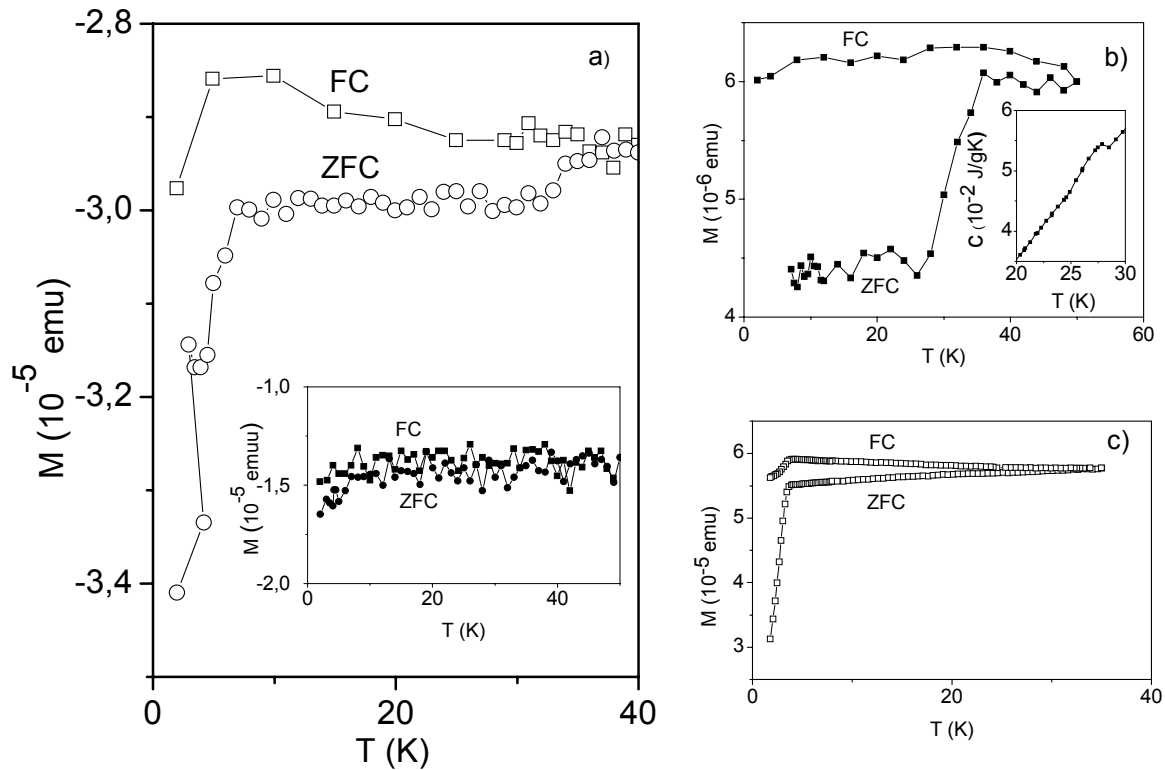
anomaliilor magnetizării, se pot utiliza măsurările în condițiile „zero-field-cooled” (ZFC) și „field-cooled” (FC).

În fig.2 sunt reprezentate dependențele de temperatură ale momentului magnetic ZFC și FC la bi- și tricristalele de  $Bi_{1-x} - Sb_x$ . După cum se vede din figură, curbele ZFC și FC ale momentului magnetic în câmpuri magnetice slabe ( $H = 50$  Oe), aplicate perpendicular planului IC ( $H \perp IC$ ), se ramifică la toate eșantioanele studiate la temperatura  $T_b \sim 36$  K.

În eșantioanele diamagnetice, mai jos de  $T_b$ , în special pentru  $T < 9$  K, la ZFC și la FC, se observă creșterea semnalului diamagnetic specific efectului Meissner și se produce expulzia fluxului magnetic (Fig.2 (a)). Nu se

observă anomalii esenţiale la curbele ZFC şi FC în câmp magnetic ( $H = 50$  Oe) paralel planului IC ( $H \parallel IC$ ) pentru  $T > 9$  K (Fig.2 (a) insert). Deoarece blocurile monocristaline sunt

nesupraconductoare, particularităţile respective pot fi asociate cu interfaţa cristalină şi demonstrează o anizotropie puternică a stării supraconductoare.



**Fig. 2.** ZFC şi FC dependenţele de temperatură ale momentului magnetic pentru aliajele bi- şi tricristalelor de  $Bi_{1-x} - Sb_x$  ( $x \leq 0.2$ ). a).  $Bi_{0,94}Sb_{0,06}Te$  bi-,  $\Theta=9^\circ$ , 50 Oe, ( $H \perp IC$ ). Insert: ( $H \parallel IC$ ); b).  $Bi_{0,85}Sb_{0,15}$  bi-,  $\Theta_1=15^\circ$ ,  $\Theta_2=3^\circ$ , 50 Oe, ( $H \perp IC$ ). Insert: Dependenţa de Temperatură a căldurii specifice pentru  $Bi_{0,85}Sb_{0,15}$  bi-,  $\Theta_1=15^\circ$ ,  $\Theta_2=3^\circ$ ; c).  $Bi_{0,94}Sb_{0,06}Te$  tri-, 50 Oe, ( $H \perp IC$ );

De obicei, punctul de ramificare a curbelor ZFC şi FC ale supraconductorilor determină temperatura critică  $T_c$ . Astfel, în bicristalele studiate temperatura la care se începe tranziţia supraconductoare atinge valoarea 36 K (Fig. 2), fiind cea mai mare valoare pentru semimetalele din grupa VB şi aliajele lor.

În Fig. 2 (b,c) sunt prezentate exemple specifice de curbe ZFC şi FC ale bi- şi tricristalelor paramagnetice în câmpuri magnetice joase  $H \perp IC$ . Se observă două tipuri de dependenţe. La una din ele, din cauza că momentul magnetic ZFC scade brusc, diferenţa dintre curbele ZFC şi FC creşte semnificativ într-un diapazon îngust de temperaturi (35–28 K), apoi trece în saturaţie.

În acelaşi diapazon de temperaturi căldura specifică are un salt bine pronunţat (Fig.2 (b),

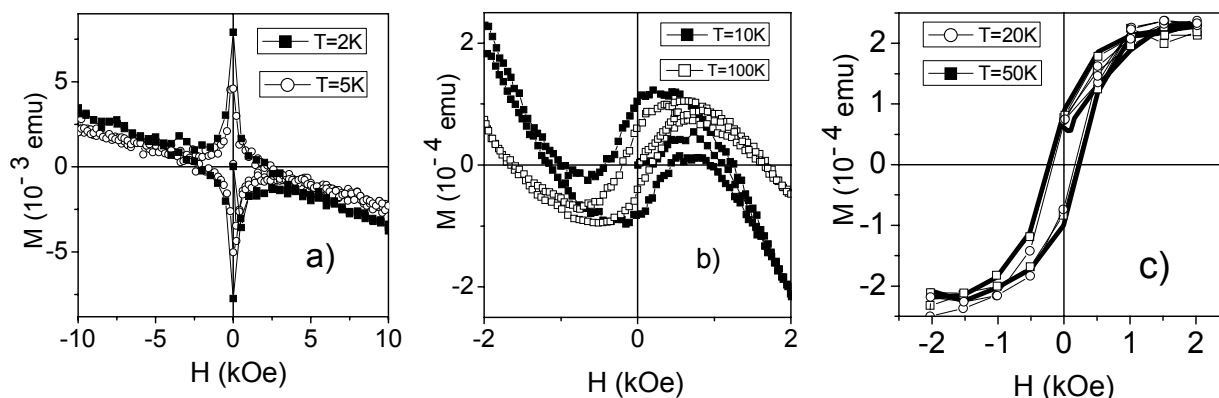
insert), indicând o tranziţie de fază de speţa a doua, care poate fi cauzată sau de supraconductibilitate, sau de ordonarea magnetică. Al doilea tip de dependenţă proprie bi- şi tricristalelor cu IC de torsiune cu un conţinut mare a defectelor este caracterizată de o creştere continuă a diferenţei dintre ZFC şi FC, care se amplifică brusc pentru  $T < 5$  K din cauza expulzării câmpului magnetic. Un posibil motiv al apariţiei acestor particularităţi poate fi prezenţa supraconductibilităţii în unul din straturile IC şi a unui comportament similar feromagnetismului în alt strat.

La bi- şi tricristalele aliajelor de  $Bi_{1-x} - Sb_x$  ( $x \leq 0.2$ ) a fost măsurată dependenţa momentului magnetic de inducţia câmpului magnetic pentru unele temperaturi din intervalul (2–100 K).

În bicristalele cu dependenţa diamagnetică

$M(T)$  a fost obținută bucla de histeresis a magnetizării specifică supraconductoarelor de speța II cu câmpul critic superior  $H_{c1} \sim (100-130)$  Oe. La temperaturi mai mari de 9K bucla de histeresis se schimbă considerabil și devine asemănătoare celei a materialelor feromagnetice (Fig. 3(b)). La bi- și tricristalele cu dependența

paramagnetică  $M(T)$  se observă o bucla de histeresis asemănătoare feromagnetice (Fig.3 (c, d)). Acest fapt este surprinzător, deoarece în eşantioanele studiate n-au fost introduse impurități magnetice, responsabile de comportamentul feromagnetic.



**Fig. 3.** Bucla de histeresis a magnetizării pentru bi- și tricristalele aliajelor de  $Bi_{1-x} - Sb_x$  ( $x \leq 0.2$ ). a,b).  $Bi_{93}Sb_7Sn$  bi-,  $\Theta = 4,6^\circ$ ; c).  $Bi_{0,93}Sb_{0,07}Sn$  tri-; d).  $Bi_{0,85}Sb_{0,15}bi$ -,  $\Theta_1=12^\circ$ ,  $\Theta_2 = 5,6^\circ$ ;

În concluzie se poate afirma, că am demonstrat manifestarea proprietăților supraconductoare și similare celor feromagnetice că IC la bi- și tricristale de Bi-Sb, deși eşantioanele monocristaline sunt diamagnetice în câmpuri magnetice atât longitudinale, cât și transversale. Suprafața Fermi care caracterizează componentele interfeței și blocurile monocristaline [2] nu denotă careva devieri esențiale în structura cristalină A7 a IC a bi- și tricristalelor. Deci, particularitățile proprietăților magnetice ale aliajelor  $Bi_{1-x} - Sb_x$  ( $x \leq 0.2$ ) descrise în lucrarea dată nu sunt cauzate de restructurarea IC. În același timp, schimbările topologice și creșterea considerabilă a volumului suprafeței isoenergetice a purtătorilor de sarcină în IC, determină originea comună a instabilităților, care pot favoriza (împreună cu modificarea spectrului fononilor) cuplare independentă a spinelor și supraconductibilitatea, sau conduc la consolidarea conexiilor magnetice și, în consecință, la feromagnetism.

## Referințe

- [1] F.M. Muntyanu, A. Gilewski, K. Nenkov, J. Warchulska, and A. Zaleski, *Phys.Rev.B* **73** 132507 (2006).
- [2] F.M. Muntyanu, A. Gilewski, K. Nenkov, A. Zaleski, and V.Chistol, *Phys.Rev.B* **76** 014532 (2007).
- [3] F.M. Muntyanu, A. Gilewski, K. Nenkov, A. Zaleski, and V.Chistol, *Solid State Comm.* **147** 183 (2008).
- [4] Zuxin Ye, Hong Zhang, Haidong Liu, Wenhao Wu, and Zhiping Luo, *Nanotechnology* **19**, 085709 (2008).
- [5] B. Weitzel and H. Micklitz, *Phys. Rev. Lett.* **66** 385 (1991).
- [6] N. Marcovic, C. Christiansen, and A.M.Goldman, *Phys.Rev.Lett.* **81** 5217 (1998).
- [7] J.M.McClure and D.Shoenberg, *J. Low Temp. Phys.* **22** 233 (1976)
- [8] L.Wehrli, *Phys. Kond. Mater.* **8** 87 (1968).