

01.03.15

Эффект Холла и квантовые осцилляции магнитосопротивления в топологическом изоляторе Bi_2Se_3 . Роль объемных и поверхностных носителей

© Б.М. Фоминых, А.Н. Перевалова, С.В. Наумов, В.В. Чистяков, В.В. Марченков

Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: bogdan.fominyh@mail.ru

Поступила в Редакцию 12 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 18 апреля 2024 г.

При температурах 5 и 10 К и в магнитных полях до 9 Т измерены полевые зависимости магнитосопротивления и сопротивления Холла монокристалла топологического изолятора Bi_2Se_3 . Показано, что эффект Холла обусловлен объемными носителями, тогда как осцилляции Шубникова–де Гааза связаны с двумерными носителями.

Ключевые слова: монокристалл Bi_2Se_3 , рост кристаллов, поверхность Ферми, фаза Берри, осцилляции Шубникова–де Гааза.

DOI: 10.61011/FTT.2024.05.58068.90

1. Введение

Топологические изоляторы относятся к новому классу квантовых материалов, получение и всестороннее изучение которых представляет большой фундаментальный и прикладной интерес. Электронная структура таких материалов весьма необычна: в объеме топологический изолятор является полупроводником, тогда как его поверхность представляет собой двумерный металл. Такие металлические поверхностные состояния являются спин-поляризованными и защищены от рассеяния. Топологические изоляторы являются очень перспективными для применения в термоэлектронике [1–4], в устройствах спинтроники и квантовых компьютерах [5–7], а также в микро- и нанoeлектронике [8,9].

Bi_2Se_3 относится к классу топологических изоляторов. С одной стороны, его электронная структура хорошо изучена как экспериментально, так и теоретически [10–12]. С другой — имеющиеся в научной литературе данные об электронных характеристиках селенида висмута не всегда четко согласуются и коррелируют между собой: в частности, это относится к таким характеристикам, как концентрация и подвижность носителей тока [13–17]. Это может быть связано как с разным качеством исследуемых кристаллов, так и с различием в методах, с помощью которых получают информацию о тех или иных электронных параметрах.

В данной работе представлены результаты экспериментальных исследований сопротивления Холла и осцилляций Шубникова–де Гааза в магнитосопротивлении монокристалла Bi_2Se_3 , и последующего определения концентрации носителей заряда с использованием данных эффекта Холла и эффекта Шубникова–де Гааза.

2. Эксперимент

Монокристаллы топологического изолятора Bi_2Se_3 были выращены методом Бриджмена–Стокбаргера. Компоненты Bi, Se брали в стехиометрическом соотношении 2:3, затем эти компоненты смешивали и помещали в кварцевую ампулу. Ампулу вакуумировали до давления 10^{-4} atm и запаивали. Затем ампулу нагревали до 850°C и выдерживали в течение 30 h. На втором этапе полученные компоненты измельчали и снова помещали в кварцевую ампулу с удлиненным острым кончиком, покрытую изнутри слоем графита. Ампулу вакуумировали до остаточного давления $\sim 10^{-4}$ atm, запаивали и помещали в печь с большим градиентом температуры около 50 deg/cm . Далее ампулу нагревали до температуры около 750°C до полного расплавления исходных компонентов. Ампулу выдерживали 2 h, а затем медленно, со скоростью $\sim 3 \text{ mm/h}$, опускали в холодную зону печи. Выращенные в ходе этого процесса монокристаллы имели цилиндрическую форму с острой вершиной, размерами $\sim 5\text{--}7 \text{ mm}$ в диаметре и $\sim 10\text{--}20 \text{ mm}$ в длину. Отношение сопротивлений синтезированных кристаллов $\text{RRR} (\rho_{300\text{K}}/\rho_{5\text{K}}) \approx 4.8$, что сравнимо с известными данными из литературы [18,19]. Для проведения измерений магнитотранспортных свойств был подготовлен образец путем скола от общего монокристалла, размеры полученного образца составили $0.35 \times 1.3 \times 3.22 \text{ mm}$.

На рис. 1 приведен фрагмент дифрактограммы, снятой с поверхности Bi_2Se_3 , а на вставке показана фотография монокристалла. Видно, что все пики могут быть индексованы как (00*l*), откуда следует, что поверхность монокристалла совпадает с плоскостью типа (00*l*).

Магнитосопротивление ρ_{xx} и сопротивление Холла ρ_{xy} были измерены по 4-точечной схеме в Центре

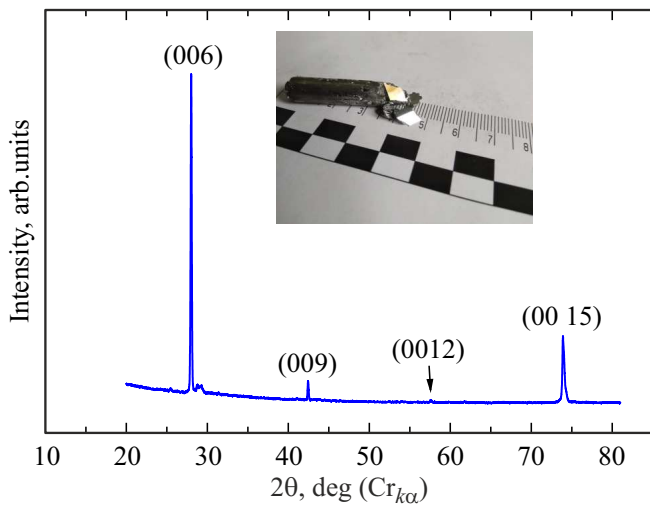


Рис. 1. Фрагмент дифрактограммы естественного скола монокристалла Bi_2Se_3 . На вставке — фотография монокристалла Bi_2Se_3 и его скола.

коллективного пользования ИФМ УрО РАН на установке для измерения физических свойств PPMS-9 при температурах 5 и 10 К и в магнитных полях до 9 Т.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 2 представлены полевые зависимости сопротивления Холла ρ_{xy} монокристалла Bi_2Se_3 при 5 и 10 К. Видно, что ρ_{xy} является отрицательным по величине и линейно зависит от магнитного поля. Это означает, что основным типом носителей тока являются электроны. В соответствии с однозонной моделью их концентрацию

можно оценить по формуле

$$n_{\text{Hall}} = 1/(eR_{\text{H}}), \quad (1)$$

где $R_{\text{H}} = \rho_{xy}/B$ — коэффициент Холла, e — заряд электрона. Полученные значения концентрации n_{Hall} приведены в таблице, из которой видно, что концентрация носителей слегка уменьшается с температурой, и это согласуется с данными работ [12,18,20].

На рис. 3 представлены полевые зависимости магнитосопротивления ρ_{xx} Bi_2Se_3 при температурах 5 и 10 К. При обеих температурах магнитосопротивление монотонно возрастает с ростом магнитного поля, при этом увеличение температуры приводит к росту величины ρ_{xx} .

Еще одним способом определения параметров электронной структуры и, в частности, оценки концентрации носителей тока является анализ осцилляций Шубникова–де Гааза. Как видно из рис. 3, в полях выше 7 Т наблюдаются осцилляции магнитосопротивления. Согласно правилу квантования Онсагера, экстремальная площадь сечения поверхности Ферми A_{F} связана с частотой осцилляций F соотношением

$$F = A_{\text{F}}\hbar/(2\pi e), \quad (2)$$

где \hbar — постоянная Планка. На рис. 4, *a* и *b* приведены осциллирующие части магнитосопротивления, полученные путем вычитания из зависимостей на рис. 3 монотонной полиномиальной части. Для определения частот колебаний было построено быстрое преобразование Фурье, результаты которого представлены на рис. 4, *c* и *d*. Отметим, что при обеих температурах данным осцилляциям соответствуют единственные частоты, значения которых приведены в таблице. Используя значения F и A_{F} , можно определить волновой вектор на поверхности

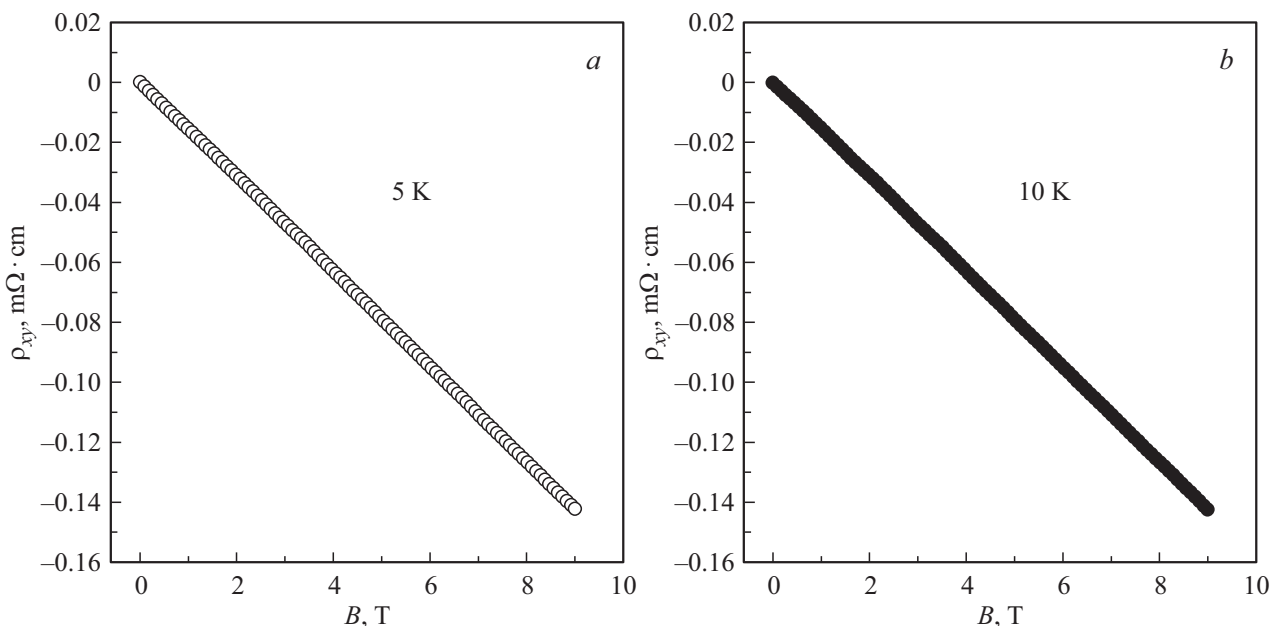


Рис. 2. Полевые зависимости холловского сопротивления монокристалла Bi_2Se_3 при температурах *a*) 5 и *b*) 10 К.

Параметры электронной структуры монокристалла Bi_2Se_3 при температурах 5 и 10 К

| Температура | $n_{\text{Hall}}, 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ | $n_{\text{SDH}}^{3\text{D}}, 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ | $F, \text{ Т}$ | $A_F, \text{ \AA}^{-2}$ | $k_F, \text{ \AA}^{-1}$ | $n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}, 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ | $d, \text{ nm}$ |
|-------------|--|---|----------------|-------------------------|-------------------------|---|-----------------|
| 5 К | 3.98 | 1.97 | 230 | 0.02196 | 0.0836 | 5.56 | 1.4 |
| 10 К | 3.96 | 1.91 | 225 | 0.02148 | 0.0827 | 5.44 | 1.37 |

Примечание. n_{Hall} — концентрация носителей тока, определенная из эффекта Холла, $n_{\text{SDH}}^{3\text{D}}$ — объемная концентрация носителей тока, определенная из эффекта Шубникова–де Гааза, F — частота осцилляций, A_F — экстремальная площадь сечения поверхности Ферми, k_F — волновой вектор на поверхности Ферми, $n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}$ — двумерная концентрация носителей тока, определенная из осцилляций Шубникова–де Гааза, d — толщина двумерного слоя.

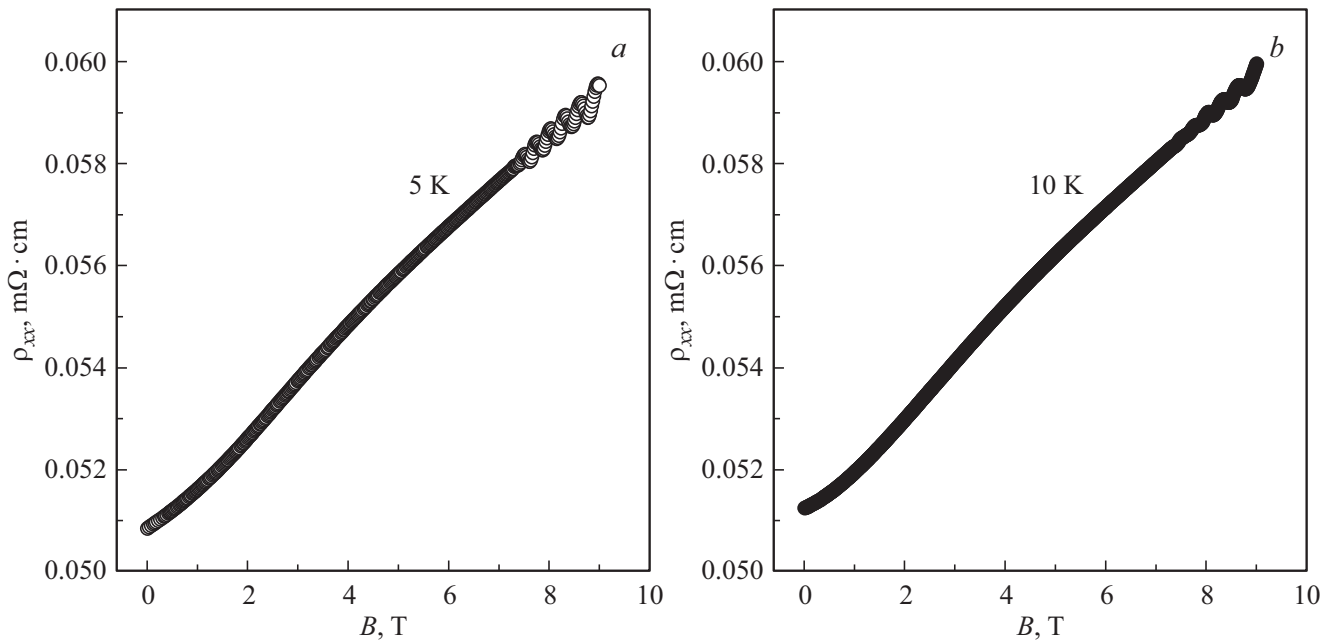


Рис. 3. Полевые зависимости магнитосопротивления монокристалла Bi_2Se_3 при температурах а) 5 и б) 10 К.

Ферми k_F и оценить объемную концентрацию электронов $n_{\text{SDH}}^{3\text{D}}$ по формулам

$$k_F = \sqrt{A_F/\pi}, \tag{3}$$

$$n_{\text{SDH}}^{3\text{D}} = \frac{1}{3} k_F^3/\pi^2. \tag{4}$$

Полученные значения параметров электронной структуры приведены в таблице.

Видно, что значения концентрации, определенные из эффекта Холла и осцилляций Шубникова–де Гааза, отличаются более чем в два раза. Такое различие может заключаться в различных типах носителей тока, которые дают вклад в эффект Холла и эффект Шубникова–де Гааза. Так, в случае топологических изоляторов известно, что на их поверхности существуют безмассовые дираковские фермионы с линейным законом дисперсии. Наиболее известным способом определения наличия дираковских фермионов из осцилляций является исполь-

зование правила квантования Лифшица–Онсагера:

$$n = F/B + \Delta, \tag{5}$$

где n — целый индекс уровня Ландау, соответствующий минимуму на осциллирующей части магнитосопротивления, $n + 1/2$ — полуцелый индекс, соответствующий максимуму, $\Delta = \beta + \delta$, β — фазовый фактор Берри, соответствующей фазе Берри, δ — фазовый фактор, зависящий от геометрии поверхности Ферми. При этом если в системе присутствуют дираковские фермионы, то $\beta = 1/2$ [21]. Из (5) следует, что точка пересечения прямой линии функции $n = f(1/B)$ с осью ординат дает фазовый фактор Δ . На рис. 5 построены зависимости $n = f(1/B)$, а соответствующие значения Δ равны -0.26 и -0.47 для температур 5 и 10 К соответственно. Также стоит отметить, что полученные значения частот из зависимостей $n = f(1/B)$ составили 230.67 и 224.26 Т, что хорошо согласуется со значениями, определенными с помощью быстрого преобразования Фурье (см. таблицу).

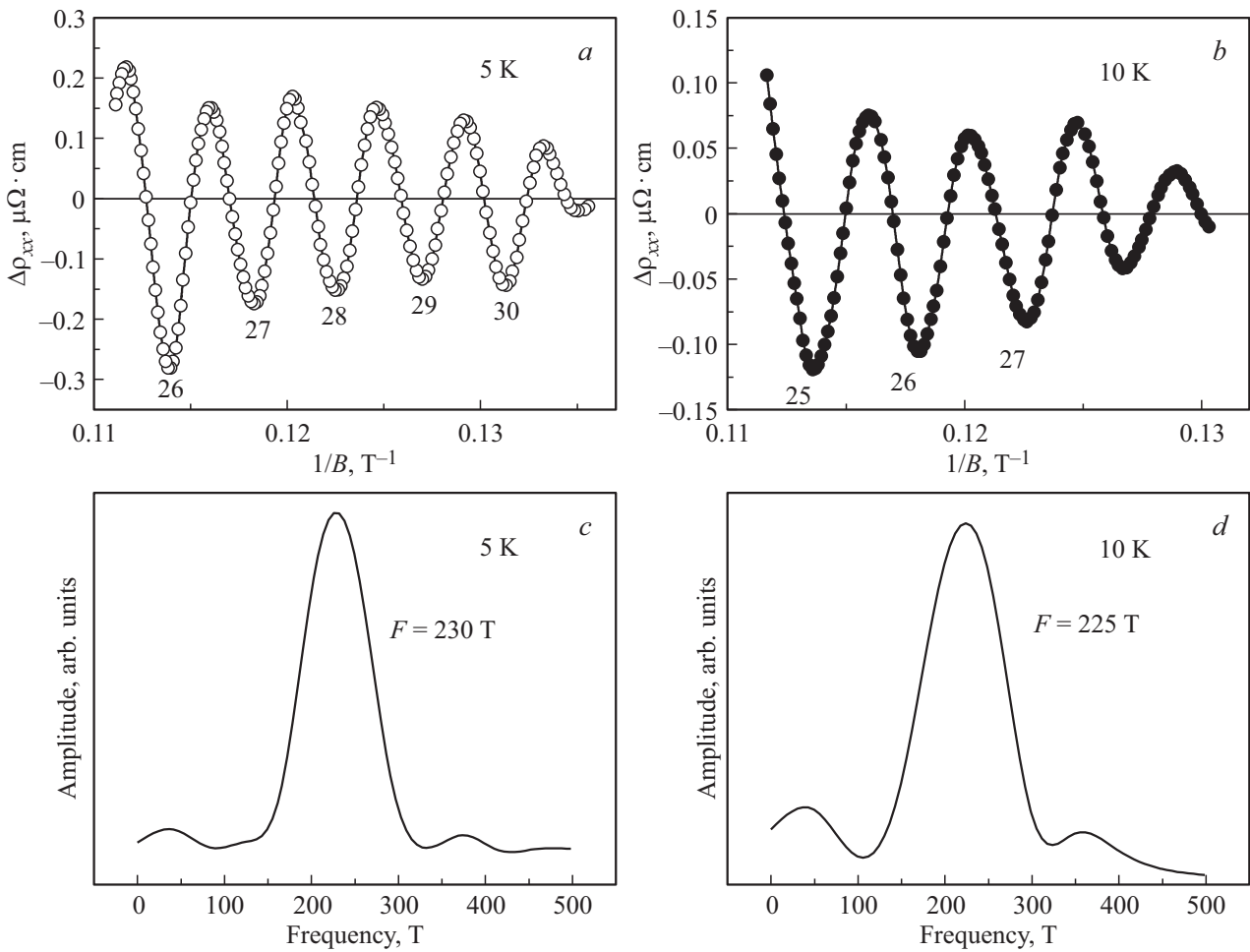


Рис. 4. Осциллирующие части магнитосопротивления монокристалла Bi_2Se_3 при температурах *a)* 5 и *b)* 10 К. Быстрые преобразования Фурье осциллирующих частей магнитосопротивления при температурах *c)* 5 и *d)* 10 К.

Хорошо известно, что фазовый фактор δ может быть равен: 1) нулю: $\delta = 0$ для двумерной поверхности Ферми, и 2) $\delta = \pm 1/8$ для трехмерной. Здесь знак „+“ — для электронов и „-“ — для дырок [22–24]. В нашем случае для трехмерной поверхности Ферми знак „+“, поскольку основным типом носителей являются электроны, что следует из эффекта Холла. Согласно нашим данным, фазовый фактор Δ равен -0.26 и -0.47 для температур 5 и 10 К соответственно. Если предположить, что $\delta = 0$, то $\Delta = \beta$. Если же $\delta = \pm 1/8$, то $\beta = -0.385$ и -0.695 для температур 5 и 10 К соответственно. Отсюда следует, что в обоих случаях имеет место нетривиальная фаза Берри, что является одним из аргументов в пользу того, что данные осцилляции обусловлены двумерными состояниями.

Отличие β от идеального значения $|\beta| = 1/2$ можно объяснить неидеальностью дираковского закона дисперсии. Так, в теоретической работе [25] было показано, что если закон дисперсии помимо линейного вклада имеет еще и квадратичный, то β отлично от идеального значения. Такие неидеальные значения β наблюдались для Bi_2Se_3 и Bi_2Te_3 , например, в работах [15,17,26].

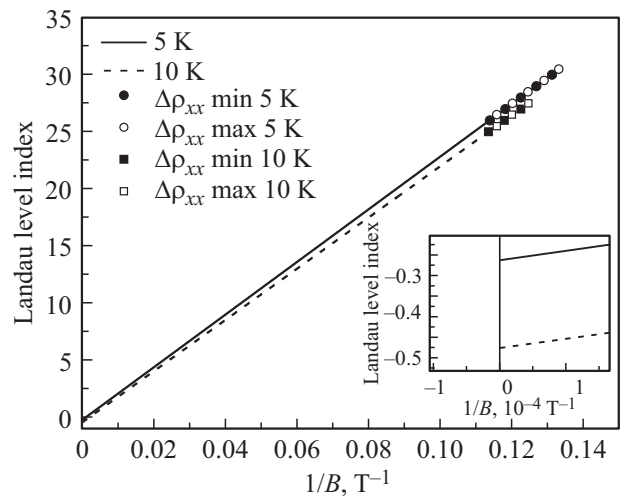


Рис. 5. Зависимости индекса уровня Ландау от обратного магнитного поля $n = f(1/B)$ при температурах 5 (кружки) и 10 К (квадратики). На вставке показаны части прямых линий вблизи нуля.

В других экспериментальных работах [13,27,28] было показано, что в чистых топологических изоляторах Bi_2Se_3 , а также Bi_2Se_3 , допированных Cu, с большими значениями концентраций носителей $n > 3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ осцилляции наблюдались только до определенных значений углов θ между направлением магнитного поля и кристаллографической осью c , перпендикулярной плоскости образца, а зависимости частот колебаний имели вид $F \propto 1/\cos\theta$. Это свидетельствовало о том, что данные осцилляции обусловлены двумерными состояниями, тогда как для трехмерных состояний осцилляции должны наблюдаться вплоть до углов 90° . В частности, в работе [13] авторы связывают это с большим числом двумерных проводящих каналов в Bi_2Se_3 . Помимо угловых измерений частоты осцилляций, в работе [16] k_F для Bi_2Se_3 с $n = 5.6 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ был определен с помощью фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES), который, как подчеркивают авторы, хорошо согласуется с k_F , определенным в их работе [16] из осцилляций, что также является хорошим аргументом (в дополнение к зависимости $F \propto 1/\cos\theta$) в пользу того, что осцилляции обусловлены двумерными состояниями. Следует также отметить, что в работах по наблюдению осцилляций за счет двумерных состояний в топологических изоляторах с большой концентрацией носителей ($n > 3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) преобразование Фурье показывает единственную достаточно большую частоту $F > 150 \text{ T}$ [13,16,27–29], тогда как в работах по наблюдению осцилляций в Bi_2Se_3 с концентрацией носителей $\sim 10^{17}–10^{19} \text{ cm}^{-3}$ за счет трехмерной эллипсоидальной поверхности Ферми эти осцилляции имели значительно меньшие частоты $F < 100 \text{ T}$ [30–32].

Полученные в нашей работе данные свидетельствуют о наблюдении нетривиальной фазы Берри. При этом частоты осцилляций достаточно большие ($F > 200 \text{ T}$), как и относительно большие значения концентрации носителей тока ($n > 3.9 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Отметим также, что значения k_F в нашей работе (таблица) хорошо согласуются со значениями k_F для дираковских состояний, полученным с помощью ARPES в работах [16] ($k_F = 0.084 \text{ \AA}^{-1}$) и [11] ($k_F = 0.08 \text{ \AA}^{-1}$). Из вышеперечисленного можно заключить, что наблюдаемые осцилляции в магнитосопротивлении (рис. 2) обусловлены дираковскими фермионами с двумерной поверхностью Ферми, тогда как основной вклад в эффект Холла дают трехмерные носители. Этим и можно объяснить наблюдаемое различие в значениях концентраций, определенных из эффекта Холла и эффекта Шубникова–де Гааза. Тем не менее, можно оценить двумерную концентрацию носителей согласно выражению

$$n_{\text{SDH}}^{2\text{D}} = k_F^2/(4\pi). \quad (6)$$

Помимо этого, используя выражение

$$d = n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}/n_{\text{Hall}}, \quad (7)$$

можно также оценить толщину двумерного проводящего слоя. Полученные значения $n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}$ и d для

температур 5 и 10 К приведены в таблице. Отметим, что полученные значения неплохо согласуются с работой [13], где $n_{\text{SDH}}^{2\text{D}} = 7.8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, $d = 1.7 \text{ nm}$ и $n_{\text{Hall}} = 4.7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

4. Заключение

При исследовании магнитосопротивления и эффекта Холла монокристалла топологического изолятора Bi_2Se_3 с отношением сопротивлений $\text{RRR} \approx 4.8$ обнаружены осцилляции Шубникова–де Гааза как при относительно низких (5 К), так и при более высоких (10 К) температурах. Проведены оценки концентраций носителей тока и параметров электронной структуры из данных по эффекту Холла (n_{Hall}) и эффекта Шубникова–де Гааза ($n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}$). Показано, что значение n_{Hall} превосходит $n_{\text{SDH}}^{2\text{D}}$ более чем в два раза. На основе анализа полученных данных сделан вывод о том, что наблюдаемое различие обусловлено тем, что осцилляции связаны с двумерными носителями тока, тогда как основной вклад в эффект Холла дают трехмерные носители.

Благодарности

Авторы благодарят Е.Б. Марченкову и А.М. Барташевича за помощь при выполнении этой работы.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема „Спин“ № 122021000036-3). Б.М. Фоминых благодарит Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН за поддержку работы по государственному заданию Минобрнауки РФ по теме „Спин“, которая выполнялась в рамках молодежного проекта ИФМ УрО РАН № м 24-23.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] H. Osterhage, J. Gooth, B. Hamdou, P. Gwozdz, R. Zierold, K. Nielsch. Appl. Phys. Lett. **105**, 12, 123117 (2014).
- [2] Y.V. Ivanov, A.T. Burkov, D.A. Pshenay-Severin. Phys. Status Solidi B **255**, 7, 1800020 (2018).
- [3] N. Xu, Y. Xu, J. Zhu. npj Quantum Mater. **2**, 1, 51 (2017).
- [4] Dedi, P.-C. Lee, P.-C. Wei, Y.-Y. Chen. Nanomater. **11**, 3, 819 (2021).
- [5] D. Pesin, A.H. MacDonald. Nature Mater. **11**, 5, 409 (2012).
- [6] M. He, H. Sun, Q.L. He. Front. Phys. **14**, 4, 43401 (2019).
- [7] Y. Fan, K.L. Wang. SPIN **6**, 2, 1640001 (2016).
- [8] J. Seidel. Nature Mater. **18**, 3, 188 (2019).
- [9] P. Liu, J.R. Williams, J.J. Cha. Nature Rev. Mater. **4**, 7, 479 (2019).
- [10] H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, S.-C. Zhang. Nature Phys. **5**, 6, 438 (2009).

- [11] Z.-H. Pan, E. Vescovo, A.V. Fedorov, D. Gardner, Y.S. Lee, S. Chu, G.D. Gu, T. Valla. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 25, 257004 (2011).
- [12] V.V. Marchenkov, A.V. Lukoyanov, S.T. Baidak, A.N. Perevalova, B.M. Fominykh, S.V. Naumov, E.B. Marchenkova. *Micromachines* **14**, 10, 1888 (2023).
- [13] H. Cao, J. Tian, I. Miotkowski, T. Shen, J. Hu, S. Qiao, Y.P. Chen. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 21, 216803 (2012).
- [14] Y. Yan, L.-X. Wang, X. Ke, G. Van Tendeloo, X.-S. Wu, D.-P. Yu, Z.-M. Liao. *Sci. Rep.* **4**, 1, 3817 (2014).
- [15] D. Kumar, A. Lakhani. *Phys. Status Solidi (RRL) — Rapid Res. Lett.* **9**, 11, 636 (2015).
- [16] M. Petrushevsky, E. Lahoud, A. Ron, E. Maniv, I. Diamant, I. Neder, S. Wiedmann, V.K. Guduru, F. Chiappini, U. Zeitler, J.C. Maan, K. Chashka, A. Kanigel, Y. Dagan. *Phys. Rev. B* **86**, 4, 045131 (2012).
- [17] T.R. Devidas, E.P. Amaladass, S. Sharma, R. Rajaraman, D. Sornadurai, N. Subramanian, A. Mani, C.S. Sundar, A. Bharathi. *Europhys. Lett.* **108**, 6, 67008 (2015).
- [18] E.P. Amaladass, T.R. Devidas, S. Sharma, C.S. Sundar, A. Mani, B. Arunachalam. *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 7, 075003 (2016).
- [19] G. Awana, R. Sultana, P.K. Maheshwari, R. Goyal, B. Gahtori, A. Gupta, V.P.S. Awana. *J. Supercond. Nov. Magn.* **30**, 4, 853 (2017).
- [20] P. Cermak, P. Knotek, P. Ruleová, V. Holy, K. Pálka, V. Kucek, L. Benes, J. Navratil, C. Drasar. *J. Solid State Chem.* **277**, 819 (2019).
- [21] W. Zhao, X. Wang. *Adv. Phys.: X* **7**, 1, 2064230 (2022).
- [22] Y. Zhao, H. Liu, C. Zhang, H. Wang, J. Wang, Z. Lin, Y. Xing, H. Lu, J. Liu, Y. Wang, S.M. Brombosz, Z. Xiao, S. Jia, X.C. Xie, J. Wang. *Phys. Rev. X* **5**, 3, 031037 (2015).
- [23] H. Murakawa, M.S. Bahramy, M. Tokunaga, Y. Kohama, C. Bell, Y. Kaneko, N. Nagaosa, H. Hwang, Y. Tokura. *Sci.* **342**, 6165, 1490 (2013).
- [24] M. Busch, O. Chiatti, S. Pezzini, S. Wiedmann, J. Sánchez-Barriga, O. Rader, L.V. Yashina, S.F. Fischer. *Sci. Rep.* **8**, 1, 485 (2018).
- [25] A. Taskin, Y. Ando. *Phys. Rev. B* **84**, 3, 035301 (2011).
- [26] S. Barua, K.P. Rajeev, A.K. Gupta. *J. Phys.: Condens. Matter* **27**, 1, 015601 (2014).
- [27] B.J. Lawson, Y.S. Hor, L. Li. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 22, 226406 (2012).
- [28] E. Lahoud, E. Maniv, M.S. Petrushevsky, M. Naamneh, A. Ribak, S. Wiedmann, L. Petaccia, Z. Salman, K.B. Chashka, Y. Dagan, A. Kanigel. *Phys. Rev. B* **88**, 19, 195107 (2013).
- [29] С.И. Веденеев. *УФН* **187**, 4, 411 (2017). [*S.I. Vedeneev. Phys. — Usp.* **60**, 4, 385 (2017)].
- [30] N.P. Butch, K. Kirshenbaum, P. Syers, A.B. Sushkov, G.S. Jenkins, H.D. Drew, J. Paglione. *Phys. Rev. B* **81**, 24, 241301(R) (2010).
- [31] J.G. Analytis, J.-H. Chu, Y. Chen, F. Corredor, R.D. McDonald, Z.X. Shen, I.R. Fisher. *Phys. Rev. B* **81**, 20, 205407 (2010).
- [32] K. Eto, Z. Ren, A.A. Taskin, K. Segawa, Y. Ando. *Phys. Rev. B* **81**, 19, 195309 (2010).

Редактор Е.В. Толстякова