

Особенности структуры поверхности и поверхностного электронного транспорта в коррелированном топологическом изоляторе SmB_6

© Е.А. Артёмов^{1,2}, А.В. Мантузов^{1,2}, В.С. Журкин¹, А.Д. Божко¹, О.С. Кудрявцев¹,
Б.В. Андриюшечкин¹, В.М. Шевлюга¹, Н.Ю. Шицевалова³, В.Б. Филипов³, В.В. Глушков¹

¹ Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

² ООО „АЕМ Технолоджис“,
109651 Москва, Россия

³ Институт проблем материаловедения им. И.Н. Францевича Национальной академии наук Украины,
03142 Киев, Украина

E-mail: artpoliofan@mail.ru

Поступила в Редакцию 5 мая 2023 г.

В окончательной редакции 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 6 июля 2023 г.

Разработан метод химико-механического полирования поверхности монокристаллов гексаборида самария SmB_6 композициями на базе аморфных частиц кремнезема нанометрового размера. Показано, что метод химико-механического полирования позволяет достичь шероховатости поверхности монокристаллов SmB_6 для бездефектного участка со среднеквадратичным отклонением профиля, не превышающим 0.8 нм. Обсуждается влияние метода химико-механического полирования на структурные и электронные свойства поверхностей (100) и (110) монокристаллических образцов SmB_6 .

Ключевые слова: гексаборид самария, химико-механическое полирование, поверхностная проводимость, топологический изолятор.

DOI: 10.21883/FTR.2023.04.55891.02k

1. Введение

В классе коррелированных топологических изоляторов гексаборид самария SmB_6 выделяется исключительной чувствительностью параметров поверхностного электронного транспорта к способу подготовки граней монокристаллов [1–3]. Необходимым условием для систематических и воспроизводимых исследований дефектов поверхности гексаборидов, в частности, SmB_6 и характера их влияния на параметры двумерных дираковских носителей заряда является надежная процедура подготовки качественной поверхности монокристаллов SmB_6 [4]. В настоящее время для подготовки поверхности SmB_6 в основном применяются механическая и (или) химическая полировка (травление). При обработке поверхности механической полировкой используются суспензии на основе алмазных порошков, Al_2O_3 или SiC [5,6]. Однако в процессе обработки поверхности такими суспензиями вносятся существенные нарушения структурного совершенства в приповерхностном слое, толщина которого может составлять от десятков нанометров до нескольких микрон [7]. Известно также, что химическое травление полированных поверхностей (например, водным раствором азотной кислоты) инициирует уменьшение холловской концентрации поверхностных носителей заряда (более чем на 2 порядка по величине) и рост удельного сопротивления (на порядок по величине) для поверхностей гексаборида самария [2,3]. В работе [3] показано, что эффективные параметры поверх-

ностной проводимости зависят не только от метода специальной обработки поверхности, но и от ее полярности. Травление полированных полярных поверхностей SmB_6 , образованных плоскостями (100), инициирует уменьшение концентрации и рост подвижности поверхностных электронов проводимости при 1.9 К от значений $113/a^2$ (параметр решетки $a \approx 4.134 \text{ \AA}$) и $1.12 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ до $0.76/a^2$ и $18 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ соответственно [3]. Однако химическое травление не только не уменьшает шероховатость рельефа поверхностей, образованных кристаллографическими плоскостями (100), (110) и (111), после их механической полировки, но и существенно (в 2–4 раза) увеличивает неровности рельефа [3].

Качество подготовки поверхности SmB_6 , достигаемое в результате механической полировки или химического травления [3], не позволяет применить методы сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) для изучения дефектов поверхности SmB_6 и характера их влияния на параметры двумерных дираковских носителей заряда. Таким образом, проблема получения для экспериментальных образцов гексаборида самария поверхностей различной ориентации (образованных кристаллографическими плоскостями (100), (110) или (111)) с шероховатостью на уровне 1 нм становится крайне актуальной. Цель данной работы заключается в разработке принципиально нового способа подготовки поверхности монокристаллов SmB_6 при помощи универсальной, воспроизводимой и высокоэффективной технологии химико-механического полирования (ХМП) [8] с тестировани-

ем структурных и транспортных свойств поверхностей, подготовленных этим методом.

2. Методика эксперимента

Монокристаллы гексаборида самария были выращены методом бестигельной индукционной зонной плавки с двойным проходом зоны в атмосфере аргона. Из выращенных монокристаллов цилиндрической формы вырезались пластинки с поверхностями, ориентированными по кристаллографическим плоскостям (100) и (110). Толщина и поперечные размеры монокристаллических пластинок составляли 0.675–0.7 и 6–8 мм соответственно. Предварительная подготовка поверхности монокристалла SmB_6 производилась посредством полировки алмазными порошками, финишная обработка при помощи метода ХМП осуществлялась на станках настольного типа „Presi“. Для проверки точности ориентации поверхности образцов и контроля отсутствия блочности использовался рентгеновский дифрактометр Bruker D8 Discover A25. Величина отклонения ориентации граней образцов от заданных кристаллографических плоскостей составила $\leq 1-2^\circ$.

Для исследования влияния ХМП на свойства поверхности гексаборида самария после серии измерений транспортных свойств поверхности, прошедшие ХМП, подвергались полировке на алмазном порошке с размером зерен до 0.3 мкм и последующему травлению в водном растворе HNO_3 (1:2) в течение 5 мин.

Измерения микрорельефа полированных и травленых поверхностей проводились на атомно-силовом микроскопе NT-MDT NTEGRA Spectra и сканирующем туннельном микроскопе GPI-300. Удельное сопротивление и эффект Холла измерялись в последовательных экспериментах в четырехконтактной схеме с линейным (для удельного сопротивления) и поперечным (для эффекта Холла) расположением потенциальных контактов. Для уменьшения влияния периферийных областей монокристаллических пластинок токовые и потенциальные контакты располагались в центральной части тестируемой поверхности не ближе 1 мм к краям образца. Характерные расстояния между токовыми контактами составляли 3 мм, между потенциальными — от 1 мм (для удельного сопротивления) до 3 мм (для эффекта Холла). Величина постоянного тока выбиралась в диапазоне от 3 мкА до 10 мА для исключения возможного перегрева образца. Измерения удельного сопротивления проводились при температурах 1.9–300 К. Магнетосопротивление и эффект Холла измерялись при температурах 1.9–4.2 К в магнитных полях до 8 Тл.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Подготовка поверхности методом ХМП

Подготовка поверхности образцов SmB_6 методом ХМП осуществлялась в две стадии. На первой стадии

плоскости пластинок монокристалла SmB_6 последовательно обрабатывались алмазными порошками АСМ 3/2 и АСМ 1/0. На второй стадии образцы полировались в кислотных композициях на основе аморфных частиц коллоидного диоксида кремния, используемых в качестве твердой фазы. Размер частиц составлял от 10 до 100 нм.

Полирование поверхности образцов SmB_6 осуществлялось следующим образом. Пластинку монокристалла SmB_6 крепили на специальную оснастку и устанавливали оснастку с образцом на полировальный стол, на котором приклеен полировальный диск. Процесс ХМП осуществляли при разных режимах обработки с непрерывной подачей полирующей композиции. После окончания процесса ХМП полированная поверхность образца SmB_6 промывалась в теплой дистиллированной воде, образец удалялся из оснастки, остатки композиции и загрязнения удалялись с поверхности образца очищающим раствором и далее образец подвергался сушке.

3.2. Структура поверхности

Исследования поверхностей монокристаллических образцов SmB_6 методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) показали, что в отличие от абразивной полировки и химического травления [3] шероховатость поверхности, подготовленной методом ХМП, не зависит от ее ориентации. Полученные поверхности характеризуются низкой шероховатостью и небольшим искривлением (отклонением от плоскостности) гладкого рельефа с характерным перепадом высот ≤ 20 нм на длинах ~ 30 мкм.

Данные СТМ также показали высокую степень гладкости поверхности монокристалла на макроскопических масштабах (рис. 1, *a*), причем шероховатость поверхностей монокристаллов SmB_6 для типичного бездефектного участка не превышала 0.8 нм для среднеквадратичного отклонения профиля рельефа (рис. 1, *b*). На СТМ-изображениях поверхности монокристалла SmB_6 (рис. 1, *c, d*) идентифицируются нерегулярные террасы для плоскостей (100) различной протяженности, разделенные одно- и двухатомными ступенями. Высокая степень гладкости поверхностей, полученных методом ХМП, подтверждает перспективность применения этого метода для исследования структуры поверхности и поверхностного электронного транспорта в гексабориде самария.

3.3. Удельное сопротивление

Температурные зависимости удельного сопротивления монокристаллических образцов гексаборида самария, нормированные на значение при 290 К, представлены на рис. 2. Как и следовало ожидать, в области температур, отвечающих объемному зарядовому транспорту ($T > 9$ К), подготовка поверхности не оказывает какого-либо заметного влияния на удельное сопротивление

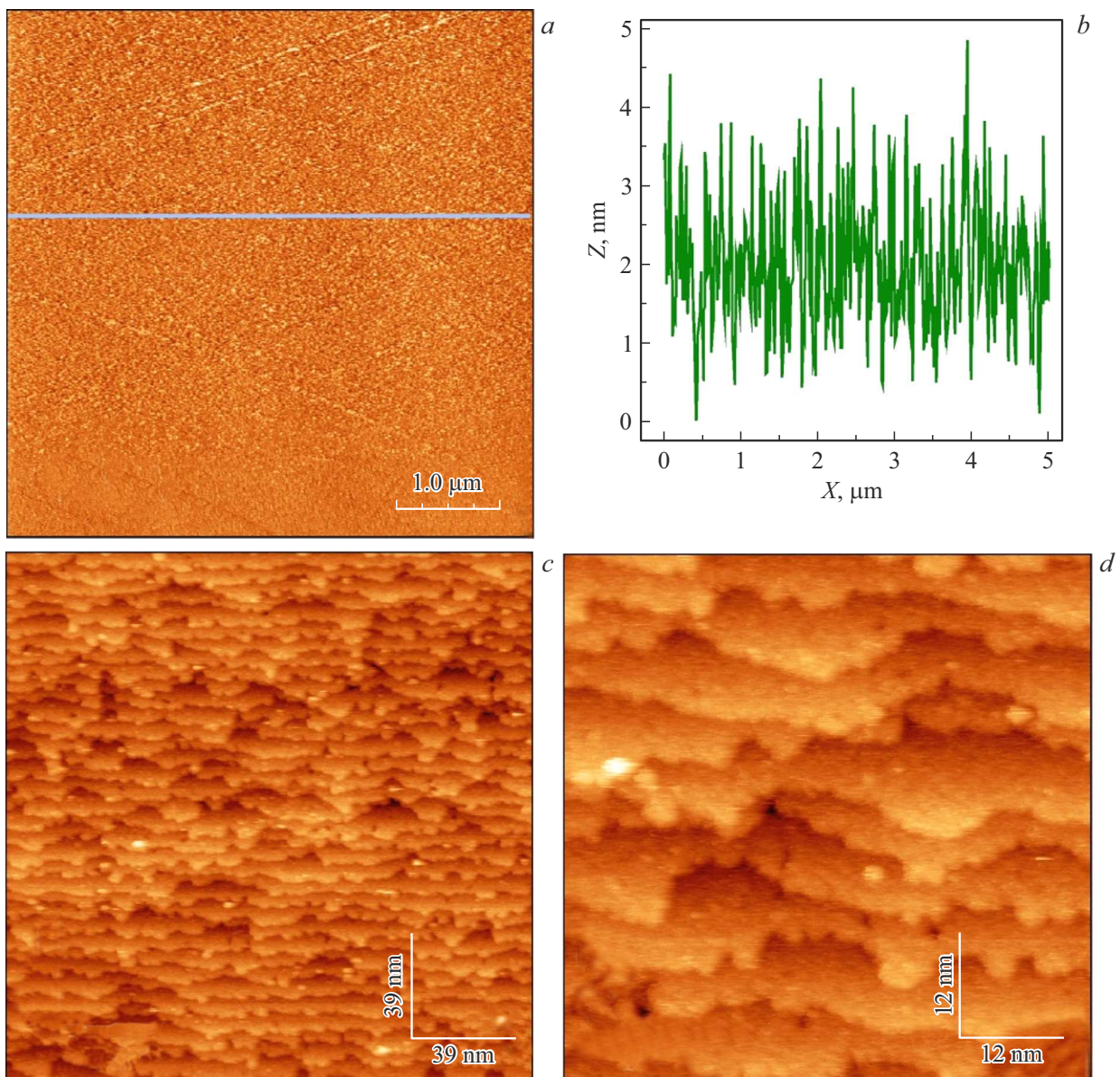


Рис. 1. СТМ-изображения ($I_t = 2$ нА, $U_s = -150$ мВ) поверхности монокристалла SmB_6 , полученной методом ХМП (размеры: $a - 5.2 \times 5.2$ мкм², $c - 194 \times 194$ нм² и $d - 46.2-49.7$ нм²). Террасы на изображениях c и d отвечают плоскостям (100), разделенным одно- и двухатомными ступенями. На панели b приведен рельеф поверхности вдоль линии, указанной на панели a с мелким масштабом.

измеряемых образцов. Небольшое различие в поведении $\rho(T)$, наблюдаемое ниже 15 К (рис. 2), связано с различными условиями роста исходных монокристаллов. Важно отметить, что значения энергий активации, отвечающих активационному росту удельного сопротивления в интервале температур 9–15 К, практически не различаются в пределах экспериментальной погрешности и равны $\Delta = 56 \pm 1$ К. В области поверхностной проводимости ($T < 4.2$ К) значения удельного сопротивления исследуемых образцов SmB_6 оказываются заметно выше аналогичных данных для реперного монокристалла с гранями (100), подвергнутыми химическому травлению в водном растворе азотной кислоты (см. работу [3]).

Для пластинок с поверхностями (110) с понижением температуры удельное сопротивление растет по степенному закону $\rho \sim T^\alpha$ с показателями степени $\alpha \approx -0.57$ и $\alpha \approx -0.38$ для поверхностей, подготовленных методом ХМП (обозначение C) и „традиционным“ методом абразивной полировки и химического травления (обозначение E) соответственно.

Эффект ХМП сильнее выражен в случае неполярных поверхностей SmB_6 . Отношение сопротивлений для поверхностей (100), обработанных методом ХМП и „традиционным“ методом абразивной полировки и химического травления, при 1.9 К не превышает 3%. Для поверхностей (110) аналогичное отношение достигает

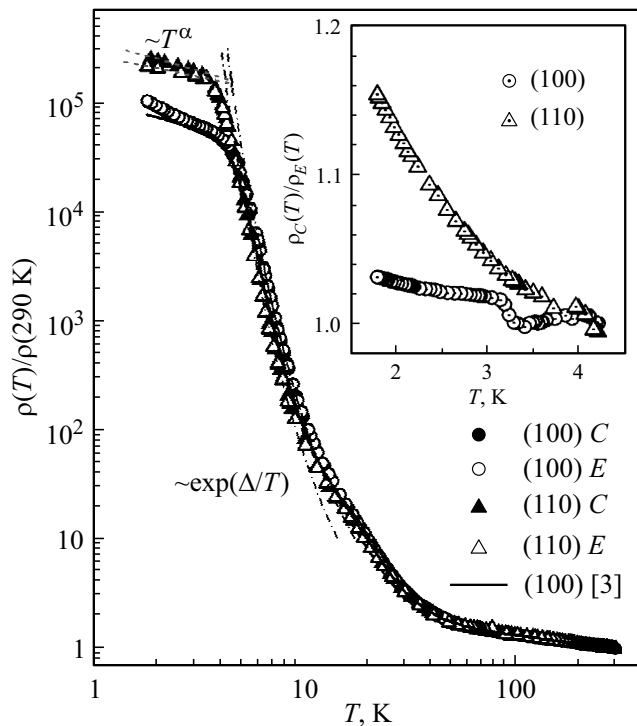


Рис. 2. Нормированные температурные зависимости удельного сопротивления $\rho(T)/\rho(290\text{ К})$ для пластинок монокристаллов SmB_6 с поверхностями (100) и (110), полученными методом ХМП (С) и абразивной полировкой с последующим химическим травлением (Е). Сплошной линией приведены значения $\rho(T)/\rho(290\text{ К})$ для монокристаллического образца SmB_6 с поверхностями (100) после травления [3]. Штрихпунктирными и пунктирными линиями показаны активационные и степенные асимптотики удельного сопротивления (см. текст). На вставке приведено отношение $\rho_C(T)/\rho_E(T)$ для образцов SmB_6 с поверхностями (100) и (110) в диапазоне температур, отвечающих режиму поверхностной проводимости.

15% (см. вставку на рис. 2). Заметный рост сопротивления для поверхностей (110), обработанных методом ХМП и „традиционным“ методом, при понижении температуры, по-видимому, следует сопоставить с уменьшением показателя степени от $\alpha \approx -0.57$ до $\alpha \approx -0.38$ после травления (рис. 2). Отметим, что отсутствие выраженного степенного поведения удельного сопротивления в образце с поверхностью [100] (рис. 2) не позволяет объяснить зависимости $\rho \sim T^\alpha$ эффектами, связанными с влиянием межэлектронного взаимодействия в системах с сильным беспорядком [9], который в SmB_6 обусловлен присутствием на поверхности ступеней различного размера и ориентации (рис. 1). С другой стороны, степенные температурные зависимости проводимости не характерны для электронного транспорта в топологических изоляторах, процессы рассеяния носителей заряда в которых блокируются жесткой связью между спином и импульсом электрона.

3.4. Гальваномагнитные свойства

Наиболее сильные различия в магнетосопротивлении проявляются для образца SmB_6 с поверхностями (110) при температуре 1.9 К. В отличие от поверхностей (100), способ подготовки которых практически не влияет на амплитуду $\Delta\rho/\rho$ (рис. 3), ХМП поверхности (110) значительно увеличивает амплитуду отрицательного магнетосопротивления в сравнении с поверхностью, подвергнутой абразивной полировке и химическому травлению (от $\Delta\rho/\rho \approx -13\%$ до $\Delta\rho/\rho \approx 18\%$ в поле 8 Тл при температуре 1.9 К, рис. 3). Особо отметим близкий к линейному характер зависимости $\Delta\rho/\rho \sim B$, который может указывать на электронный транспорт в режиме сильного беспорядка [10].

Данные для эффекта Холла в SmB_6 приведены на вставке к рис. 3. Для удобства сравнения измеренные значения нормированы на соответствующую величину при 4.2 К. Видно, что для полярных поверхностей (100) рост амплитуды коэффициента Холла при понижении температуры сопоставим с реперным образцом из работы [3]. В то же время для неполярных поверхностей (110) коэффициент Холла увеличивается менее чем в 2 раза, причем относительное изменение практически

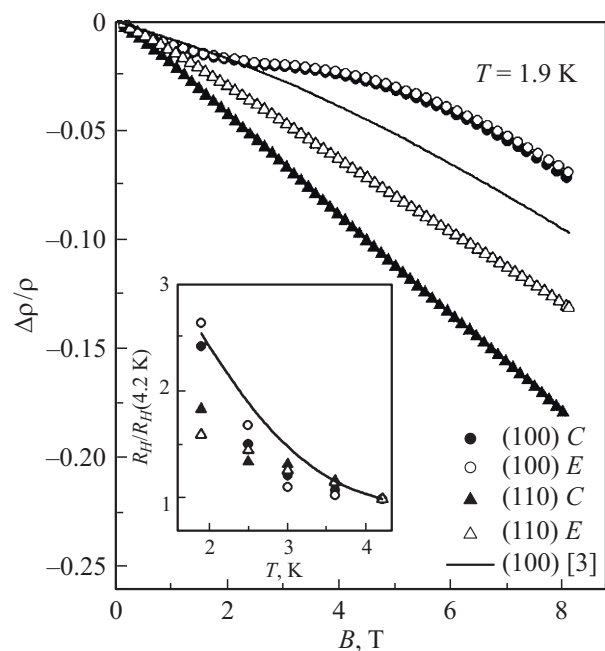


Рис. 3. Магнетосопротивление $\Delta\rho/\rho(B)$ при температуре 1.9 К для пластинок монокристаллов SmB_6 с поверхностями (100) и (110), полученными методом ХМП (С) и абразивной полировкой с последующим травлением (Е). Сплошной линией приведены значения $\Delta\rho/\rho(B)$ при 1.9 К для монокристаллического образца SmB_6 с поверхностями (100) после травления [3]. На вставке приведено отношение $R_H(T)/R_H(4.2\text{ К})$ для образцов SmB_6 с поверхностями (100) и (110), подготовленными методами С и Е, в сравнении с данными для монокристаллического образца SmB_6 с поверхностями (100) после травления [3].

не зависит от метода подготовки поверхности. Такое поведение коэффициента Холла с учетом высоких значений удельного сопротивления для поверхностей (110) (рис. 2) может быть связано с низкой подвижностью поверхностных носителей заряда вследствие рассеяния на дефектах и неоднородностях рельефа. Оценки холловской подвижности поверхностных носителей заряда для неполярных поверхностей (110) дают значения от 3 до $5.5 \text{ см}^2/(\text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1})$, что хорошо согласуется с известными данными для поверхностей монокристаллов SmB_6 [3].

4. Заключение

В работе впервые показано, что применение разрабатываемых кислотных композиций на основе аморфных, нанометровых частиц коллоидного диоксида кремния в качестве твердой фазы для ХМП поверхностей монокристаллов SmB_6 , ориентированных вдоль различных — полярных (100) и неполярных (110) — кристаллографических плоскостей, позволяет обеспечить равномерное саморастворение (полирование) поверхности материала. Установлено, что наиболее эффективный процесс ХМП реализуется посредством локализованных электрохимических парциальных реакций на бездефектных участках, лежащих между выявленными ростовыми макродефектами, причем средняя шероховатость подготовленной поверхности не превышает 0.8 нм для среднеквадратичного отклонения профиля рельефа. Применение метода ХМП в случае SmB_6 позволяет существенно модифицировать параметры электронного транспорта для неполярных поверхностей (110). Высокая степень гладкости поверхности с относительно небольшим искривлением рельефа (до 20 нм на длинах до 30 мкм) и наблюдением атомных террас в изображениях СТМ подтверждает перспективность применения этого метода для подготовки поверхности SmB_6 с последующим исследованием структурных и электронных свойств методом сканирующей туннельной микроскопии, а также исследования эффективных параметров поверхностных носителей заряда при помощи эффекта поля.

Благодарности

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-22-00990, <https://rscf.ru/project/22-22-00990/>. При выполнении работ использовано оборудование ЦКП „Аналитический центр ИОФ РАН“ и Центра коллективного пользования им. Д.И. Менделеева РХТУ.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M.V.A. Crivillero, M. König, J.C. Souza, P.G. Pagliuso, J. Sichelschmidt, P.F.S. Rosa, Z. Fisk, S. Wirth. *Phys. Rev. Res.*, **3**, 023162 (2021).
- [2] S.V. Demishev, M.I. Gilmanov, A.N. Samarin, A.V. Semeno, N.E. Sluchanko, N.A. Samarin, A.V. Bogach, N.Yu. Shitsevalova, V.B. Filipov, M.S. Karasev, V.V. Glushkov. *Sci. Rep.*, **8**, 7125 (2018).
- [3] В.В. Глушков, В.С. Журкин, А.Д. Божко, О.С. Кудрявцев, Б.В. Андрияшечкин, Н.С. Комаров, В.В. Воронов, Н.Ю. Шицевалова, В.Б. Филипов. *Письма в ЖЭТФ*, **116**, 770 (2022).
- [4] M. Ellguth, C. Tusche, F. Iga, S. Suga. *Phil.Mag.*, **96**, 3284 (2016).
- [5] L. Feng, W.G. Fahrenholtz, G.E. Hilmas, Y.S. Hor. *J. Am. Ceram. Soc.*, **102**, 1379 (2019).
- [6] S. Wolgast, Y.S. Eo, T. Öztürk, G. Li, Z. Xiang, C. Tinsman, T. Asaba, B. Lawson, F. Yu, J.W. Allen, K. Sun, L. Li, Ç. Kurdak, D.-J. Kim, Z. Fisk. *Phys. Rev. B*, **92**, 115110 (2015).
- [7] А.В. Ковалев, В.Ф. Ткаченко, А.А. Таран, Ю.Б. Падерно, В.Н. Падерно. *Неорг. матер.*, **25**, 968 (1989).
- [8] А.С. Артёмов. *Росс. нанотехнологии*, **6** (7–8), 54 (2011).
- [9] В.Ф. Гантмахер. *Электроны в неупорядоченных средах* (М., Физматлит, 2013) гл.6, с.133.
- [10] M.M. Parish, P.B. Littlewood. *Nature*, **426**, 162 (2003).

Редактор Г.А. Оганесян

Peculiarities of surface structure and surface electron transport in correlated topological insulator SmB_6

E.A. Artemov^{1,2}, A.V. Mantuzov^{1,2}, V.S. Zhurkin¹, A.D. Bozhko¹, O.S. Kudryavtsev¹, B.V. Andryushechkin¹, V.M. Shevlyuga¹, N.Yu. Shitsevalova³, V.B. Filipov³, V.V. Glushkov¹

¹ Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, 119991 Moscow, Russia

² AEM Technologies LLC, 109651 Moscow, Russia

³ Frantsevich Institute for Problems of Materials Science National Academy of Sciences of Ukraine, 03142 Kyiv, Ukraine

Abstract New method of chemical-mechanical polishing (CMP) with compositions based on nanometer-sized amorphous silica particles has been developed for the treatment of the surface of single crystals of samarium hexaboride SmB_6 . It is shown that the CMP method makes it possible to achieve surface roughness of the SmB_6 single crystals for a defect-free area with a root-mean-square profile deviation not exceeding 0.8 nm. The effect of the CMP method on the structural and electronic properties of the (100) and (110) surfaces of single-crystal SmB_6 samples is discussed.