

13

Исследование поверхностной проводимости двойного слоя таллия на Si(111) после адсорбции лития и рубидия

© М.В. Рыжкова¹, Е.А. Борисенко¹, М.В. Иванченко^{1,2},
Д.А. Цуканов^{1,2,¶}, А.В. Зотов^{1,2}, А.А. Саранин^{1,2}

¹ Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, Владивосток, Россия

² Дальневосточный федеральный университет, Владивосток, Россия

¶ E-mail: tsukanov@iacp.dvo.ru

Поступило в Редакцию 19 января 2018 г.

Представлены результаты исследования двойного слоя таллия Si(111)6 × 6–Tl после адсорбции лития и рубидия методом дифракции медленных электронов и четырехзондовым методом измерения проводимости. Обнаружены новые реконструкции: 5 × 1 и 5√3 × 5√3 в случае адсорбции лития, 2 × 2 и √3 × √3 в случае адсорбции рубидия. Исследована поверхностная проводимость подложек кремния в зависимости от дозы осажденного вещества. Показано, что при формировании реконструкций и 5 × 1 и 2 × 2 на поверхности подложки сохраняются проводящие свойства двумерного канала, образованного двойным слоем таллия.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.10.46094.17220

Двумерные системы на поверхности полупроводниковых подложек в настоящее время рассматриваются как перспективный материал с точки зрения их возможного прикладного значения для нанoeлектроники и спинтроники. Например, сверхтонкие упорядоченные слои таллия на кремнии Si(111) представляют большой интерес благодаря наличию спиновой поляризации, а также высокой электропроводности. Так, на поверхности с реконструкцией Si(111)1 × 1–Tl было обнаружено „гигантское“ спиновое расщепление поверхностных состояний [1], а в двумерной системе Si(111)6 × 6–Tl наблюдалась сверхпроводимость с температурой перехода 0.96 К [2]. Как известно, реконструкция Si(111)1 × 1–Tl формируется атомами таллия, которые находятся в

позиции T_4 на поверхности чистого кремния [3,4], и является полупроводниковой [4,5]. Покрытие таллия в этой фазе составляет 1 монослой (ML) (для поверхности Si(111) $1 \text{ ML} = 7.83 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) [3,5]. Известно также, что поверхностная реконструкция Si(111) 6×6 -Tl представляет собой двойной слой с общим покрытием таллия 2.4 ML (по 1.2 ML в каждом слое) [6]. При этом в отличие от случая 1×1 структура Si(111) 6×6 -Tl является металлической [2], однако двойной слой таллия неустойчив и легко разрушается при добавлении незначительного количества атомов таллия, поэтому в литературе эта реконструкция называется „мягким металлом“ [5]. С научной точки зрения такая система представляет интерес для изучения механизма перехода от послойного роста пленки к островковому. В настоящей работе изучено поведение реконструкции Si(111) 6×6 -Tl при адсорбции таллия, лития и рубидия, а также исследована поверхностная проводимость для данной подложки.

Исследования кристаллической структуры поверхности Si(111) 6×6 -Tl при взаимодействии с атомами щелочных металлов методом дифракции медленных электронов (ДМЭ), а также поверхностной проводимости осуществлялись в условиях сверхвысокого вакуума на установке RIBER DEL-300. В качестве образцов использовались подложки монокристаллического кремния n -типа размером $15 \times 5 \times 0.045 \text{ mm}$ с ориентацией (111) и удельным сопротивлением $45 \Omega \cdot \text{cm}$. Подложка очищалась путем кратковременного отжига при температуре выше 1250°C . Структура поверхности контролировалась методом ДМЭ с энергией первичного пучка 56 eV . После процедуры очистки на поверхности подложки наблюдалась реконструкция 7×7 , характерная для атомарно-чистой поверхности кремния Si(111). С целью определения электрической проводимости в образцах с поверхностными реконструкциями в настоящей работе был применен четырехзондовый метод с зондами, расположенными по квадрату со стороной 0.6 mm [7]. Поверхностная проводимость измерялась при комнатной температуре *in situ* без выноса образцов на воздух. В качестве источника таллия использовалась ячейка Кнудсена, источниками лития и рубидия служили гетероисточники фирмы SAES Getters. Калибровка источников осуществлялась по наблюдениям картин ДМЭ для реконструированной поверхности подложек. Для калибровки таллия реперными точками были реконструкции 1×1 (1 ML таллия) и 6×6 (2.4 ML таллия). Источники

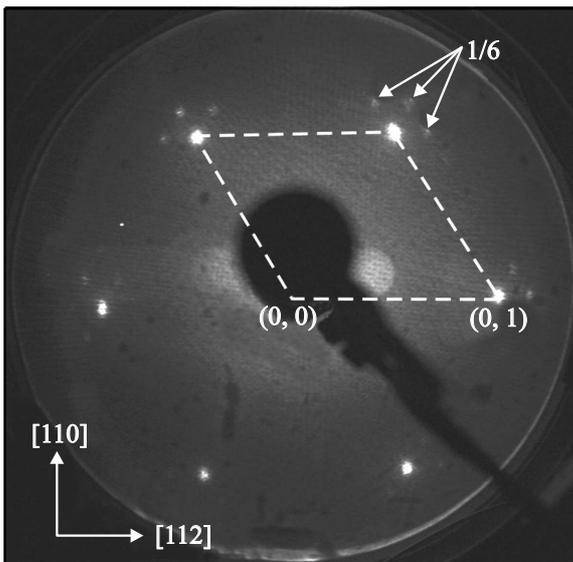


Рис. 1. Картина ДМЭ поверхности $\text{Si}(111)6 \times 6\text{-Tl}$. Штриховой линией показана элементарная ячейка 1×1 , стрелками — одно из мест расположения рефлексов порядка $1/6$ реконструкции 6×6 . Энергия первичного пучка 56 eV .

лития и рубидия калибровались по наблюдениям на поверхности подложки структуры $\delta(7 \times 7)$, характерной для поверхности после осаждения атомов щелочных металлов на исходную реконструкцию 7×7 чистого кремния при комнатной температуре при дозе вещества, соответствующей покрытию 1 ML [8].

На рис. 1 представлена картина ДМЭ, характерная для поверхности $\text{Si}(111)6 \times 6\text{-Tl}$. Вокруг основных рефлексов типа $(0,1)$ видны дополнительные рефлексы порядка $1/6$, показывающие, что периодичность сверхрешетки в 6 раз больше, чем для нереконструированной грани $\text{Si}(111)$. Однако эти сверхрефлексы видны только возле основных рефлексов, что свидетельствует о несоразмерности структуры 6×6 по отношению к нижележащей 1×1 [5]. Электрические измерения показали, что поверхностная проводимость образца со структурой поверхности 6×6 была выше, чем для атомарно-чистой подложки, и составила $(3.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-3} \Omega^{-1}$, в то время как проводимость чистой

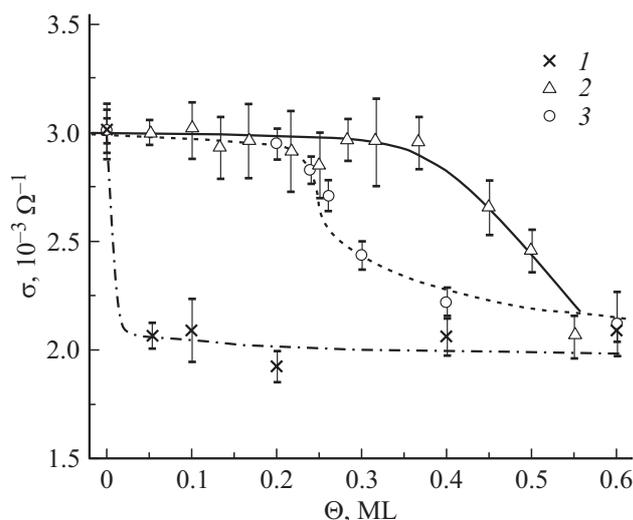


Рис. 2. Электрическая проводимость образцов после осаждения таллия (1), лития (2) и рубидия (3) на поверхность Si(111)6 × 6–Тl.

подложки Si(111)7 × 7 была $(2.1 \pm 0.1) \cdot 10^{-3} \Omega^{-1}$. Установлено, что проводимость подложки с реконструкцией Si(111)1 × 1–Тl практически не отличается от проводимости атомарно-чистой подложки и оценивается как $(2.2 \pm 0.2) \cdot 10^{-3} \Omega^{-1}$. Было продемонстрировано, что структура 6 × 6 является нестабильной, так как при адсорбции дополнительного количества атомов таллия рефлексы ДМЭ 6 × 6 постепенно исчезают и остаются рефлексы 1 × 1, характерные для однослойной реконструкции таллия. Поскольку система Тl/Si(111) с реконструкцией 6 × 6 является двухслойной и обладает металлическими свойствами, ее разрушение должно привести не только к изменению структуры поверхности, но и к изменению электропроводности образца. На рис. 2 показаны результаты изменений поверхностной проводимости при осаждении таллия на поверхность 6 × 6 (кривая 1). Видно, что сразу же после адсорбции таллия проводимость резко уменьшается до значений, соответствующих проводимости как образцов Si(111)7 × 7, так и образцов Si(111)1 × 1–Тl.

На рис. 3, *a* и *b* представлены картины ДМЭ поверхности образца после осаждения лития на реконструкцию 6 × 6. После адсорбции более

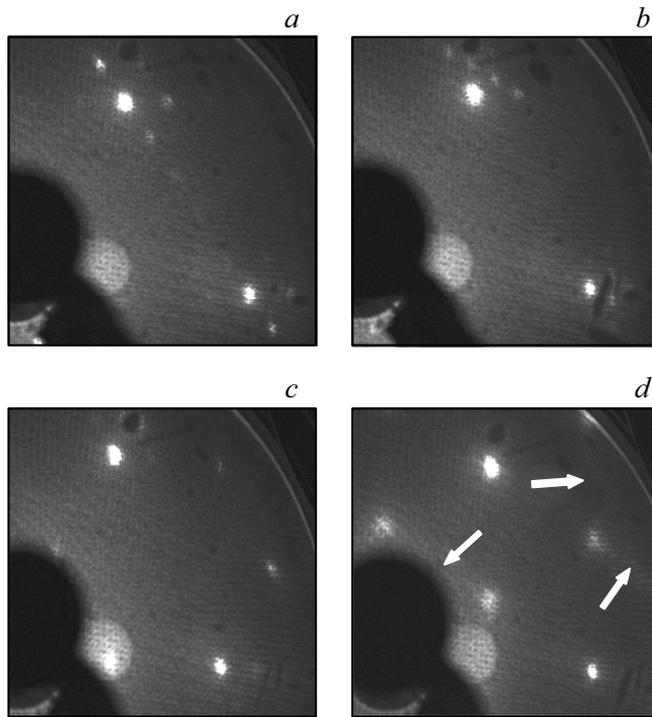


Рис. 3. Картины ДМЭ, наблюдаемые в эксперименте после осаждения на поверхность $\text{Si}(111)6 \times 6\text{-Tl}$ лития ($a - 5 \times 1$, $b - 5\sqrt{3} \times 5\sqrt{3}$) и рубидия ($c - 2 \times 2$, $d - \sqrt{3} \times \sqrt{3}$). Стрелками указано расположение диффузных полос. Энергия первичного пучка 56 eV.

0.1 ML лития на поверхность $\text{Si}(111)6 \times 6\text{-Tl}$ при комнатной температуре формируется реконструкция 5×1 (рис. 3, a). Хорошо видно, что яркие рефлексы сверхструктуры наблюдаются только возле основных рефлексов, что показывает несоразмерность этой поверхностной реконструкции, как и 6×6 . Следует отметить также понижение симметрии в данном случае. Структурные элементы на поверхности, дающие такую картину дифракции, представляют собой одномерные ряды атомов или групп атомов [9]. Если продолжить осаждение лития, то при покрытии адсорбата от 0.35 до 0.65 ML на поверхности образца формируется но-

вая реконструкция $5\sqrt{3} \times 5\sqrt{3}$ (рис. 3, *b*). Периодичность $5\sqrt{3}$ означает, что параметр сверхрешетки поверхностной реконструкции в $5\sqrt{3}$ раз больше и повернут на 30° относительно нижележащей структуры с периодичностью 1×1 . Дифракционная картина видна не по всей области экрана, что свидетельствует об остающейся несоразмерности второго слоя. Таким образом, при адсорбции атомов лития на поверхность Si(111) 6×6 -Tl формируются новые поверхностные реконструкции, т.е. верхний слой таллия перестраивается, а не разрушается, как в предыдущем случае с осаждением таллия.

На рис. 2 показано поведение поверхностной проводимости в случае осаждения лития на подложку с реконструкцией 6×6 (кривая 2). В отличие от случая с осаждением таллия при адсорбции лития от 0 до 0.35 ML поверхностная проводимость не изменяется и остается на уровне значений, характерных для исходной поверхности 6×6 . В этом диапазоне покрытий лития на поверхности формируется реконструкция 5×1 , и неизменность проводимости указывает на то, что проводящий канал через двойной слой таллия не был разрушен. При последующем осаждении лития (от 0.35 до 0.65 ML) начинает формироваться реконструкция $5\sqrt{3}$, и на этом промежутке покрытий лития отмечается уменьшение поверхностной проводимости, т.е. начинается разрушение верхнего слоя таллия, однако не хаотично, а через формирование новой реконструкции. В этом случае проводимость уменьшается постепенно, а не скачкообразно, как в случае с осаждением таллия. Дальнейшая адсорбция лития приводит к разрушению уже самой поверхностной реконструкции $5\sqrt{3} \times 5\sqrt{3}$ при дозе адсорбируемого вещества выше 0.65 ML. При этом на картинах ДМЭ отмечается повышенная интенсивность фона, угасание сверхрефлексов, а также расширение основных рефлексов порядка (0,1), что подтверждает нарушение условий дифракции для отраженных от поверхности электронов, т.е. разупорядочение атомов поверхностной решетки [10].

Похожее поведение проводимости было отмечено и при адсорбции рубидия на поверхность Si(111) 6×6 -Tl. Обнаружено, что при осаждении атомов рубидия до 0.2 ML при комнатной температуре наблюдается перестройка поверхности в структуру с периодичностью 2×2 (рис. 3, *c*). Структура является соразмерной нижележащей реконструкции Si(111) $\times 1$ -Tl, так как сверхрефлексы на дифракционной картине хорошо видны по всей области экрана. При этом поверхностная проводимость такой подложки практически не изменилась, как пока-

зано на рис. 2 (кривая 3). Таким образом, канал проводимости на поверхности подложки сохраняется и в этом случае, но модифицированный рубидием. Однако далее при адсорбции более 0.2 ML рубидия поверхностная проводимость начинает постепенно снижаться. Согласно данным дифракции, при этом происходит постепенная перестройка поверхности в структуру $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ (рис. 3, *d*), однако на дифракционной картине наблюдаются полосы, которые могут быть индикатором формирования на поверхности неоднородностей, например неупорядоченных доменных стенок, которые обычно возникают при напряженности кристаллической решетки [11]. При дальнейшем напылении рубидия диффузные полосы между рефlekсами исчезают, а рефlekсы $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ становятся более четкими, что указывает на то, что структурное качество поверхности улучшается. Поверхностная проводимость при этом уменьшается до значений, соответствующих проводимости чистого образца, что свидетельствует о том, что электропроводность последней реконструкции является низкой. Таким образом, как и в случае с литием, при осаждении на поверхность 6×6 взаимодействие атомов рубидия осуществляется с двойным слоем таллия путем формирования совместных реконструкций.

Проведенные эксперименты продемонстрировали поведение поверхностной проводимости подложки при осаждении адсорбатов на двойной слой таллия. Было показано, что при добавлении незначительного количества таллия на поверхность Si(111) 6×6 -Tl металлический слой разрушается. Однако если в качестве адсорбатов использовать литий или рубидий, то электропроводность данного двойного слоя можно стабилизировать путем формирования реконструкций 5×1 или 2×2 при добавлении до 0.35 ML атомов лития или до 0.2 ML рубидия на поверхность Si(111) 6×6 -Tl соответственно.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта ДВО РАН по программе „Дальний Восток“ № 18-3-022.

Список литературы

- [1] *Stolwijk S.D., Schmidt A.B., Donath M., Sakamoto K., Krüger P.* // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 111. P. 176402 (1–5).
- [2] *Ichinokura S., Bondarenko L.V., Tupchaya A.Y., Gruznev D.V., Zotov A.V., Saranin A.A., Hasegawa S.* // 2D Materials. 2017. V. 4. P. 025020 (1–10).

- [3] Kim N.D., Hwang C.G., Chung J.W., Kim T.C., Kim H.J., Noh D.Y. // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. P. 195311 (1–5).
- [4] Lee S.S., Song H.J., Kim N.D., Chung J.W., Kong K., Ahn D., Yi H., Yu B.D., Tochiyama H. // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. P. 233312 (1–4).
- [5] Vitali L., Ramsey M.G., Netzer F.P. // Surf. Sci. 2000. V. 452. P. L281–L286.
- [6] Mikhalyuk A.N., Bondarenko L.V., Tupchaya A.Y., Gruznev D.V., Chou J.-P., Hsing C.-R., Wei C.-M., Zotov A.V., Saranin A.A. // Surf. Sci. 2018. V. 668. P. 17–22.
- [7] Tsukanov D.A., Ryzhkova M.V., Borisenko E.A., Bondarenko L.V., Matetskiy A.V., Gruznev D.V., Zotov A.V., Saranin A.A. // Appl. Surf. Sci. 2012. V. 258. P. 9636–9641.
- [8] D'angelo M., Konishi M., Matsuda I., Liu C., Hasegawa S., Okuda T., Kinoshita T. // Surf. Sci. 2005. V. 590. P. 162–172.
- [9] Lee S.S., Shin S.Y., Hwang C.G., Chung J.W. // J. Korean Phys. Soc. 2008. V. 53. P. 3667–3670.
- [10] Ryjkov S.V., Lavrinaitis M.V., Tsukanov D.A., Lifshits V.G. // Appl. Surf. Sci. 2004. V. 237. P. 119–124.
- [11] Gruznev D.V., Bondarenko L.V., Matetskiy A.V., Mikhalyuk A.N., Tupchaya A.Y., Ulas O.A., Ereemeev S.V., Hsing C.-R., Chou J.-P., Wei C.-M., Zotov A.V., Saranin A.A. // Sci. Rep. 2016. V. 6. P. 19446 (1–9).