

Орбитальное квантование в системе краевых дираковских фермионов в наноперфорированном графене

Ю. И. Латышев^a, А. П. Орлов^a, А. В. Фролов^{ab}, В. А. Волков^{ab}, И. В. Загороднев^a, В. А. Скуратов^c,
Ю. В. Петров^d, О. Ф. Вывенко^d, Д. Ю. Иванов^e, М. Конзиковски^{f1)}, П. Монсеау^{g1)}

^aИнститут радиотехники и электроники им. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

^bМосковский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

^cОбъединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

^dМеждисциплинарный ресурсный центр по направлению “Нанотехнологии”, С.-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия

^eИнститут проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^fEcole Polytechnique, 91128 Palaiseau, Cedex France

^gInstitut Neel, CNRS/UJF, UPR2940, 38042 Grenoble, Cedex 9, France

Поступила в редакцию 10 июля 2013 г.

Исследованы зависимости электросопротивления R наноперфорированных образцов графена от положения уровня Ферми E_F , которое изменялось с помощью напряжения на затворе V_g . Наноперфорация проводилась с помощью облучения образцов графена на подложке Si/SiO₂ либо тяжелыми (ксенон), либо легкими (гелий) ионами. При низких температурах в отсутствие магнитного поля на зависимости $R(V_g)$ обнаружена серия регулярных пиков. Пики связываются с прохождением E_F через эквидистантную лестницу уровней, образованных орбитально-квантованными состояниями краевых дираковских фермионов (ДФ), вращающихся вокруг каждого нанодоверстия. Результаты согласуются с теорией краевых состояний для безмассовых ДФ.

DOI: 10.7868/S0370274X13160066

1. Введение. Спустя почти десятилетие с момента получения графена [1, 2] не ослабевает интерес к исследованию его необычных свойств, обусловленных наличием в нем безмассовых дираковских фермионов (ДФ). К таковым относится теоретическая возможность существования в графене краевых состояний [3–5]. Одним из первых указаний на проявление подобных состояний в транспортных измерениях явилось обнаружение магнитоосцилляций сопротивления типа Ааронова–Бома в перфорированных образцах тонкого графита [6] и графена [7] в очень сильных магнитных полях. В отсутствие магнитного поля краевые ДФ, если они существуют, должны двигаться в узком эффективном кольце вокруг каждого нанодоверстия. Конечность периметра отверстия и периодичность движения должны приводить к орбитальному квантованию энергии краевых ДФ, подобно тому как это происходит с электронами в атоме Бора. Цель настоящей работы – обнаружить

уровни орбитального квантования краевых ДФ в образцах графена с нанодоверстиями с помощью развертки напряжения V_g на управляющем электроде (затворе).

2. Образцы. Измерялось сопротивление образцов графена на оксидированной подложке высоколегированного кремния Si/SiO₂ с толщиной слоя оксида $d = 300$ нм. Исследовались как образцы графена, переданные из Манчестерского университета (Graphene Industries Co), так и собственные образцы, которые получались механическим отщеплением от монокристаллов естественного графита с помощью адгезионной ленты с последующим переносом на подложку. Нанодоверстия создавались двумя способами: облучением тяжелыми ионами (Xe^{+26}) с энергией 167 МэВ на циклотроне ИЦ-100 в лаборатории ядерных реакций ОИЯИ и облучением ионами гелия на гелиевом ионном микроскопе ORION в СПбГУ.

В первом случае образуется ансамбль случайно распределенных колоннообразных дефектов. Для

¹⁾М. Konczykowski, P. Monceau.

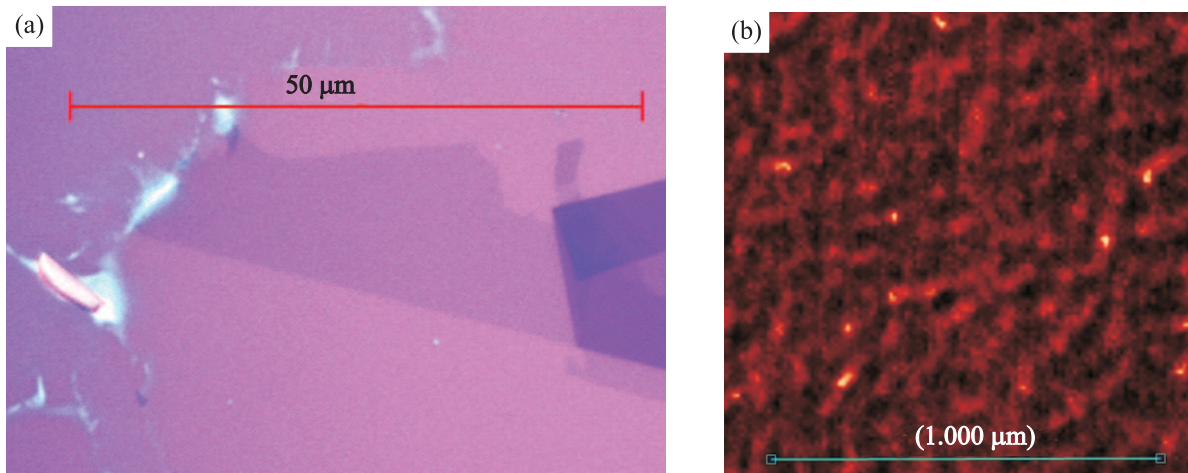


Рис. 1. Изображение образца графена на подложке Si/SiO₂, облученного тяжелыми ионами. (a) – Оптическое изображение. (b) – Изображение, полученное с помощью сканирующего атомно-силового микроскопа в режиме фазового контраста масштаб 1 мкм

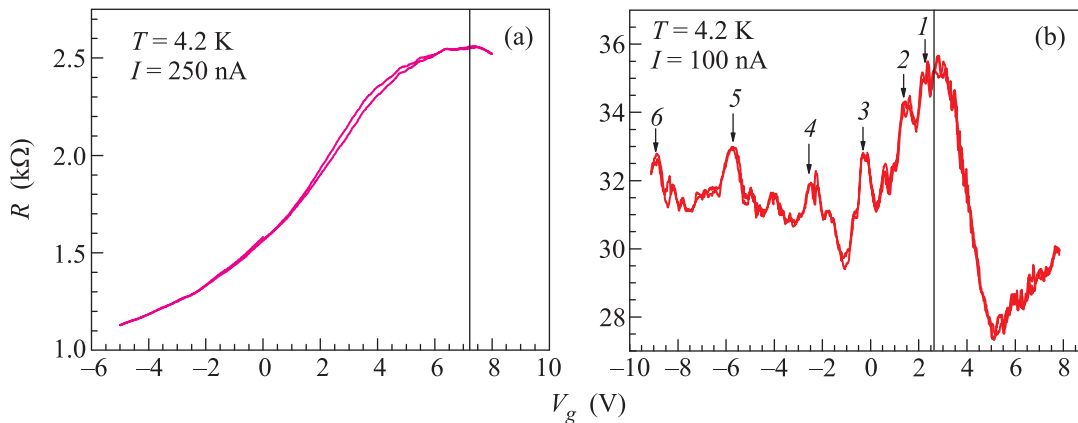


Рис. 2. Зависимости электросопротивления контрольного образца графена (a) и графена с колоннообразными дефектами (b) от затворного напряжения (образец 3, см. рис. 1b). Вертикальной прямой отмечено напряжение, соответствующее дираковской точке. Основная серия максимумов отмечена стрелками

электронов в графене каждый дефект эквивалентен появлению одного наноотверстия. Оценка диаметра наноотверстий D с использованием атомно-силового микроскопа (рис. 1b) (а также сканирующего электронного микроскопа) дала значение $D \approx 10$ нм. Колоннообразные дефекты идентифицировались по бугоркам (*hillocks*) выдавленного из них аморфного вещества [8]. Их средняя концентрация соответствовала флюенсу ионов ксенона $3 \cdot 10^9$ см⁻². Во втором случае облучение графена ионами гелия с диаметром пучка 1–2 нм приводило к образованию решетки наноотверстий диаметром $D \approx 2$ нм при их плотности $2 \cdot 10^{11}$ см⁻². При этом сопротивление образца увеличивалось в 20 раз, поскольку длина свободного пробега носителей уменьшалась с 300–500 нм до размеров порядка периода решетки (≈ 20 нм). Электри-

ческие контакты наносились с помощью лазерного напыления золота и имели контактное сопротивление порядка 100 Ом.

3. Эксперимент. Измерения проводились в криогенной вставке с обменным газом при фиксированной температуре в интервале 1.8–100 К. В измерительную схему образцы графена с управляющим электродом включались по схеме полевого транзистора с общим истоком. Напряжение на затворе разворачивалось с помощью контролируемого компьютером источника-измерителя Keithley 2400 со скоростью не больше 1 В/с с контролем тока через затвор. Сопротивление образца измерялось на слабом постоянном или переменном токе (0.1–10 мкА). При этом самый маленький измерительный ток более чем в 10^3 раз превышал ток утечки с затвора

в образец. Для измерения постоянного напряжения использовался нановольтметр Keithley 2182, а для измерения переменного – двухфазный синхронный усилитель SR 530. Зависимости $R(V_g)$ обычно снимались дважды: сначала при возрастании V_g , а затем при его убывании, при обеих полярностях V_g . Измерения в сильных магнитных полях проводились в Европейской лаборатории сильных магнитных полей (EMFL) в г. Гренобле.

На рис. 2а показана зависимость $R(V_g)$ для контрольного (неперфорированного) образца графена. Она имеет максимум в дираковской точке, смещенный в положительную область напряжений на затворе приблизительно на 6 В, что обычно связано с адсорбцией паров воды. Поэтому при $V_g = 0$ все образцы обладают дырочной проводимостью с концентрацией дырок порядка 10^{12} см^{-2} при подвижности $(1-5) \cdot 10^3 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$.

На образцах графена с колоннообразными дефектами, полученными в Дубне, в сопротивлении $R(V_g)$ появляется серия пиков (см. рис. 2б). Ограничимся обсуждением только наиболее сильных пиков (основная серия). Похожие пики проявляются также в более “грязных” структурах с решеткой нанодоверстий, полученных в СПбГУ с помощью гелиевого ионного микроскопа (рис. 3). Особенности в последнем случае

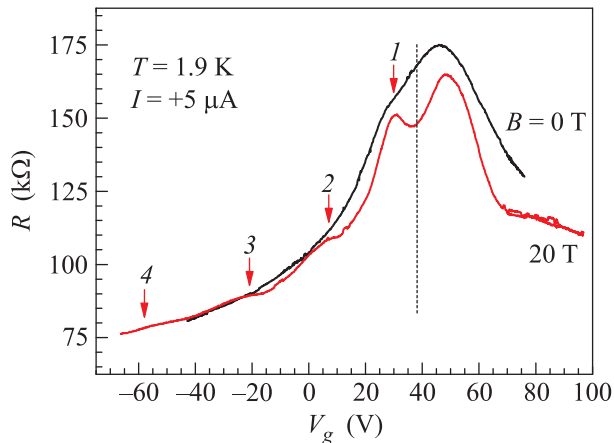


Рис. 3. Зависимость сопротивления графена с наноперфорацией, полученной с помощью гелиевого ионного микроскопа, от затворного напряжения (образец 1). Стрелками показаны положения особенностей в сопротивлении. Особенности проявляются ярче в магнитном поле 20 Тл

относительно слабы. Однако они резко усиливаются под действием магнитного поля (20 Тл), при котором магнитная длина становится соизмеримой с периметром нанодоверстия. Во всех образцах регулярная серия таких пиков прослеживается только на той ветви

зависимости $R(V_g)$, которая соответствует дырочной проводимости.

Обратим внимание на универсальную закономерность для основной серии пиков на кривой $R(V_g)$: для образцов обоих типов положение N -го пика, отсчитанного от точки Дирака, пропорционально N^2 (рис. 4).

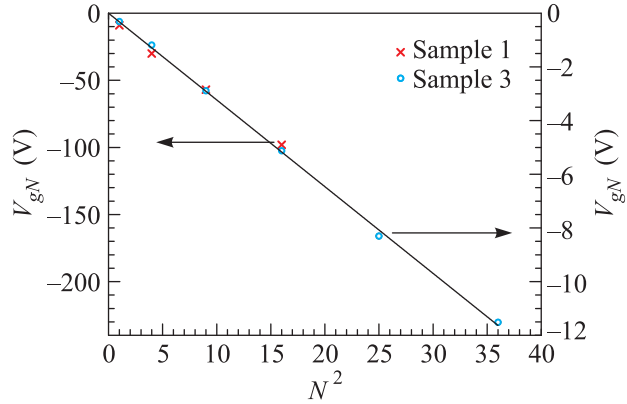


Рис. 4. Зависимость положения пиков $V_g N$, отмеченных стрелками на рис. 2 и 3, от квадрата их номера N . Затворное напряжение V_g отсчитывалось от дираковской точки. Данные получены на образце 3, облученном тяжелыми ионами (кружки, правая шкала), и образце 1, облученном ионами гелия (крестики, левая шкала). Масштабы на левой и правой шкалах отличаются в 20 раз

4. Сравнение с теорией. Впервые спектр поверхностных состояний для массивных дираковских электронов на полупространстве был получен еще в работе [9] (см. также обзор [10]). Граница образца характеризуется единственным феноменологическим параметром a , который входит в граничное условие для огибающих функций и описывает электронное строение поверхности на атомных масштабах. В безмассовом пределе зависимость энергии поверхностных состояний от двумерной тангенциальной компоненты импульса \mathbf{k}_{\parallel} имеет вид

$$E = 2\hbar v_F s |\mathbf{k}_{\parallel}|. \quad (1)$$

Здесь v_F – эффективная “скорость света” в уравнении Дирака, а параметр a для простоты считается малым ($|a| \ll 1$). “Спиновое” число $s = \pm 1$ является собственным значением оператора киральности, в данном случае пропорционального смешанному произведению векторов спина, нормали и \mathbf{k}_{\parallel} .

В графене роль спина играет долиная степень свободы, а роль поверхности – край образца. Простейшую теорию краевых состояний безмассовых ДФ в полубесконечном графене можно построить в

пренебрежении междолинным взаимодействием. Результат при $|a| \ll 1$ описывается формулой (1) с точностью до обозначений: ветви одномерного тангенциального импульса $k_{\parallel} > 0$ и $k_{\parallel} < 0$ отвечают разным долинным квантовым числам $s = \pm 1$ [5, 11, 12]. Микроскопический расчет граничного (в данном случае краевого) параметра a – очень сложная и на практике плохо определенная задача. Отметим лишь, что конечность величины a приводит к асимметрии спектра (1). Последнее можно понять в модели “инверсного гетероконтакта” [13]. В этой модели асимметрия спектра возникает при учете изменения работы выхода на контакте (см. ссылки в обзоре [10]). Будем определять параметр a из сравнения с экспериментом.

Краевые ДФ движутся вдоль линейного края со скоростью $v_{\text{edge}} = 2av_{\text{F}}$, которая при $|a| \ll 1$ много меньше фермиевской. В случае нанотверстия край является замкнутым и краевые носители крутятся вокруг отверстия по или против часовой стрелки (в зависимости от номера долины). Будем считать, что край однороден, т.е. параметр a не изменяется при движении вдоль края. Тогда орбитальное квантование тангенциального движения приводит к тому, что спектр (1) становится дискретным, точнее квазидискретным (см. рис. 5). Фермионы в краевых состояни-

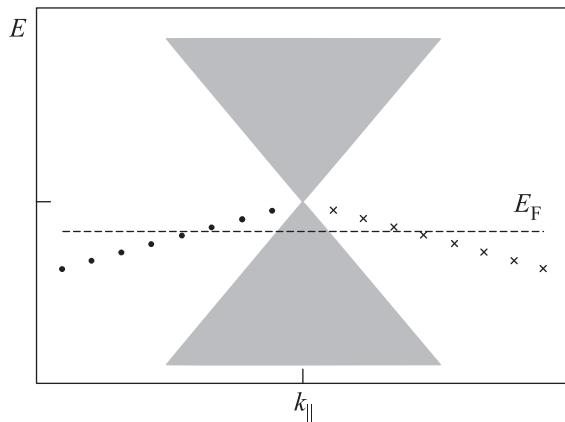


Рис. 5. Зависимость энергии ДФ от тангенциальной компоненты импульса k_{\parallel} в графене с отверстием диаметра D в схеме совмещенных долин. Квазиклассическое орбитальное квантование $k_{\parallel} = 2N/D$ с учетом извлеченного из эксперимента знака краевого параметра a приводит к появлению лестницы краевых уровней дырочного типа (см. (2)). Заселяющие эту лестницу краевые ДФ вращаются вокруг отверстия по или против часовой стрелки в левой (точки) или правой (крестики) долинах соответственно. Затемненная область – континуум объемных состояний

ях имеют конечное время жизни, связанное с несохранением тангенциальной компоненты импульса и

уходом ДФ из края в континуум объемных состояний.

Пренебрегая распадом краевых состояний, можно получить простое выражение для N -го уровня энергии краевого состояния, двукратно вырожденного по номеру долины и двукратно по настоящему спину:

$$E_N = 4\hbar av_{\text{F}}N/D. \quad (2)$$

Здесь использовано квазиклассическое условие орбитального квантования: $\pi D = 2\pi N/k_{\parallel}$, а $N = 1, 2, \dots$. В этом приближении спектр (2) эквидистантен. Положение уровня Ферми в графене связано с концентрацией носителей $n = V_g \varepsilon_0 \varepsilon / ed$ известным для безмассовых ДФ образом: $E_{\text{F}} = \hbar v_{\text{F}}(\pi n)^{1/2}$. Здесь d и ε – толщина и диэлектрическая проницаемость слоя оксида кремния, на котором лежит графен. В результате получаем выражение для напряжения на затворе V_{gN} , отвечающего резонансному условию $E_{\text{F}} = E_N$:

$$V_{gN} = (16a^2 ed / \pi \varepsilon_0 \varepsilon)(N/D)^2. \quad (3)$$

Наноперфорацию можно рассматривать как введение дополнительных рассеивателей для объемных ДФ. Логично предположить, что условие $E_{\text{F}} = E_N$ сопровождается резонансным рассеянием носителей на нанотверстиях, что и приводит к пикам в сопротивлении образца.

Выражение (3) согласуется с экспериментом. Положение пиков V_{gN} действительно пропорционально N^2 . Более того, тангенс угла наклона прямой линии $V_{gN}(N^2)$ на рис. 5 должен быть обратно пропорционален D^2 в предположении неизменности параметра a для образцов разного диаметра. Это также согласуется с экспериментом в пределах ошибки. Действительно, для двух образцов с диаметрами нанотверстий 10 и 2 нм наклон прямых $V_{gN}(N^2)$ отличается в 20 раз, тогда как отношение квадратов диаметров составляет величину $25 \pm 30\%$.

По наклону зависимости $V_{gN}(N^2)$ из сравнения с выражением (3) можно найти параметр a . Он оказался равным $|a| \approx 0.07$ с точностью 30%, определяемой точностью измерения диаметра D . Эта величина количественно согласуется со значением, полученным из магнитосцинтилляций сопротивления на наноперфорированных образцах тонкого графита [14]. Из того факта, что серия пиков наблюдается на дырочной части кривой $R(V_g)$, следует, что параметр a отрицателен. Следовательно, краевые ДФ, по всей видимости, являются дырками.

Для образцов с диаметром отверстий 10 нм энергия первого уровня E_1 и расстояние между уровнями составляют 17.5 мВ. Пики размываются с ростом температуры и исчезают при температуре около

60 К, соответствующей условию $E_1 \sim 3kT$. Пики также размываются при низких температурах с ростом измерительного тока. Это наблюдается, когда латеральное напряжение на образце при больших токах сравнивается с E_1/e .

5. Выводы. Таким образом, на зависимости сопротивления перфорированного графена от напряжения на затворе при низких температурах обнаружена серия регулярных пиков, несимметрично расположенных по отношению к точке Дирака. Положение N -го пика V_{gN} , отсчитанное от напряжения, соответствующего дираковской точке, пропорционально N^2 . Извлеченная из наклона этой прямой скорость краевых носителей на порядок меньше скорости объемных ДФ. Эффект связывается с квантованием орбитального движения краевых ДФ вокруг нанотверстия. В результате на каждом из них образуется эквидистантная лестница квазидискретных уровней краевых ДФ. При развертке напряжения на затворе уровень Ферми последовательно пересекает уровни этой лестницы, что и приводит к пикам сопротивления. Из сравнения с теорией краевых состояний в графене [5] извлечено значение единственного феноменологического параметра теории ($a \approx -0.07$).

Работа поддерживалась грантами РФФИ # 11-02-01379-а, 11-02-01290-а, 11-02-121687-оф-м-2011, грантом Минобрнауки (соглашение # 8033), программы РАН и Европейской комиссией 7-й рамочной программы “Transnational Access” (контакт # 228043-Euromagnet II-Integrated Activities).

1. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov et al., *Science* **306**, 666 (2004).
2. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov et al., *Nature* **438**, 197 (2005).
3. K. Nakada, M. Fujita, and M. S. Dresselhaus, *Phys. Rev. B* **54**, 17954 (1996).
4. A. R. Akhmerov and C. W. J. Beenakker, *Phys. Rev. B* **77**, 085423 (2008).
5. V. A. Volkov and I. V. Zagorodnev, *Low Temp. Phys.* **35**, 2 (2009).
6. Ю. И. Латышев, А. Ю. Латышев, А. П. Орлов и др., *Письма в ЖЭТФ* **90**, 526 (2009).
7. Yu. I. Latyshev, A. P. Orlov, E. G. Shustin et al., *Journ. of Phys.: Conf. Series* **248**, 012001 (2010).
8. V. A. Skuratov, S. J. Zinkle, A. E. Efimov et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **203**, 136 (2003).
9. В. А. Волков, Т. Н. Пинскер, *ФТТ* **23**, 1756 (1981).
10. Б. А. Волков, Б. Г. Идлис, М. Ш. Усманов, *УФН* **165**, 799 (1995).
11. G. Tkachov and M. Hentschel, *European Physical Journal B* **69**, 499 (2009).
12. J. A. M. van Ostaay, A. R. Akhmerov, C. W. J. Beenakker, and M. Wimmer, *Phys. Rev. B* **84**, 195434 (2011).
13. Б. А. Волков, О. А. Панкратов, *Письма в ЖЭТФ* **42**, 145 (1985).
14. Y. Latyshev, A. Orlov, V. Volkov, and P. Monceau, *Quantum interference effect in nano-perforated graphene and thin graphite. Book of abstracts of the International Conference of High Magnetic Fields in Semiconductor Physics (HMF-20)*, July 22–27, 2012, Chamonix Mont-Blanc, France.