

Спектры инфракрасного отражения и нарушенного полного внутреннего отражения топологического изолятора Bi_2Se_3

Н. Н. Новикова⁺¹⁾, В. А. Яковлев⁺, И. В. Кучеренко*

⁺Институт спектроскопии РАН, 142190 Троицк, Россия

*Физический институт РАН им. Лебедева, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 июля 2015 г.

Измерены спектры инфракрасного отражения и нарушенного полного внутреннего отражения пленки топологического изолятора $(111)\text{Si}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$. Методом дисперсионного анализа спектров отражения получены параметры плазмонов и фононов в приповерхностных слоях у границы раздела Si – пленка. Обнаружено, что концентрация носителей у границы раздела значительно превышает концентрацию в объеме пленки. Определены дисперсионные зависимости поверхностных поляритонов и волноводных мод.

DOI: 10.7868/S0370274X15160079

Соединение Bi_2Se_3 является узкозонным полупроводником ($E_g = 0.3$ эВ), который кристаллизуется в ромбоэдрической структуре, принадлежащей к пространственной группе D_{3d}^5 ($R3m$). Традиционно оно служит важным материалом для термоэлектрических устройств. Совсем недавно полупроводник Bi_2Se_3 вызвал повышенный интерес в связи с предсказанными свойствами 3D топологического изолятора (ТИ), нового квантового состояния [1]. Согласно теории его топологические поверхностные состояния могут быть описаны конусом Дирака в Γ -точке зоны Бриллюэна [2]. На сегодняшний день измерения ARPES выполнены как на поверхностях скола монокристаллов Bi_2Se_3 , так и на пленках, которые представляют большой интерес для спинтроники и для создания квантовых компьютеров [3, 4]. Было обнаружено [5], что рост пленки является самоорганизующимся процессом: ее толщина равна целому числу чередующихся пятикратных слоев Bi–Se (*quintuple*) вдоль оси *c*. Элементарная ячейка состоит из трех слоев *quintuple*, которые слабо связаны между собой силами Ван-дер-Ваальса.

В комбинационном рассеянии света (КРС) активны моды A_{1g}^1 , A_{1g}^2 и E_g^2 [6, 7]. Их частоты равны 69, 173.3 и 130 см^{-1} соответственно. Оптический фон, активный в инфракрасном (ИК) диапазоне, был обнаружен в спектрах отражения при частоте 65 см^{-1} [8]. Кроме того, в спектры отражения вносят вклад плазмоны. Концентрация свободных носителей (электронов) определяется числом вакансий Se,

возникающих в результате отклонения от стехиометрии в процессе роста [9].

Целью настоящей работы является исследование пленки Bi_2Se_3 , осажденной на подложку $(111)\text{Si}$, методами отражения света при нормальном падении и нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО) в диапазоне 30–2000 см^{-1} при 293 К. Особый интерес представляет изучение распределения концентрации носителей по толщине пленки.

Измерения спектров НПВО позволяют определить дисперсию поверхностных поляритонов (ПП) при прямом оптическом наблюдении. В этих измерениях использовались геометрия Отто [10], а также призмы из кремния (Si), алмаза (C) и бромистого таллия-йодистого таллия (KRS-5).

Исследованы инфракрасный спектр отражения и спектры НПВО пленки Bi_2Se_3 толщиной 3420 нм. Пленка была выращена методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке $(111)\text{Si}$ в Университете г. Вюрцбург (Германия) [11].

Спектр отражения получен с помощью ИК фурье-спектрометра IFS 66v/s фирмы “Bruker” при угле падения, близком к нормальному, в диапазоне от 50 до 2000 см^{-1} при спектральном разрешении 4 см^{-1} .

Параметры оптических фононов и плазмонов для пленки Bi_2Se_3 определялись из дисперсионного анализа спектра отражения. Экспериментальный спектр сравнивался с расчетом, использующим формулы Френеля для отражения от многослойной структуры. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости каждого слоя была представлена в

¹⁾e-mail: novik@isan.troisk.ru

Таблица 1. Параметры пленки Bi_2Se_3

Материал	Слой	d , нм	ϵ_∞	ν_{TO} , см^{-1}	S , см^{-1}	γ , см^{-1}	ν_p , см^{-1}	ν_τ , см^{-1}
Bi_2Se_3	Объем пленки	2725	29.3	67.9	535	9.1	264	55
Bi_2Se_3	Переходный слой	460	44	65.1	599	8.4	659	109
Si	Приповерхностный слой кремния	442	13.07				368	159
Si	объем кремния		12.15				261	1298

виде суммы высокочастотной диэлектрической постоянной ϵ_∞ , лорентцевского осциллятора и вклада свободных носителей (формула Друде):

$$\epsilon(\nu) = \epsilon_\infty [1 - \nu_p^2 / (\nu^2 + i\nu\nu_\tau) + S^2 / (\nu_{\text{TO}}^2 - \nu^2 - i\nu\gamma)]. \quad (1)$$

Здесь ν_{TO} – частота, S – сила осциллятора, γ – затухание поперечной (ТО) моды, ν_p – плазменная частота, ν_τ – частота соударений свободных носителей. Указанные параметры подбирались таким образом, чтобы получалось наилучшее согласие с экспериментом. Для этого использовалась программа SCOUT [12, 13]. На рис. 1 и 2 представлены спектр

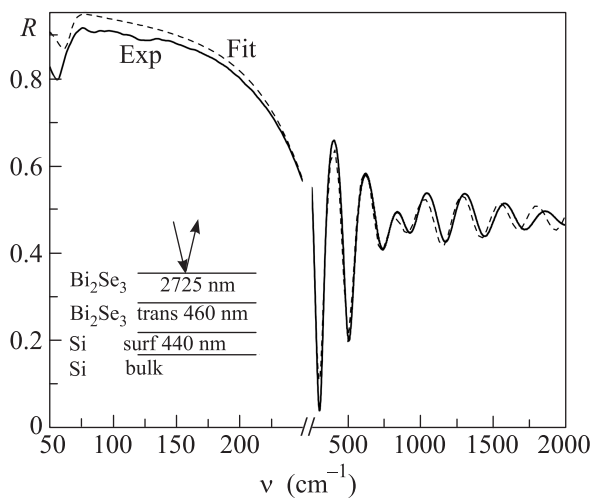


Рис. 1. Спектр внешнего отражения пленки $(111)\text{Si}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$ толщиной 3420 нм (эксперимент и подгонка). На вставке показаны геометрия эксперимента и смоделированные переходные слои

ИК-отражения (эксперимент и подгонка) и функция потерь $\text{Im}(-1/\epsilon)$ пленки Bi_2Se_3 в диапазоне частот от 50 до 2000 см^{-1} . Максимумы функции потерь соответствуют частотам плазмонов переходного слоя пленки (662 см^{-1}) и поверхностного слоя кремниевой подложки (368 см^{-1}). В объемном слое пленки наблюдаются связанные плазмон-ЛО фононные моды ($\omega_{\text{LO}} = 130 \text{ см}^{-1}$) [14]. Так, максимумы при частотах 59 и 264 см^{-1} мы связываем с нижней и верхней ветвями этой моды.

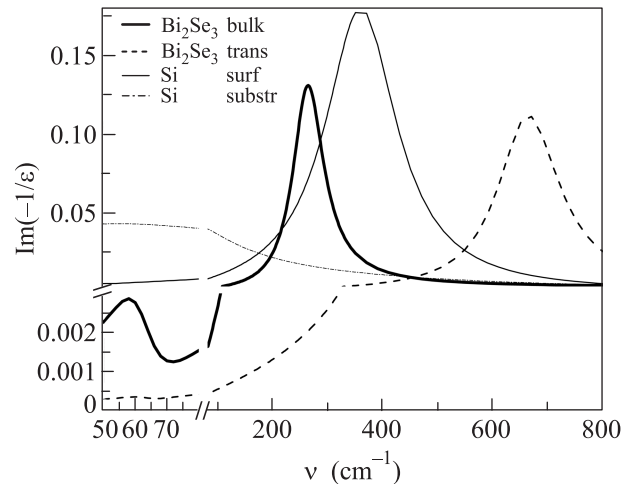


Рис. 2. Функция потерь пленки $(111)\text{Si}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$

Для улучшения подгонки на границе раздела $\text{Si}-\text{Bi}_2\text{Se}_3$ введены два переходных слоя: приповерхностный слой кремния и слой на границе поверхностного слоя кремния и пленки. Результаты расчета представлены в таблице 1. Плазменные частоты пленки Bi_2Se_3 в переходном слое и в объеме равны 659 и 240 см^{-1} соответственно. Таким образом, распределение концентрации носителей n по толщине пленки не является однородным. В слое у границы раздела n заметно больше, чем в объеме пленки. Так, в переходном слое кремний-пленка $n = 3.8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, а в объеме $n = 3.4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Подвижности носителей примерно равны 300 и 1000 $\text{см}^2/\text{Вс}$ соответственно. Из измерений эффекта Холла в данной пленке следует, что концентрация носителей $\approx 10^{19} \text{ см}^{-3}$, подвижность 500 $\text{см}^2/\text{Вс}$. В условиях градиента концентрации эффект Холла дает усредненные значения. Мы объясняем различие в концентрациях носителей в переходном слое и в объеме пленки следующим образом. Исследования морфологии поверхности пленок Bi_2Se_3 , осажденных на подложку $(111)\text{InP}$ [15], показывают, что на первой стадии роста при толщине пленки ≈ 20 нм поверхность имеет вид мелкозернистой мозаики. При увеличении толщины пленки мозаичная структура трансформируется в домен-

ную. Размер доменов в пленках толщиной 200 нм и более составляет 10–20 нм. Известно, что источником электронов в полупроводниках Bi_2Se_3 являются нестехиометрические вакансии Se, которые концентрируются на границах зерен. При уменьшении протяженности границ с увеличением размеров доменов уменьшается число вакансий Se и, следовательно, концентрация электронов. Таким образом, должен возникнуть градиент концентрации носителей от границы раздела подложка–пленка до поверхности пленки, что и проявляется в оптических измерениях коэффициента отражения.

Поверхностные поляритоны (ПП), т.е. электромагнитные возбуждения ближнего поля, являются нерадиационными возбуждениями, обладающими волновым вектором, большим волнового вектора света в вакууме. Поэтому в обычных условиях они не взаимодействуют с внешним электромагнитным полем. Призма НПВО, установленная с некоторым зазором над образцом, позволяет согласовать волновые вектора ПП и возбуждающего их света и тем самым обеспечить резонансное поглощение света поверхностным поляритоном. Реально происходит возмущение поля ПП призмой. Электромагнитное поле ПП, являющееся в отсутствие призмы ближним полем, преобразуется призмой в дальнее поле. Последнее и регистрируется стандартным для ИК-спектроскопии способом [16–18].

Проведены измерения спектров НПВО на приставке НПВО-1 (ЛОМО) при углах падения (больших критического угла границы призма–зазор) от 20 до 60 градусов в *p*-поляризованном свете. Следует отметить, что оптимальная толщина зазора между призмой и поверхностью образца должна быть порядка длины волны ПП. Спектры НПВО, как известно, очень чувствительны к толщине зазора между образцом и призмой, поскольку призма возмущает поле ПП. Для корректного измерения частоты и полуширины полосы поглощения ПП при разных углах падения света в призме (разных волновых векторах ПП) необходимо подобрать такую величину зазора, чтобы интенсивность измеряемой полосы находилась на уровне нескольких процентов. В этом случае возмущение ПП призмой невелико.

В области от 30 до 550 см^{-1} использовались алмазная (C) и кремниевая (Si) призмы. Призма из KRS-5 применялась для измерений спектров НПВО в области от 450 до 2000 см^{-1} .

На рис. 3 представлены спектры НПВО (ATR) при различных углах падения света внутри призмы. В спектрах отчетливо видны четыре минимума на частотах 55, 120, 200 и 270 см^{-1} . Три из них соот-

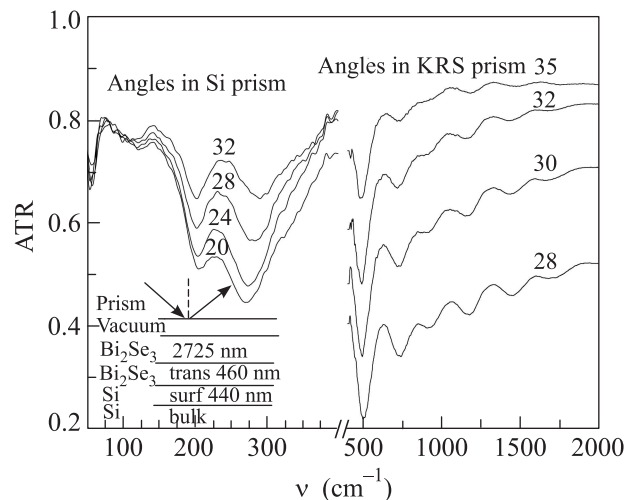


Рис. 3. Спектры НПВО пленки Bi_2Se_3 для кремниевой и KRS-5 призм при разных углах падения. На вставке представлена геометрия эксперимента

ветствуют поверхностным поляритонам смешанного плазмон-фононного типа. Пик при 270 см^{-1} обусловлен волноводной модой, что подтверждается расчетом распределения электромагнитного поля поперек образца. Зависимости частот ПП и волноводных мод от приведенного волнового вектора (дисперсия) показаны на рис. 4.

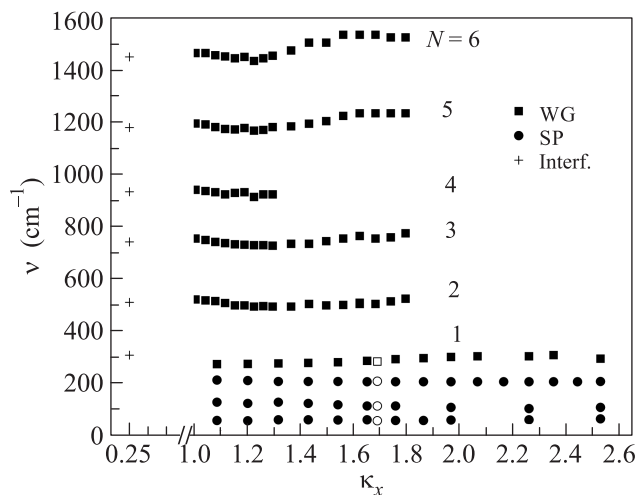


Рис. 4. Кривые дисперсии поверхностных поляритонов (SP) и волноводных мод (WG) пленки Bi_2Se_3 , полученные из спектров НПВО с использованием трех различных призм с зазором между призмой и образцом. Левая колонка крестиков показывает частоты интерференционных мод, полученных из спектров внешнего отражения

При использовании призмы KRS-5 выше 450 см^{-1} мы видим волноводные моды, которые хорошо со-

гласуются с частотами интерференционных минимумов в спектрах внешнего отражения (крестики слева на рис. 4), что также подтверждается зависимостью частот волноводных мод от порядка интерференции, представленной на рис. 5.

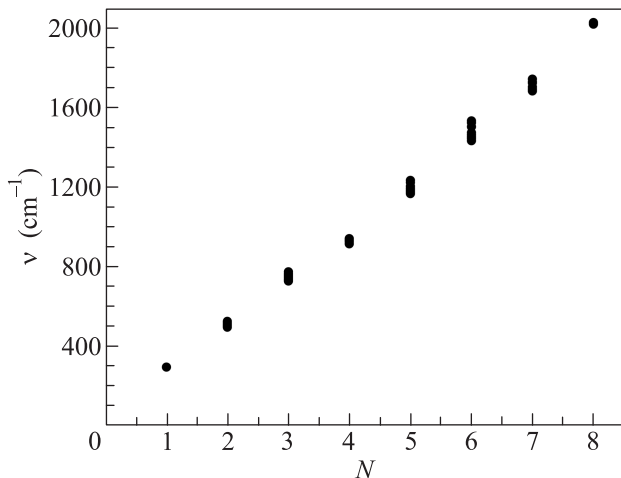


Рис. 5. Зависимость частоты волноводной моды от порядка интерференции N

Таким образом, в настоящей работе впервые экспериментально наблюдались поверхностные поляритоны и волноводные моды в пленке топологического изолятора Bi_2Se_3 . Оптическим методом продемонстрирована неоднородность распределения концентрации носителей в пленке Bi_2Se_3 . Из спектров НПВО определена дисперсия поверхностных поляритонов и волноводных мод.

1. L. Fu and C.L. Kane, Phys. Rev. B **76**, 045302 (2007).
2. H. J. Zang, C. X. Liu, X. L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S. C. Zhang, Nat. Phys. **5**, 438 (2009).
3. Y. Xia, D. Qian, D. Hsien, L. Wray, A. Pal, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, Nat. Phys. **5**, 398 (2009).

4. L. Hi, F. Xiu, Y. Wang, A.V. Fedorov, G. Huang, X. Kou, M. Lang, W.P. Beyermann, J. Zou, and K.L. Wang, J. Appl. Phys. **109**, 103702 (2011).
5. G. Zhang, H. Qin, J. Teng, J. Guo, Q. Guo, X. Dai, Zh. Fang, and K. Wu, Appl. Phys. Lett. **95**, 053114 (2009).
6. W. Richter, H. Kohler, and C.R. Becker, Phys. Stat. Sol. (b) **84**, 619 (1977).
7. J. Qi, X. Chen, W. Yu, P. Cadden-Zimansky, D. Smirnov, N.H. Tolk, I. Miotkowski, H. Cao, Y.P. Chen, Y. Wu, S. Qiao, and Z. Jiang, Appl. Phys. Lett. **97**, 182102 (2010).
8. S.V. Dordevic, M.S. Wolf, N. Stojilovic, H. Lei, and C. Petrovic, J. Phys.: Cond. Mat. **25**, 075501 (2013).
9. X.-L. Qi and Sh.-Ch. Zhang, Rev. Mod. Phys. **83**, 1058 (2011).
10. М.Н. Либенсон, Поверхностные электромагнитные волны оптического диапазона. Соросовский образовательный журнал **10**, 92 (1996).
11. H. Mass, S. Schreyeck, S. Schatz, S. Fiedler, C. Seibel, P. Lutz, G. Karczewski, H. Bentmann, C. Gould, K. Brunner, L.W. Molenkamp, and F. Reinert, J. of Appl. Phys. **116**, 193708 (2014).
12. W. Theiss, *The SCOUT through CAOS, Manual of the Windows Application SCOUT*.
13. W. Theiss, Surf. Sci. Rep. **29**, 91 (1997).
14. П. Ю. М. Кардона, *Основы физики полупроводников*, Физматлит, М. (2002), гл. 8, с. 299.
15. S. Schreyeck, N.V. Tarakina, G. Karchewski, C. Schumacher, T. Borzenko, C. Brne, H. Buhmann, C. Gould, K. Brunner, and L.W. Molenkamp, Appl. Phys. Lett. **102**, 041914 (2013).
16. *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces*, ed. by V. M. Agranovich and D. L. Mills, North-Holland Publ., Amsterdam (1982).
17. Е. А. Виноградов, И. А. Дорофеев, *Термостимулированные электромагнитные поля твердых тел*, Физматлит, М. (2010), 484 с.
18. J. D. Swalen, J. G. Gordon, M. R. Philpott, A. Brillante, I. Pockrand, and R. Santo, Am. J. Phys. **48**, 669 (1980).