

Наблюдение спинового и долинного расщепления уровней Ландау при магнитотуннелировании в графен/нитрид бора/графен структурах

Ю. Н. Ханин⁺, Е. Е. Вдовин⁺¹⁾, И. А. Ларкин⁺, О. Макаровский^{#2)}, Ю. А. Склюева^{*2)}, А. Мищенко^{*2)},
Ю. Б. Ванг^{*2)}, А. Козиков^{*2)}, Р. В. Горбачев^{*2)}, К. С. Новоселов^{*2)}

⁺Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^{*}School of Physics and Astronomy, University of Manchester, M13 9PL Manchester, UK

[#]School of Physics and Astronomy, University of Nottingham, NG7 2RD Nottingham, UK

Поступила в редакцию 25 декабря 2017 г.

Исследовано резонансное магнитотуннелирование в гетероструктурах с однослойными листами графена, разделенными барьером из гексагонального нитрида бора, и двумя затворами в сильном магнитном поле, что позволило наблюдать переходы между расщепленными по спине и долине уровнями Ландау с различными индексами, принадлежащими разным графеновым слоям. Неожиданный рост межслоевой туннельной проводимости для переходов между уровнями Ландау в сильных магнитных полях при повышении температуры оказался необъяснимым в рамках известных теорий.

DOI: 10.7868/S0370274X18040070

Со времени открытия графена большинство усилий было направлено на исследование магнито-транспорта в графене и вандерваальсовских структурах на его основе, исследования же туннелирования между графеновыми слоями в магнитном поле ограничиваются всего несколькими работами. В работе [1] исследовалось интегральное туннелирование между графеновыми слоями в структурах графен/нитрид бора/графен в широком окне туннельной проводимости в магнитном поле, перпендикулярном слоям. Магнитное поле приводило в такой ситуации к квантованию движения электронов в плоскости слоев и формированию неэквидистантных дискретных спектров уровней Ландау (УЛ) вследствие принципиального отличия свойств безмассовых дираковских фермионов в графене от носителей в традиционных материалах. Экспериментальная ситуация осложнялась в данном случае использованием широкого окна туннельной проводимости, когда в туннелировании участвуют одновременно по несколько совпадающих по энергии пар УЛ в каждом из графеновых слоев. В работе [2] была выполнена селективная спектроскопия переходов между индивидуальными уровнями Ландау, принадлежащими разным графеновым слоям, когда туннелирование было

ограничено узким окном проводимости. При этом в [1, 2] измерения ограничивались интервалом малых магнитных полей.

Данная же работа представляет результаты исследования селективной спектроскопии переходов между уровнями Ландау в структурах графен/нитрид бора/графен с дизайном, подобным [1, 2] в сильных магнитных полях, когда уже должен очевидно проявляться эффект снятия вырождения УЛ. Исследования при этом проводились в ситуации равенства концентраций носителей в двух графеновых слоях, что принципиально упрощает интерпретацию экспериментальных данных [3, 4]. Полученные трехмерные карты равновесной туннельной проводимости продемонстрировали наличие особенностей, которые явно отражают расщепления пар уровней Ландау, между которыми происходит туннелирование. Мы полагаем, что это обусловлено снятием спинового и долинного вырождения состояний уровней Ландау в сильном магнитном поле, аналогично экспериментам [5–8].

Исследовавшиеся образцы представляли собой вертикальные вандерваальсовские гетероструктуры, получаемые путем механического расслоения и переноса слоев графена и hBN, схематически изображенные на рис. 1а. На подложку из высоколегированного Si с верхним слоем SiO₂ толщиной 300 нм последовательно были нанесены следующие слои: hBN толщиной 30 нм (BN3), монослой графена (Gr2), hBN тол-

¹⁾e-mail: vdov62@yandex.ru

²⁾O. Makarovskiy, Yu. A. Sklyueva, A. Mishchenko, Yi Bo Wang, A. Kozikov, R. V. Gorbachev, K.S. Novoselov.

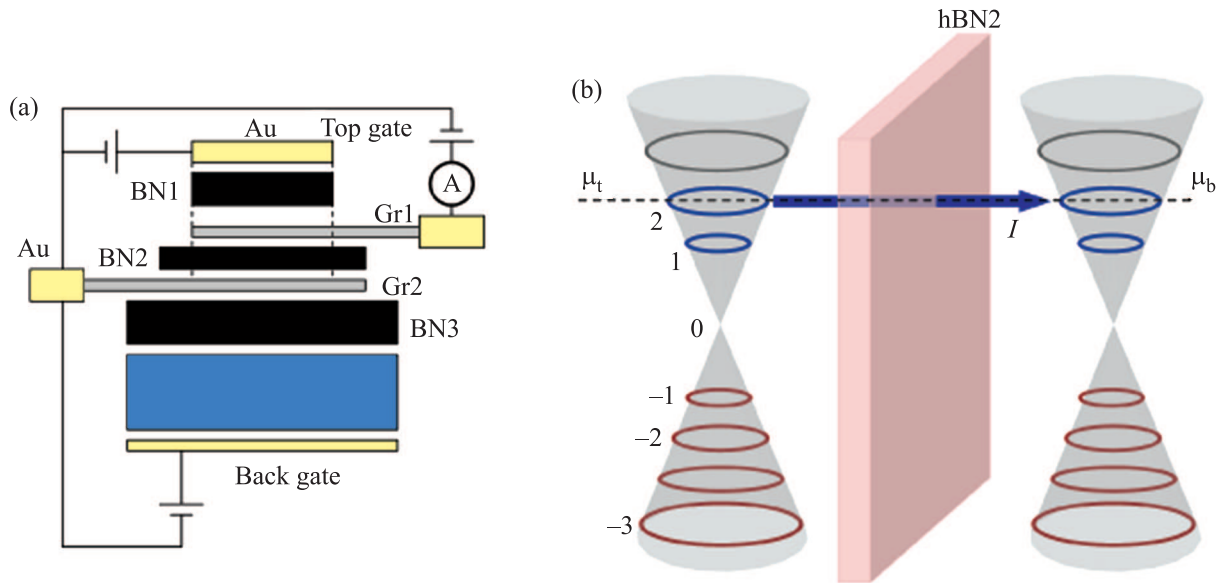


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематическое изображение измерительной цепи и экспериментальной гетероструктуры. Gr1 и Gr2 – верхний и нижний монослои графена, BN1, BN2 и BN3 – верхний (туннельный) и нижний (подзатворный) слои нитрида бора соответственно, SiO₂ – основной диэлектрический слой нижнего затвора. (б) – Схема равновесного туннелирования между монослоями графена в магнитном поле. Цифрами обозначены уровни Ландау с соответствующими номерами, жирными овалами показаны заполненные, тонкими – пустые уровни, μ_t и μ_b – химические потенциалы в верхнем и нижнем слоях

щиной 4 монослоя (BN2), монослой графена (Gr1) и hBN толщиной 15 нм (BN1). Контакты к слоям графена и верхняя затворная металлизация были изготовлены с помощью электронной литографии и напыления AuGe/Ni/Au. Проводящие графеновые слои Gr1 и Gr2 были изготовлены в виде крестообразной структуры, разделенной в месте пересечения туннельным барьером BN2, что позволяло измерять туннельную проводимость четырехзондовым методом. Рассогласование между кристаллографическими направлениями слоев Gr1 и Gr2 составляло примерно 2 град, аналогично [1, 2], а площадь их пересечения – 25 мкм². Приложение магнитного поля, перпендикулярного плоскости графеновых слоев, приводило к квантованию движения электронов в плоскости слоев и формированию неэквидистантных дискретных уровней Ландау [1], графически представляющих собой окружности на поверхности дираковских конусов (см. рис. 1b), энергетический спектр которых описывается выражением

$$E_N = \pm v_F (2e\hbar|N| \cdot B)^{1/2},$$

где $N = 0, \pm 1, \pm 2$, а v_F – скорость Ферми.

Приложение напряжений к верхнему и нижнему затворам (V_{Gt} и V_{Gb}) приводило к независимым изменениям химических потенциалов μ_t и μ_b и последовательному заполнению/опустошению УЛ

в слоях. Смещающее напряжение V_{bias} изменяло взаимное расположение дираковских конусов по энергии и в случае совпадения заполненного и пустого УЛ открывался возможный канал для резонансно-туннельного тока, изображенный для примера на рис. 1b жирной стрелкой и обозначенный буквой I . Строго говоря, условию резонанса между УЛ с сохранением энергии и импульса соответствует пересечение заполненного и пустого УЛ в k -пространстве, что нельзя отразить на представленной упрощенной схеме туннелирования. Детально туннелирование между УЛ в двух слоях графена описано в работе [1]. Изменение напряжения V_{bias} и контроль за V_{Gt} и V_{Gb} давали нам в результате возможность наблюдать последовательность особенностей на ВАХ, соответствующих туннельным резонансам между единичными УЛ в верхнем и нижнем слоях. Поддерживая же минимальное значение V_{bias} и изменяя V_{Gt} и V_{Gb} мы смогли построить трехмерные карты равновесной туннельной проводимости данных гетероструктур. Карты проводимости были построены с помощью модуляционной методики с амплитудой модулирующего напряжения 0.1 мВ на частоте 27 Гц. Измерения проводились при температурах 2–77 К.

На рис. 2a, b представлены экспериментальные карты туннельной проводимости в магнитном поле, перпендикулярном плоскости графеновых слоев,

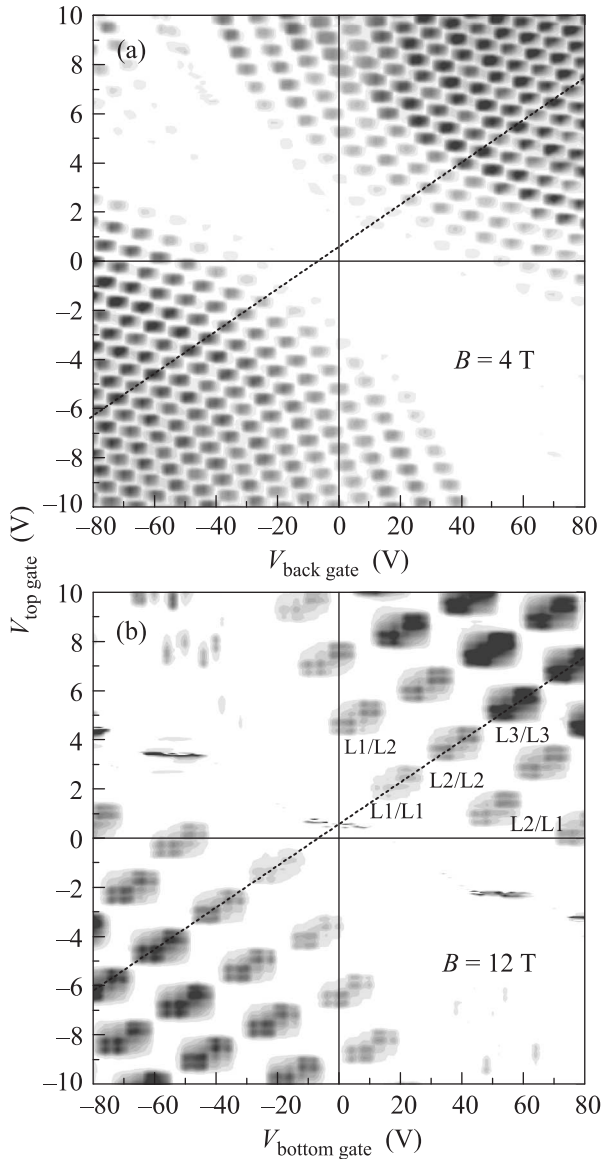


Рис. 2. Трехмерные карты равновесной туннельной проводимости при $B = 4$ Тл (a) и $B = 12$ Тл (b) при температуре $T = 2$ К. Пунктирным линиям соответствует условие равенства концентраций, $n_{\text{top}} = n_{\text{bottom}}$

при $B = 4$ Тл (a) и $B = 12$ Тл (b) при температуре $T = 2$ К. Измерения $dI/dV_{\text{bias}} - V_{\text{top gate}}$ характеристик в широких интервалах $V_{\text{top gate}}$ и $V_{\text{back gate}}$ позволило нам построить такие трехмерные карты равновесной туннельной проводимости, визуализующие весь доступный нам спектр туннельных переходов. Шаг $V_{\text{back gate}}$ при измерениях карты составлял 1 В, что соответствовало 161 кривой, а актуальные интервалы затворных напряжений ограничивались возможностью пробоя структуры. Каждая темная область на карте соответствует высокой туннельной проводимости и отражает конкретный переход

между УЛ с определенными номерами N_t и N_b в верхнем и нижнем слоях. Начало координат карты вблизи $V_{\text{back gate}} = 0$ и $V_{\text{top gate}} = 0$ отвечает условию совпадения μ_b , μ_t и дираковских точек в обоих слоях, а каждый резонанс в режиме узкого окна порождается переходом между конкретной парой совпадающих по энергии УЛ в разных слоях. Нижняя левая часть карты при отрицательных напряжениях $V_{\text{back gate}}$ и $V_{\text{top gate}}$ относится к ситуации, когда в нижнем и верхнем слоях заполнены только дырочные УЛ ($N_t < 0$ и $N_b < 0$) и туннельные переходы происходят исключительно между ними, верхняя же правая часть соответствует условию $N_t > 0$ и $N_b > 0$, когда туннелирование осуществляется между электронными УЛ. Левая верхняя и правая нижняя области относятся к смешанным ситуациям туннелирования между дырочными и электронными УЛ в слоях. Амплитуды таких электронно-дырочных переходов, как видно, существенно меньше электрон-электронных и дырочно-дырочных в согласии с теорией [1]. Полученная экспериментальная карта туннельной проводимости и метод идентификации ее особенностей аналогичны описанным в нашей предыдущей работе [2] в слабых магнитных полях до $B = 4$ Тл. Радикальное же отличие состоит в том, что теперь в сильном магнитном поле, $B = 12$ Тл, 3-мерная карта равновесной туннельной проводимости представляет собой ряды состоящие из групп однотипных особенностей с одинаковым типом симметрии, каждая из которых отражает расщепления пар уровней Ландау, между которыми происходит туннелирование. Иными словами, визуально каждый “холм” карты при увеличении магнитного поля разбивается на четыре симметрично расположенных холма меньшего размера. Более детально области карты вокруг $V_{\text{back gate}} = 57$ В и $V_{\text{top gate}} = 5.4$ В соответствующая переходам между УЛ с $N_b = 9$ и $N_t = 9$ в поле $B = 4$ Тл и $N_b = 3$, $N_t = 3$ в поле $B = 12$ Тл представлены на рис. 3а, б. Эти области были измерены с более высоким разрешением (шаг $V_{\text{back gate}}$ составлял 0.5 В). При этом в центрах этих областей концентрации носителей одинаковы в отсутствии магнитного поля.

Теперь, в согласии с [2], мы можем провести идентификацию особенностей карты проводимости: условия равенства концентраций носителей в 2-х графеновых слоях будут соответствовать линии на карте, проходящей через центры особенностей с одинаковыми индексами Ландау. Изучение туннелирования в ситуации равенства концентраций принципиально упрощает интерпретацию экспериментальных данных, поскольку туннельные переходы при этом

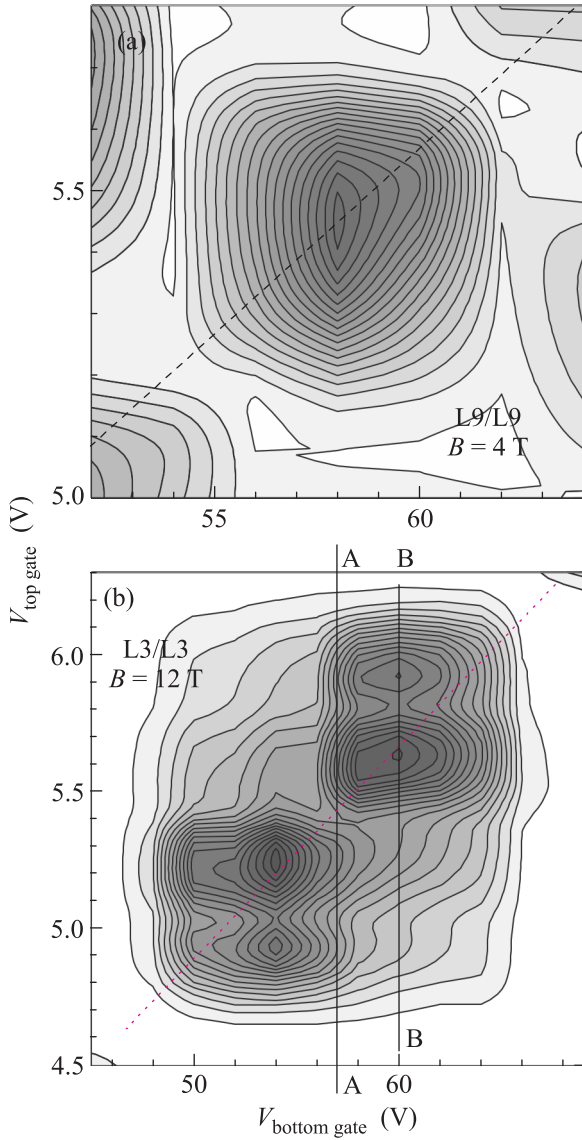


Рис. 3. Области карты равновесной туннельной проводимости вокруг $V_{\text{back gate}} = 57 \text{ В}$ и $V_{\text{top gate}} = 5.4 \text{ В}$, соответствующие переходам между УЛ с $N_{\text{B}} = 9$ и $N_{\text{T}} = 9$ в поле $B = 4 \text{ Тл}$, и $N_{\text{B}} = 3$, $N_{\text{T}} = 3$ в поле $B = 12 \text{ Тл}$ при температуре $T = 2 \text{ К}$. Пунктирные линии отображают условие равенства концентраций, $n_{\text{top}} = n_{\text{bottom}}$. Сечениям карты по линиям А–А и В–В на рис. 3b соответствуют графики на рис. 5а

происходят с выполнением законов сохранения как энергии, так и импульса [3].

Как было показано ранее [1], рассогласование ориентации графена эквивалентно параллельному слоям магнитному полю. При слабом туннелировании между графеновыми слоями, когда время туннелирования много больше времени рассеяния в слоях, ситуация с двумя слоями эквивалентна бесконеч-

ному слоистому материалу, теория транспорта для которого была сделана в [9–12].

В слабых магнитных полях каждая особенность проводимости G представляла собой одиночный пик куполообразной формы (рис. 4а) в соответствие с теорией [11–14] $G \propto [\Gamma^2 - (E - E_N)^2]$, где Γ – полуширина пика, обусловленная рассеянием на примесях в каждом слое.

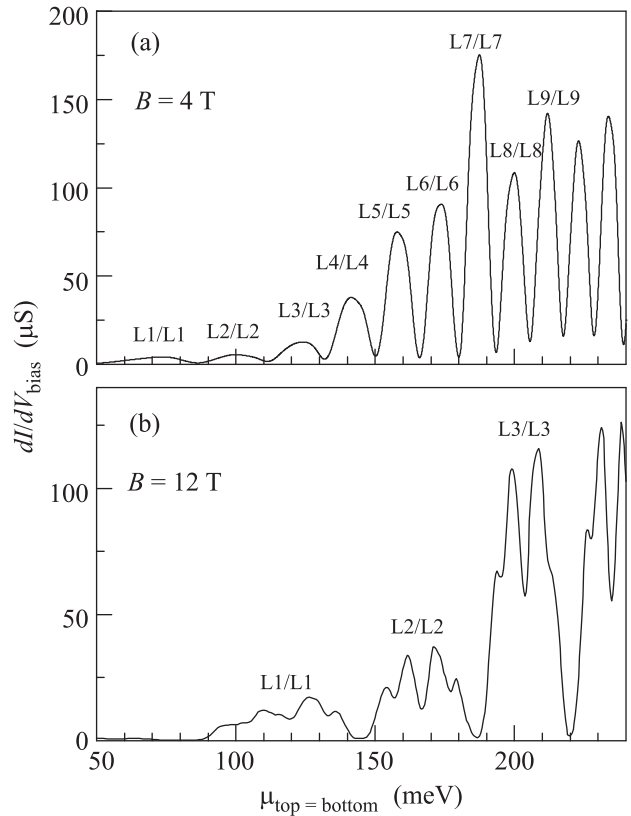


Рис. 4. Сечения карты равновесной проводимости при $B = 4 \text{ Тл}$ (а) и $B = 12 \text{ Тл}$ по линии равенства концентраций, $n_{\text{top}} = n_{\text{bottom}}$ с рис. 2

В сильных магнитных полях, как видно из сечения карты равновесной проводимости при $B = 12 \text{ Тл}$ по линии равенства концентраций, $n_{\text{top}} = n_{\text{bottom}}$ (пунктирные линии на рис. 2 и 3), каждая особенность, соответствующая переходу между уровнями с одинаковыми индексами, расщеплена на 4 пика, в отличие от слабых магнитных полей, когда каждая особенность представляла собой одиночный максимум проводимости (см. рис. 4). Величина расщепления для всех измеренных особенностей для $B = 12 \text{ Тл}$ лежит в интервале 7–9 мэВ. Мы полагаем, что наблюдаемое расщепление обусловлено снятием вырождения состояний уровней Ландау в сильном магнитном поле, аналогично транспортным экспери-

ментам [5–7]. Рост амплитуды резонансных особенностей с синхронным увеличением химических потенциалов μ в слоях обусловлен как естественным ростом прозрачности туннельного барьера, так и возможным влиянием невыполнения закона сохранения импульса для переходов между нижними уровнями Ландау, поскольку, вследствие угловой разориентации графеновых слоев, дираковские конуса разнесены в k -пространстве и начинают пересекаться только при определенной энергии. По нашим оценкам эта энергия составляет примерно 150–200 мэВ и соответствует переходам между индексами 7–7 в $B = 4$ Тл и 3–3 в $B = 12$ Тл. Симметрия особенностей на карте в 12 Тл (см. рис. 2b и рис. 3b) в значительной степени определяется зависимостью концентраций носителей в верхнем и нижнем графеновых слоях от каждого из затворных напряжений.

В теоретических работах [9–12, 14] температура предполагалась малой по сравнению с энергией Ферми и считалось, что температурная зависимость проводимости обусловлена температурной зависимостью полуширины пика, Γ . При условиях, соответствующих нашему эксперименту, проводимость [15]:

$$G \propto \frac{1}{\Gamma} \sum_{l,\sigma} \cos^2 \left(\mu - \frac{\pi}{2} + \frac{\pi l}{4} \right) e^{-2(E - E_n^{l,\sigma})^2 \Gamma^{-2}}, \quad (1)$$

где параметр $\mu = l_B^2 k_F K_0$, l_B – магнитная длина, K_0 – импульс (волновой вектор) рассогласования в разных слоях, k_F – Ферми импульс (волновой вектор) и $E_n^{l,\sigma}$ – энергия уровня Ландау с хиральностью $l = \pm 1$ и спином $\sigma = \pm 1/2$. Как следует из формулы (1), рассогласование импульсов очень сильно влияет на проводимость и поэтому параметр $K_0 = 5 \cdot 10^8 \text{ м}^{-1}$ следует определить более точно. С другой стороны, вариация ферми-вектора велика в интервале изменений затворных напряжений в эксперименте и учет этого также необходим при интерпретации.

Формула (1) хорошо работает в слабом магнитном поле до $B \sim 6$ Тл, в более сильных магнитных полях система переходит в режим квантового Холла и применимость данной формулы существенно ограничена, так как туннельная проводимость будет определяться переходами между как локализованными, так и делокализованными состояниями в параллельных слоях, и рост туннельной проводимости с увеличением температуры наиболее вероятно определяется понижением порога подвижности.

Действительно, при больших магнитных полях в эксперименте наблюдался рост в областях максимумов туннельной проводимости с температурой (рис. 5). Если центральное сечение А–А карты про-

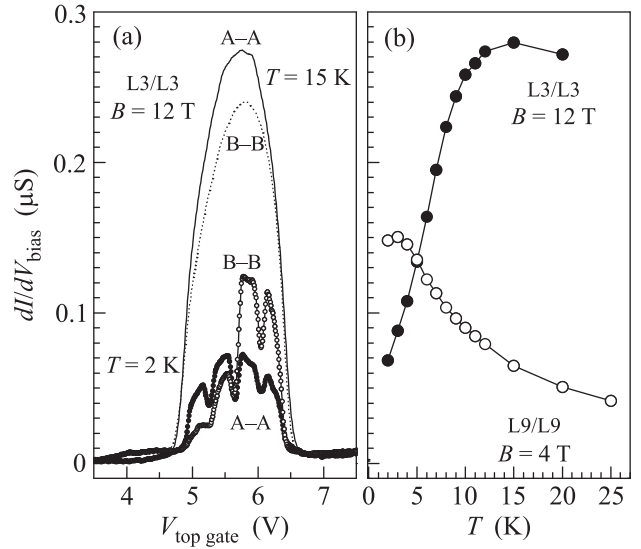


Рис. 5. (а) – Зависимости туннельной проводимости dI/dV_{bias} от $V_{\text{top gate}}$ перехода 3–3 в магнитном поле $B = 12$ Тл, соответствующие сечению А–А (черные кружки при $T = 2$ К и сплошная линия при $T = 15$ К) при $V_{\text{bottom gate}} = 57$ В и сечению В–В (пустые кружки при $T = 2$ К и пунктирная линия при $T = 15$ К) при $V_{\text{bottom gate}} = 60$ В. (б) – Зависимости туннельной проводимости dI/dV_{bias} от температуры при $V_{\text{back gate}} = 57$ В и $V_{\text{top gate}} = 5.4$ В при $B = 4$ Тл (пустые кружки) и $B = 12$ Тл (черные кружки)

водимости группы особенностей, порожденной переходом 3–3 в $B = 12$ Тл при $V_{\text{bottom gate}} = 57$ В (см. рис. 3b), демонстрирует интегральный рост во всем интервале перехода 3–3 с температурой, который еще может быть качественно понятен, как результат размытия локальных особенностей этой группы, то сечение В–В в стороне от центра при $V_{\text{bottom gate}} = 60$ В уже совершенно не может быть объяснен в рамках существующих теорий, и требует, по нашим представлениям, более аккуратного учета влияния температуры на туннелирование. Как следует из рис. 5, во всем интервале перехода 3–3 в сильном магнитном поле при понижении температуры наблюдается резкое подавление равновесной туннельной проводимости. Аналогичное температурное поведение демонстрируют и все остальные группы особенностей на карте в больших магнитных полях (здесь не приводится). При этом температурное поведение холмов карты в малых полях демонстрирует ожидаемое подавление с ростом температуры, как следствие уменьшения градиента фермиевской функции распределения и увеличения темпа рассеивания носителей при повышении температуры (см. рис. 5b).

Авторы выражают благодарность Л. Ивсу (L. Eaves), М.Т. Гриную (M.T. Greenaway) и П.Д. Григорьеву за полезные обсуждения и П.Л. Шабельниковой (ИПТМ РАН) за техническое содействие. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ (грант # 17-12-01393). И.А. Ларкин выражает отдельную благодарность РФФИ (грант # 18-02-00425).

1. M. T. Greenaway, E. E. Vdovin, A. Mishchenko, O. Makarovskiy, A. Patane, J. R. Wallbank, Y. Cao, A. V. Kretinin, M. J. Zhu, S. V. Morozov, V. I. Fal'ko, K. S. Novoselov, A. K. Geim, T. M. Fromhold, and L. Eaves, *Nature Phys.* **11**(12), 1057 (2015).
2. Ю. Н. Ханин, Е. Е. Вдовин, А. Мищенко, Ж. С. Ту, А. Козиков, Р. В. Горбачев, К. С. Новоселов, *Письма в ЖЭТФ* **104**(5), 342 (2016).
3. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3807 (1992).
4. N. Turner, J. T. Nicholls, E. H. Linfield, K. M. Brown, G. A. C. Jones, and D. A. Ritchie, *Phys. Rev. B* **54**, 10614 (1996).
5. Y. Zhang, Z. Jiang, J. P. Small, M. S. Purewal, Y. W. Tan, M. Fazlollahi, J. D. Chudow, J. A. Jaszczak, H. L. Stormer, and P. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136806 (2006).
6. C. R. Dean, A. F. Young, I. Meric, C. Lee, L. Wang, S. Sorgenfrei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, K. L. Shepard, and J. Hone, *Nature Nanotechnology* **5**, 722 (2010).
7. G. L. Yu, R. Jalilb, B. Belle, A. S. Mayorov, P. Blake, F. Schedin, S. V. Morozov, L. A. Ponomarenko, F. Chiappini, S. Wiedmann, U. Zeitlerd, M. I. Katsnelson, A. K. Geim, K. S. Novoselov, and D. C. Elias, *PNAS* **110**, 3282-6 (2013).
8. F. Amet, J. R. Williams, K. Watanabe, T. Taniguchi, and D. Goldhaber-Gordon, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 196601 (2014).
9. R. H. McKenzie and P. Moses, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4492 (1998).
10. R. H. McKenzie and P. Moses, *Phys. Rev. B* **60**, 7998 (1999).
11. P. D. Grigoriev, *Pis'ma v ZhETF* **94**, 48 (2011).
12. P. D. Grigoriev, *Phys. Rev. B* **83**, 245129 (2011).
13. Y. Zheng and T. Ando, *Phys. Rev. B* **65**, 245420 (2002).
14. P. D. Grigoriev and T. I. Mogilyuk, *Phys. Rev. B* **90**, 115138 (2014).
15. S. S. Pershoguba, D. S. L. Abergel, V. M. Yakovenko, and A. V. Balatsky, *Phys. Rev. B* **91**, 085418 (2015).