

Оптимизация буферного диэлектрического слоя для создания малодефектных эпитаксиальных пленок топологического изолятора $Pb_{1-x}Sn_xTe$ с $x \geq 0.4$

© А.К. Кавеев¹, О.Е. Терещенко²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

² Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: kaveev@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 2 марта 2022 г.

В окончательной редакции 25 марта 2022 г.

Принята к публикации 25 марта 2022 г.

Проведена оптимизация ростовых условий буферного слоя для дальнейшего нанесения $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x \geq 0.4$), обладающего свойствами кристаллического топологического изолятора. Для этого на поверхности Si(111) была сформирована и оптимизирована трехкомпонентная гетероструктура, состоящая из слоев CaF_2 , BaF_2 и $Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In$. Исследована морфология поверхности данной структуры в зависимости от температурных режимов роста и подобрано оптимальное сочетание ростовых параметров с точки зрения гладкости и кристаллического качества.

Ключевые слова: кристаллический топологический изолятор, молекулярно-лучевая эпитаксия, дифракция быстрых электронов, атомно-силовая микроскопия, $Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In$.

DOI: 10.21883/FTP.2022.07.52753.08

1. Введение

Кристаллические топологические изоляторы (ТИ) на основе соединения $Pb_{1-x}Sn_xTe$ являются многообещающими с точки зрения практических приложений [1], в силу возможности создания ТИ с менее шунтирующим проводимостью топологических состояний объемом за счет возможности управления составом (значением x), в отличие от уже ставших классическими ТИ на основе соединений V_2VI_3 . Помимо контроля состава не менее важно получение малодефектных пленок $Pb_{1-x}Sn_xTe$, также с точки зрения уменьшения шунтирующего влияния объема. Данная задача является нетривиальной в силу возникающих при эпитаксиальном выращивании $Pb_{1-x}Sn_xTe$ проблем, таких как недостаточная гладкость слоев и недостаточное кристаллическое качество. Для обеспечения наличия проводящих топологических состояний необходимо получить планарный слой, обладающий высоким кристаллическим качеством.

Известно, что для эпитаксиального выращивания пленок $Pb_{1-x}Sn_xTe$ на кремнии использовались бинарные буферные слои $BaF_2/CaF_2/Si(111)$ [2]. Вместе с тем высота рельефа поверхности полученных буферных слоев была слишком велика в силу недостаточной оптимизации ростовых параметров и дефектности этих слоев. В настоящей работе проведена оптимизация буферного слоя для дальнейшего нанесения $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x \geq 0.4$), обладающего топологическими свойствами. Для этого на поверхность Si(111) наносилась многослойная структура, состоящая из слоев CaF_2 , BaF_2

и $Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In$. Известно [3], что фторид кальция при нанесении на поверхность (111) кремния методом молекулярно-лучевой эпитаксии формирует слой высокого кристаллического качества, но различной морфологии поверхности, в зависимости от температуры нанесения. Возможно образование островков различной высоты и латерального размера. В настоящей работе было необходимо обеспечить наиболее гладкую поверхность.

Рост пленок осуществлялся методом молекулярно-лучевой эпитаксии в установке, обеспечивающей сверхвысокий вакуум до 10^{-8} Па. Установка была оснащена дифрактометром быстрых электронов, кварцевым толщиномером и блоком эффузионных ячеек. Каждый из выращенных в работе материалов испарялся из собственной эффузионной ячейки.

2. Полученные результаты и обсуждение

Для обеспечения гладкости поверхности буферного слоя варьировались температурные режимы и толщины слоя фторида кальция. Далее на поверхность фторида кальция наносился слой фторида бария, обеспечивающий более плавный переход по постоянной решетки от CaF_2 к $Pb_{1-x}Sn_xTe$.

На рис. 1, *a–g* приведен ряд картин атомно-силовой микроскопии гетероструктуры $BaF_2/CaF_2/Si(111)$ различной конфигурации. Был определен ряд параметров, обеспечивающих сочетание малых толщин флюоритовых подслоев (что обеспечивает их малую дефектность)

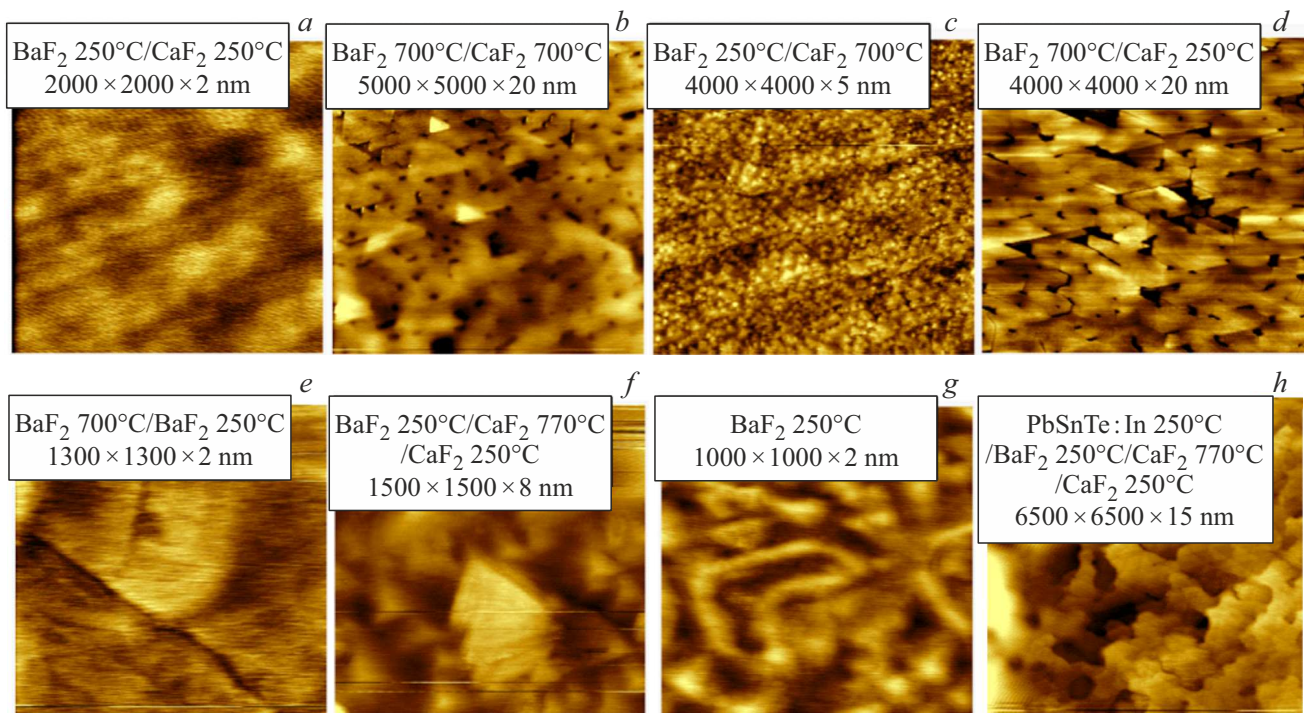


Рис. 1. Морфология поверхности буферного слоя BaF₂/CaF₂ (a–g), выращенного при различных условиях, и оптимизированной буферной трехслойки Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In/BaF₂/CaF₂/Si(111) (h). a–d — толщина BaF₂ и CaF₂ 20 и 10 нм соответственно. Толщины слоев: e — 10 и 3 нм, f — 15, 7 и 3 нм, g — 20 нм, h — 300, 15, 7 и 3 нм.

с их высокой гладкостью. Показано, что при уменьшении температуры роста фторида кальция и фторида бария происходит уменьшение латеральных размеров островков. Наиболее гладкий рельеф поверхности достигается при пониженных температурах роста (250°C). Это коррелирует с результатами работы [4], где была продемонстрирована высокая планарность пленок фторида кальция толщиной единицы нанометров, нанесенных при данной температуре.

Попытки повысить температуру роста одного из двух подслоев с целью улучшения кристаллического качества приводят к укрупнению островков и загромождению рельефа, что нежелательно для поставленной в работе задачи получения максимально гладких слоев. Также иногда возможно образование трещин в пленке из-за разницы температурных коэффициентов расширения. Вместе с тем достаточно гладкий рельеф также получается при использовании двухстадийного (пониженная и повышенная температуры) роста фторида кальция, с последующим низкотемпературным нанесением слоя фторида бария (рис. 1, f).

Вместе с тем непосредственное нанесение тонкого слоя Pb_{1-x}Sn_xTe на двуслойку не обеспечивает достаточной гладкости и достаточного кристаллического качества для формирования топологических состояний. Хорошее качество возможно достичь лишь с помощью гомоэпитаксиального наращивания данного материала на достаточно толстый подслей. При этом необходимо

также добиться низкой проводимости этого подслоя путем его легирования, обеспечивающего регулировку положения уровня Ферми.

Проведенные эксперименты с флюоритовыми двуслойками позволили перейти к экспериментам с нанесением третьего буферного подслоя — диэлектрического Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In. Этот подслей был выращен при различных температурах — от 250 до 450°C (рис. 1, h и 2). Проведенные эксперименты также показали важность нанесения больших (> 500 нм) толщин этого подслоя для обеспечения его сплошности, отсутствия дыр в пленке, и достижения высокой планарности поверхности.

На рис. 2 показаны примеры морфологии поверхности третьего буферного подслоя, полученного при различных условиях. Диэлектрические свойства данного подслоя будут измерены на следующем этапе работы путем проведения электрофизических измерений. В дальнейшем на данный подслей будут нанесены тонкие (10–20 нм) слои стехиометрии, близкой к Pb_{0.6}Sn_{0.4}Te, с избытком Sn, обеспечивающие наличие проводящих топологических состояний.

Эволюция поверхности по мере формирования трехступенчатого буферного слоя была исследована *in situ* с помощью дифрактометрии быстрых электронов (ДБЭ). На рис. 3 показано изменение картин ДБЭ при последовательном нанесении 10 нм фторида кальция (a), 15 нм фторида бария (b) и 1000 нм Pb_{0.7}Sn_{0.3}Te:In в началь-

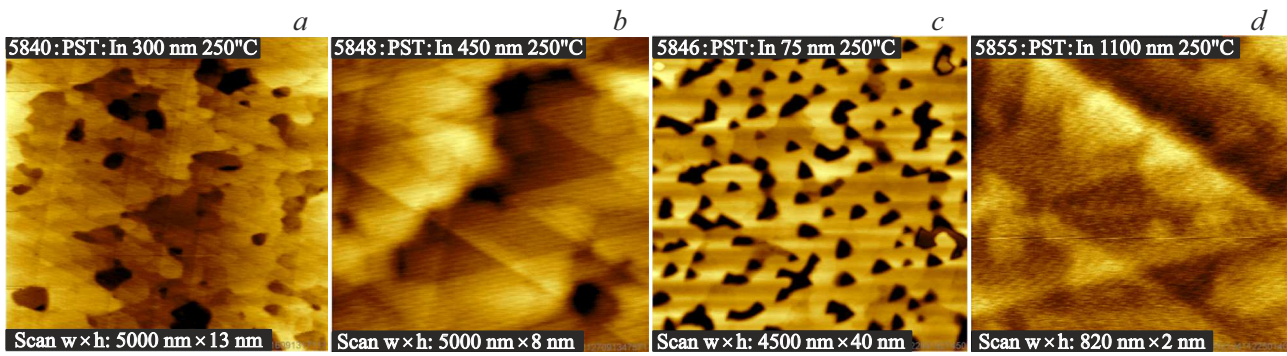


Рис. 2. Морфология поверхности третьего буферного подслоя $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$ в зависимости от условий роста. *a* — нанесение на двуслойку BaF_2 и CaF_2 с параметрами, соответствующими рис. 1, *b* — то же, но более тонкий слой $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$; *c* — нанесение на двуслойку BaF_2 и CaF_2 с параметрами, соответствующими рис. 1, *a*; *d* — то же, но более тонкий слой $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$, и при более низкой температуре.

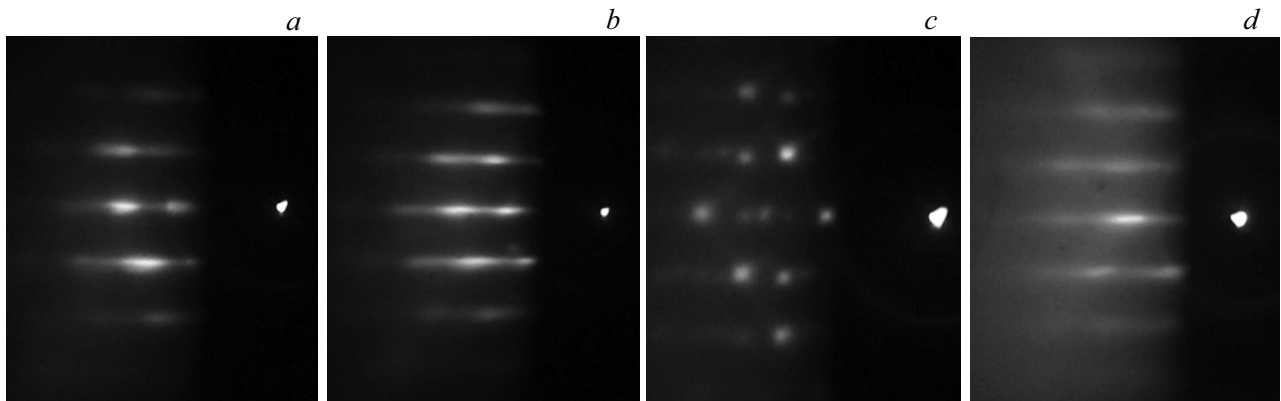


Рис. 3. Изменение картин ДБЭ при нанесении 10 нм фторида кальция (*a*), 15 нм фторида бария (*b*) и 1000 нм $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$ в начальный момент (*c*) и в конечный момент (*d*) роста при температуре 250°C.

ный (*c*) и в конечный момент (*d*) роста при температуре 250°C. Видно, что фториды кальция и бария растут планарно, о чем свидетельствуют тяжи на картинах ДБЭ. Далее, на начальном этапе роста происходит трехмерный (островковый) рост $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$. Двойникование рефлексов свидетельствует о двухдоменном характере роста, характерном для кубической кристаллической решетки с ростовой поверхностью (111). В ранее проведенной нами работе [5] были проведены пробные эксперименты по нанесению тонких пленок $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}$ на $\text{Si}(111)$ с использованием буферного подслоя фторида кальция. Были установлены эпитаксиальные соотношения относительно кремния: $(111) \text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te} \parallel (111) \text{Si}$, $[121] \text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te} \parallel [2\bar{1}\bar{1}] \text{Si}$. В настоящем случае эти соотношения, очевидно, сохраняются.

С увеличением толщины наносимого материала точечные рефлексы сменяются тяжами, что говорит о срастании островков (режим роста Странского–Крастанова) и образовании гладкой поверхности. Данная картина ДБЭ (рис. 3, *d*) находится в соответствии с рис. 2, *d*, где действительно продемонстрирована гладкая поверхность с характерными линиями под углом 60°, которые являются выходами дислокаций, также характерными для ро-

стовой поверхности (111) кубической кристаллической решетки.

3. Заключение

В результате в настоящей работе рассмотрен ряд ростовых режимов и оптимизированы ростовые параметры для трехслойной эпитаксиальной гектероструктуры $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}/\text{BaF}_2/\text{CaF}_2/\text{Si}(111)$. Показана возможность планарного малодофектного роста третьего подслоя — $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$, необходимого для дальнейшего гомоэпитаксиального наращивания $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ с увеличенным значением параметра $x \geq 0.4$ с целью получения поверхностных топологических состояний.

Финансирование работы

Работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований № 21-52-12024 ННИО_а.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] T.H. Hsieh, H. Lin, J. Liu, W. Duan, A. Bansil, L. Fu. Nature Commun., **3**, 982 (2012).
- [2] A.N. Akimov, A.V. Belenchuk, A.E. Klimov, M.M. Kachanova, I.G. Neizvestny, S.P. Suprun, O.M. Shapoval, V.N. Sherstyakova, V.N. Shumsky. Techn. Phys. Lett., **35**, 524 (2009).
- [3] C.A. Lucas, D. Loretto, G.C.L. Wong. Phys. Rev. B, **50**, 14340 (1994).
- [4] Y.Y. Illarionov, A.G. Banshchikov, D.K. Polyushkin, S. Wachter, T. Knobloch, M. Thesberg, L. Menzel, M. Paur, M. Stoger-Pollach, A. Steiger-Thirnsfeld, M.I. Vexler, M. Waltl, N.S. Sokolov, T. Mueller, T. Grasser. Nature Electronics, **2**, 230 (2019).
- [5] A.K. Kaveev, Д.Н. Бондаренко, О.Е. Терещенко. ФТП, **55** (8), 625 (2021).

Редактор Г.А. Оганесян

Optimization of the buffer dielectric layer for the creation of low-defect epitaxial films of the topological insulator $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ with $x \geq 0.4$

A.K. Kaveev¹, O.E. Tereshchenko²

¹ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

² Rzhanov Institute of Semiconductor Physics,
Siberian Branch Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract We have optimized the growth conditions of the buffer layer for further deposition of $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ ($x \geq 0.4$), which has the properties of a crystalline topological insulator. To this end, a three-component heterostructure consisting of CaF_2 , BaF_2 , and $\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{Te}:\text{In}$ layers was formed and optimized on the Si(111) surface. The surface morphology of this structure was studied depending on the temperature growth regimes and the optimal combination of growth parameters was selected from the point of view of smoothness and crystalline quality.