

13,03

Состояние топологического изолятора в тонких пленках висмута под воздействием плоскостной деформации растяжения

© Е.В. Демидов, В.М. Грабов, В.А. Комаров, Н.С. Каблукова, А.Н. Крушельницкий

Российский государственный педагогический университет им. А.И. Герцена,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: demidov_evg@mail.ru

Приведены результаты экспериментального исследования гальваномагнитных свойств тонких пленок висмута, находящихся под воздействием плоскостной деформации растяжения вследствие меньшего температурного коэффициента расширения материала подложки по сравнению с висмутом. Исследованы удельное сопротивление, магнетосопротивление и коэффициент Холла в интервале температур 5–300 К и магнитном поле до 0.65 Т. Рассчитаны концентрации носителей заряда. Обнаружено существенное возрастание концентрации носителей заряда для пленок толщиной меньше 30 nm, что указывает на возможное увеличение роли поверхностных состояний и проявление свойств топологического изолятора в тонких пленках висмута на подложках из слюды.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России в рамках государственного задания, проект № 3.4856.2017/8.9, и РФФИ, грант № 16-32-00313.

DOI: 10.21883/FTT.2018.03.45543.07D

1. Введение

Новый класс материалов, топологические изоляторы на базе полупроводников с инвертированным спектром, широко исследуется в последнее время [1–5]. В топологических изоляторах сильное спин-орбитальное взаимодействие приводит к инверсии энергетического спектра и возникновению спин-расщепленных поверхностных состояний с дисперсией Дираковского типа [5], т.е. линейной зависимостью энергии от импульса $E = v_F p$, где v_F — фермиевская скорость, p — импульс носителей заряда. Вследствие сильного спин-орбитального взаимодействия носители заряда не чувствительны к рассеянию на дефектах, не нарушающему симметрию обращения времени, т.е. в этих состояниях они могут двигаться вдоль поверхности объемного материала почти без потери энергии. Таким образом, в данных материалах поверхностные состояния более устойчивы и обеспечивают высокую поверхностную проводимость.

В настоящее время большое количество веществ относятся к топологическим изоляторам. Первым 3D-топологическим изолятором экспериментально идентифицирован твердый раствор висмут-сурьма с концентрацией сурьмы 9 at.% [6]. Все известные топологические изоляторы, как и твердый раствор висмут-сурьма, представляют собой полупроводники с малой шириной запрещенной зоны. Основная проблема при исследовании транспортных свойств топологических изоляторов состоит в том, что „топологически защищенный“ слой, являясь очень тонким, шунтируется объемом образца. Поэтому транспортные эффекты, связанные с состоянием топологического изолятора, должны быть наиболее заметны в тонких пленках при низких температурах.

Чистые массивные монокристаллы висмута являются полуметаллами с концентрацией носителей заря-

да $3 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ при 4.2 К и $4 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ при 77 К [7]. В работе [8] показано, что вследствие деформаций в системе пленка-подложка, обусловленных различием коэффициентов температурного расширения (КТР) материалов пленки и подложки, при низкой температуре происходит изменение положения актуальных экстремумов валентной зоны и зоны проводимости. В пленках висмута на подложках с КТР меньшим, чем у висмута, происходит изменение параметров кристаллической структуры аналогично тому, как это происходит при возрастании концентрации сурьмы в твердом растворе висмут-сурьма. В случае использования подложки из слюды (мусковит) при понижении температуры до 77 К, вследствие деформаций в системе пленка-подложка происходит изменение параметров решетки висмута, аналогичное тому, которое происходит при добавлении примерно 5 at.% Sb в Bi [8]. Таким образом, в пленке Bi на подложке из слюды при низкой температуре возможен переход из полуметаллического в полупроводниковое состояние. Вследствие этого перехода возможно проявление в тонких пленках висмута состояния топологического изолятора, подобного наблюдаемому в твердом растворе висмут-сурьма в полупроводниковой области. Поверхностные состояния в первую очередь должны проявляться ростом концентрации носителей заряда при уменьшении толщины пленки.

Кристаллы слюды (мусковит), имеющие атомарно гладкую поверхность, позволяют получать пленки висмута с высокосовершенной кристаллической структурой [9].

В данной работе проведено исследование гальваномагнитных свойств тонких пленок висмута толщиной от 15 до 70 nm в интервале температур (5–300 К) и магнитного поля до 0.65 Т. Отдельные результаты приведены для пленок толщиной 100 nm, 150 nm и 300 nm.

2. Методика эксперимента

Напыление пленок производилось методом электронно-лучевого испарения мишени Bi чистотой 99,999% в вакууме при давлении остаточных газов не выше $2 \cdot 10^{-8}$ Торр с использованием безмасляной системы откачки. Температура подложки в процессе напыления пленки составляла 140°C . Отжиг пленки проводился непосредственно в установке для напыления в вакууме при температуре 200°C в течение 60 min. В качестве подложки использовалась слюда (мусковит).

Толщина пленок задавалась в процессе напыления кварцевым измерителем толщины. Для дополнительного контроля толщины тонких пленок висмута использовался метод на основе атомно-силовой микроскопии и избирательного химического травления, позволивший контролировать толщину пленки висмута, с погрешностью менее 10% [10]. В качестве химического травителя использовалась смесь концентрированных азотной и уксусной кислот в соотношении 1 : 200 (по объему).

Исследование электрических свойств проводилось по классической методике на постоянном токе в постоянном магнитном поле. Температура в процессе измерения стабилизировалась.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Исследование структуры полученных пленок висмута методами атомно-силовой микроскопии, рентгеноструктурного анализа и дифракции обратно рассеянных электронов показали, что все пленки имеют блочную структуру с ориентацией плоскости (111) Bi параллельно плоскости подложки. Соседние блоки имеют согласованную ориентацию, при которой оси C_3 и оси C_2 антипараллельны, а оси C_1 — параллельны. По картам кристаллографических ориентаций пленок был определен средний размер блоков. Для пленок толщиной менее 70 nm средний размер блоков составлял $\sim 0.75 \mu\text{m}$, примерно на порядок превышал толщину пленок и слабо зависел от ее величины. В связи с этим при анализе полученных экспериментальных результатов по гальваномагнитным свойствам не учитывалось изменение влияния рассеяния носителей заряда на границах блоков на зависимости гальваномагнитных свойств от толщины пленки.

На рис. 1 приведена температурная зависимость удельного сопротивления ρ пленок Bi различной толщины.

Пленки с толщинами 50–70 nm характеризуются монотонным возрастанием удельного сопротивления при понижении температуры и стремлением к насыщению в области температур ниже 15 K. Уменьшение толщины пленок менее 33 nm приводит к появлению при низкой температуре области с температурным ходом удельного сопротивления, характерным для металлов. Образовавшийся максимум на температурной зависимости удель-

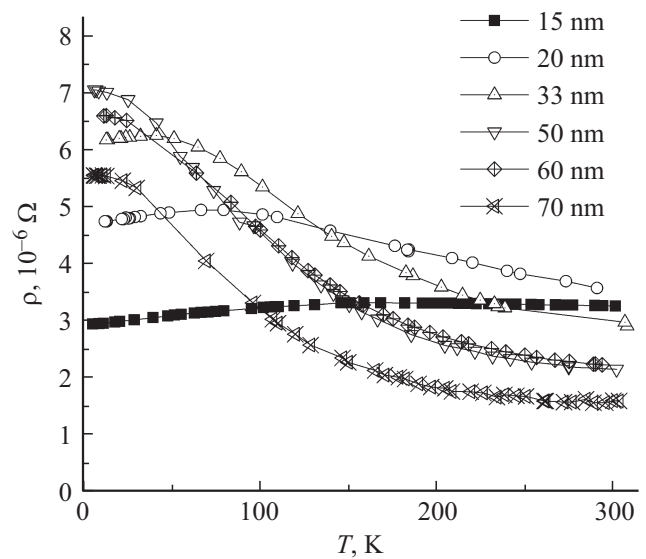


Рис. 1. Температурные зависимости удельного сопротивления пленок висмута различной толщины.

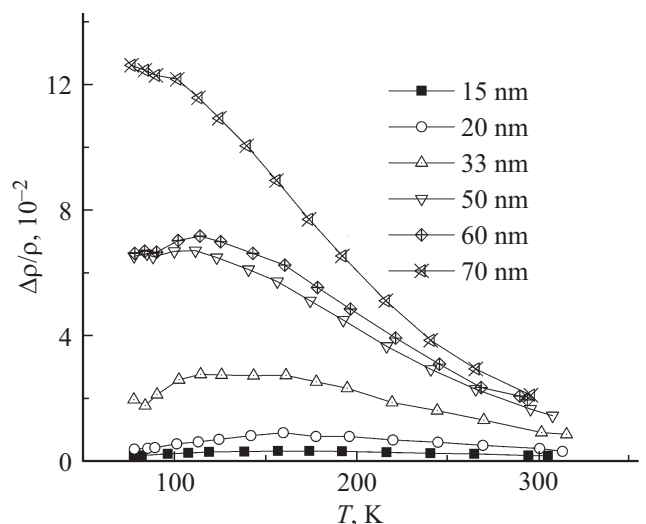


Рис. 2. Температурные зависимости относительного магнетосопротивления пленок висмута различной толщины. $B = 0.65 \text{ T}$, $B \parallel C_3$.

ного сопротивления сдвигается в область более высоких температур с уменьшением толщины пленок.

Результаты исследования зависимости относительного магнетосопротивления ($\Delta\rho/\rho$) от температуры в слабом магнитном поле представлены на рис. 2. С уменьшением толщины пленки происходит уменьшение относительного магнетосопротивления. С понижением температуры от 300 K до 77 K в пленках толщиной более 33 nm происходит рост удельного сопротивления, однако для пленок толщиной от 33 nm и менее рост удельного сопротивления сменяется его уменьшением. Образовавшийся максимум смещается в область более высокой температуры с уменьшением толщины пленки.

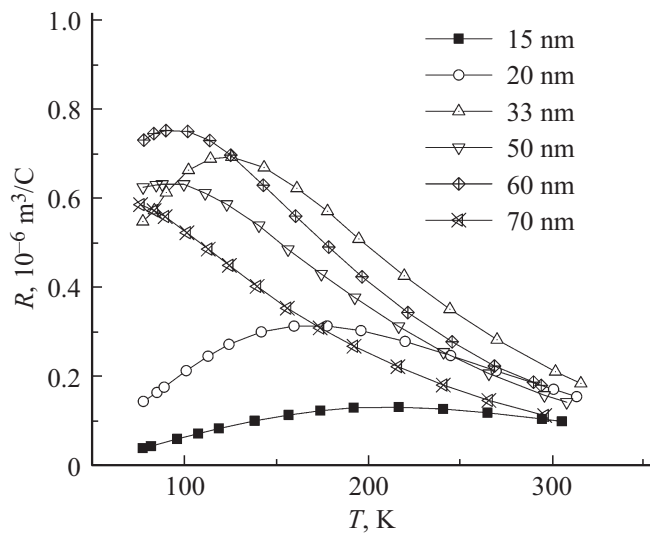


Рис. 3. Температурные зависимости коэффициента Холла пленок висмута различной толщины. $B = 0.65 \text{ Т}$, $B \parallel C_3$.

Это означает, что с понижением температуры, начиная с некоторого ее значения, в пленках толщиной менее 33 нм подвижность носителей заряда уменьшается, а не остается постоянной, как в более толстых, что при условии уменьшения удельного сопротивления может быть обусловлено ростом концентрации носителей заряда при понижении температуры.

Рост проводимости с одновременным уменьшением магнетосопротивления при уменьшении толщины пленки указывает на рост концентрации носителей заряда при уменьшении толщины в исследуемых структурах.

Температурные зависимости коэффициента Холла исследуемых пленок в магнитном поле 0.65 Т представлены на рис. 3.

Измерения показали, что коэффициент Холла всех полученных пленок положителен. На температурных зависимостях коэффициента Холла наблюдается максимум в области низкой температуры. При уменьшении толщины пленки максимум на зависимости коэффициента Холла смещается в область более высокой температуры и для пленки толщиной 15 нм она составляет $\sim 200 \text{ К}$.

Для определения концентрации и подвижности носителей заряда были использованы уравнения для коэффициентов переноса в монокристаллах висмута в отсутствие магнитного поля и в слабом магнитном поле. С учетом кристаллографической ориентации пленочного кристалла висмута на подложке из слюды можно утверждать, что измеряемые на пленках висмута величины удельного сопротивления, магнетосопротивления в поперечном магнитном поле и коэффициента Холла соответствуют компонентам ρ_{11} , $\rho_{11,33}$, и $R_{12,3}$ монокристалла висмута для области слабого магнитного поля. С учетом вышеизложенного, для зонной структуры висмута в пренебрежении углом наклона электронных поверхностей Ферми измеряемые величины коэффици-

ентов переноса можно выразить через концентрации и подвижности носителей заряда следующим образом [11]:

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = \sigma_{11} = en \left[\frac{1}{2} (u_1^- + u_2^-) + u^+ \right], \quad (1)$$

$$R = R_{12,3} = \frac{en}{\sigma_{11}^2} [B_n u_1^- u_2^- - B_p (u^+)^2], \quad (2)$$

$$\frac{\Delta\rho}{B^2} = \rho_{11,33} = -\rho_{11}^2 \left[enC_p U^{+3} + \frac{1}{2} enC_n U_1^- U_2^- (U_1^- + U_2^-) \right] - \sigma_{11} (R_{12,3})^2, \quad (3)$$

где $B_{n,p}$ — Холл-факторы и $C_{n,p}$ — факторы магнетосопротивления. Для квадратичного закона дисперсии и времени релаксации, не зависящего от энергии, эти факторы в первом приближении можно принять равными единице, что справедливо для висмута [11], u^+ , u_1^- , u_2^- — подвижности дырок и электронов относительно осей симметрии изоэнергетических поверхностей, лежащих в плоскости (111), e — элементарный заряд, n — концентрация носителей заряда в пленке.

Для висмута, легированного теллуром, в том числе в тонкопленочном состоянии, было показано [7,12], что соотношение подвижностей электронов u_1^- и u_2^- можно принять постоянным, не зависящим от концентрации легирующей примеси и температуры, равным (4)

$$u_1^- : u_2^- \approx 20. \quad (4)$$

На основе уравнений (1–3) и предположения справедливости соотношения (4) рассчитаны концентрации носителей заряда в исследованных пленках для температуры 77 К. На рис. 4 представлена зависимость концентрации носителей заряда от толщины пленки висмута на слюде в интервале толщин 15–300 нм.

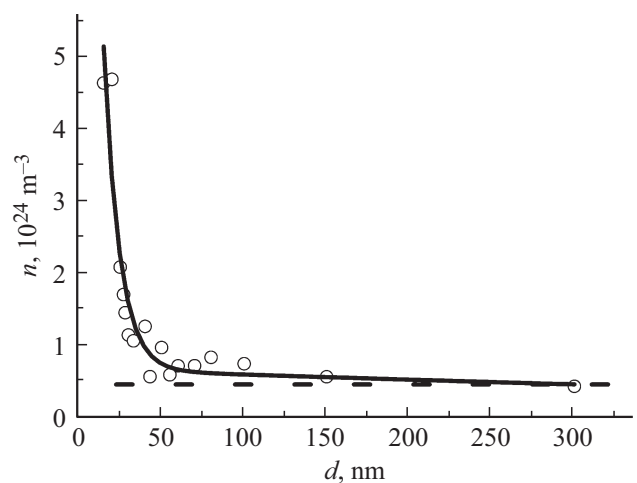


Рис. 4. Зависимость концентрации носителей заряда от толщины пленки висмута при температуре 77 К. Пунктиром отмечено значение концентрации носителей заряда в массивном монокристалле висмута при температуре 77 К.

Как видно из представленных результатов расчета, значение концентрации носителей заряда в пленках толщиной 100–300 nm практически совпадает со значением концентрации в монокристалле висмута и существенно возрастает для пленок толщиной менее 30 nm.

Выявленное существенное увеличение концентрации носителей заряда для пленок висмута толщиной менее 30 nm, возможно, связано с увеличением роли поверхностных состояний с уменьшением толщины пленки и проявлением свойств топологического изолятора в тонких пленках висмута на подложках из слюды.

Следует, однако, отметить, что возможен и другой механизм увеличения концентрации носителей заряда. Этот механизм связан с изменением параметров кристаллической решетки Bi в наноразмерных объектах. В работе [13] отмечается, что при уменьшении размера кристаллита до 2–15 nm происходит уменьшение параметра a гексагональной ячейки на 1.3% и одновременное увеличение c/a на 2.5%. Подобное искажение кристаллической решетки висмута, по характеру и по величине, происходит в пленках висмута на подложках с большим КТР (монокристалл NaCl) при 77 K. Эти пленки характеризуются при 77 K значительно большей (в 4 раза) концентрацией носителей заряда, чем монокристалл Bi [8]. Однако экспериментального подтверждения подобного изменения параметров решетки в пленках висмута на подложках из слюды при понижении температуры до 77 K пока не получено.

4. Заключение

Анализ полученных экспериментальных результатов показывает, что в пленках висмута толщиной более 50 nm значение концентрации носителей заряда близко к ее значениям в массивном монокристалле висмута, что соответствует неизменности энергетического спектра носителей заряда, а изменение гальваномагнитных коэффициентов обусловлено ограничением подвижности носителей заряда в результате рассеяния их при взаимодействии с поверхностью пленки. Выявленное существенное увеличение концентрации носителей заряда в пленках толщиной менее 30 nm может быть обусловлено как изменением параметров энергетического спектра носителей заряда, так и возможным увеличением роли поверхностных состояний и проявлением свойств топологического изолятора в тонких пленках висмута на подложках из слюды.

Список литературы

- [1] L. Fu, C.L. Kane. Phys. Rev. B **76**, 045302 (2007).
- [2] M.Z. Hasan, C.L. Kane. Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
- [3] D.X. Qu, Y.S. Hor, J. Xiong, R.J. Cava, N.P. Ong. Science **329**, 821 (2010).
- [4] A. Taskin, Z. Ren, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando. Phys. Rev. Lett. **107**, 016801 (2011).
- [5] T. Ryuji, M. Shuichi. Semicond. Sci. Technol. **27**, 124005 (2012).
- [6] D. Hsieh, D. Qian, L. Wray, Y. Xia, Y.S. Hor, R.J. Cava, M.Z. Hasan. Nature **452**, 970 (2008).
- [7] Г.А. Иванов, В.М. Грабов. ФТП **29**, 1040 (1995).
- [8] В.М. Грабов, В.А. Комаров, Н.С. Каблуква. ФТТ **58**, 605 (2016).
- [9] В.М. Грабов, Е.В. Демидов, В.А. Комаров. ФТТ **52**, 1219 (2010).
- [10] Е.В. Демидов, В.А. Комаров, А.Н. Крушельницкий, А.В. Суслов. ФТП **51**, 877 (2017).
- [11] R.H. Zitter. Phys. Rev. **127**, 1471 (1962).
- [12] В.М. Грабов, Е.В. Демидов, В.А. Комаров, Д.Ю. Матвеев, А.А. Николаева, Д. Маркушевс, Е.В. Константинов, Е.Е. Константинова. ФТП **48**, 648 (2014).
- [13] N.D. Lisgarten, S.J. Peppiatt, J.R. Sambles. J. Phys. C **7**, 2263 (1974).