

УДК 537.9

## ЗАВИСИМОЕ ОТ ТОЛЩИНЫ МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ НАНОПЛАСТИН $Sb_2Te_3$ И ЭФФЕКТ СЛАБОЙ АНТИЛОКАЛИЗАЦИИ

С.Р. АРУТЮНЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

e-mail: sergeyhar56@gmail.com

(Поступила в редакцию 11 марта 2015 г.)

Исследовано магнитосопротивление нанопластин различной толщины соединения  $Sb_2Te_3$ , принадлежащего к классу топологических изоляторов. Измерения, проведенные в магнитных полях до 9 Т и при температурах 2К и 300К, показали, что магнитосопротивление сильно зависит от толщины нанопластин и их температуры. Такое поведение магнетосопротивления нанопластин приписывается поведению подвижности носителей заряда, которая в свою очередь зависит от толщины нанопластин и их температуры. На кривой магнитосопротивления наиболее тонкого образца с толщиной 25 нм выявлена аномалия слабой антилокализации, присущая топологическим изоляторам и являющаяся вкладом поверхностных состояний в электронный транспорт. Осцилляции Шубникова–де Гааза выявлены на кривой магнитосопротивления наиболее толстого образца с толщиной 450 нм, которые являются откликом объемных состояний на приложенное магнитное поле.

### 1. Введение

Соединение теллурида сурьмы ( $Sb_2Te_3$ ) известно как термоэлектрический полупроводник *p*-типа, а его модификации с висмутом (Bi) и селеном (Se) широко используются для термоэлектрической конверсии при температурах около 300К [1]. С недавних пор это соединение вызывает возрожденный интерес, так как было предсказано, а затем и подтверждено, что  $Sb_2Te_3$  является 3D топологическим изолятором [2,3]. Топологический изолятор представляет собой новое квантовое состояние материи, где запрещенная зона энергетических уровней объема сосуществует со спин-поляризованной дираковской зонной структурой металлических состояний поверхности без запрещенной зоны. Таким образом, материал, номинально являющийся изолятором в объеме, способен проводить по поверхности. Эти уникальные поверхностные состояния являются следствием сильного спин-орбитального взаимодействия, характерного для этих материалов [4]. Поверхностные состояния защищены симметрией обращения времени от рассеяния на дефектах, то есть электроны в этих состояниях могут двигаться

вдоль поверхности объемного материала почти без потери энергии. Существование этих поверхностных состояний со спин-поляризованной природой и управление ими рассматривается как идеальная база для спинтроники, квантовых вычислений и для других применений [5,6].

Поверхностные состояния для ряда топологических изоляторов, в том числе для  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$ , были исследованы и подтверждены экспериментально с помощью фотоэмиссионной спектроскопии углового разрешения [3]. Однако наблюдение эффектов, связанных с поверхностными состояниями, методами транспорта зарядов на образцах макроскопических размеров затруднено из-за неизбежного влияния на результаты объемной проводимости. Поэтому, для выявления вклада поверхностных состояний, необходимо исследовать ультратонкие образцы, в которых следует ожидать существенного увеличения вклада поверхностной проводимости по сравнению с объемной. К настоящему времени накоплен значительный объем данных по транспортным свойствам топологических изоляторов при исследовании соединений на основе селенидов висмута  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ . В частности, такие эффекты, как осцилляции сопротивления Шубникова–де Гааза и слабой антилокализации, позволили выявить вклад поверхностных состояний в электронный транспорт [7–12]. Недавние исследования посредством туннельной микроскопии в тонких пленках  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  выявили четко выраженную линейную дисперсию энергии поверхностных состояний как дираковскую фермионную 2D систему с нулевой массой [13]. Эти результаты указывают на возможность наблюдения характерных признаков поверхностных состояний посредством измерения электронного транспорта.

В настоящей работе представлены результаты по выращиванию совершенных монокристаллов в виде нанопластин соединения  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  различной толщины и исследованию их электронной проводимости в магнитных полях.

## 2. Приготовление образцов

Монокристаллические нанопластины  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  различной толщины и формы были выращены из паровой фазы на  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  подложках с использованием в качестве источника поликристаллического соединения  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  [14]. Монокристаллическость нанопластин подтверждена результатами исследований полученных образцов сканирующим электронным микроскопом (SEM) и просвечивающим электронным микроскопом (ТЕМ), представленных на рис.1.

Свободно стоящие и вертикально ориентированные нанопластины подходящей толщины переносились на стандартный, с 16 клеммами, чип механическим микроманипулятором для последующего нанесения электрических контактов и подводящих проводов, а также структурирования методом электронной литографии. Для измерений были выбраны образцы с толщинами  $d = 450$  нм, 50 нм и 25 нм. Энергорассеивающий рентгеновский анализ показал идентичное соотношение  $\text{Sb}/\text{Te} = (41 \pm 1)/(59 \pm 1)$  для всех трех образцов. Измерения электронной

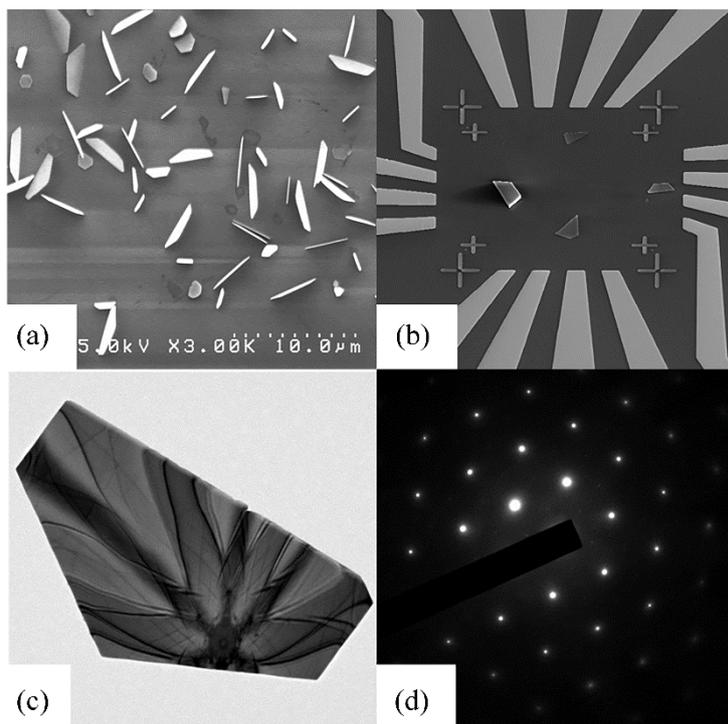


Рис.1. (a) SEM изображение выращенных нанопластин. (b) Некоторые нанопластины, перенесенные на стандартный чип. (c) TEM изображение произвольной нанопластины. (d) TEM дифрактограмма нанопластины.

проводимости образцов проводилось на коммерческой установке измерения физических свойств (PPMS) стандартным четырехзондовым методом в магнитных полях до 9 Т и при температурах от 2К до 300К. Магнитосопротивление определялось как  $MR = (100\%) \times (R_B - R_0)/R_0$ , где  $R_B$  сопротивление образца в магнитном поле, а  $R_0$  сопротивление образца без приложения магнитного поля. Магнитосопротивление образца с толщиной 450 нм было измерено как при поперечном, так и при продольном направлении магнитного поля  $B$ , в то время как для остальных образцов измерение  $MR$  проводилось только в поперечном магнитном поле.

### 3. Результаты измерений и их обсуждение

Сначала были измерены сопротивления нанопластин без приложения магнитного поля в диапазоне температур 2–300К. Результаты в виде нормированного сопротивления  $R_T/R_{300}$ , приведенные на рис.2, указывают на металлический ход температурной зависимости сопротивления нанопластин. Отметим, что величина  $R_T/R_{300}$  нанопластины с толщиной 450 нм повторяет, практически в точности, поведение объемного образца (макроскопического, с размерами 3мм×2мм×1мм, вырезанного из мишени). Однако можно заметить, что угол наклона

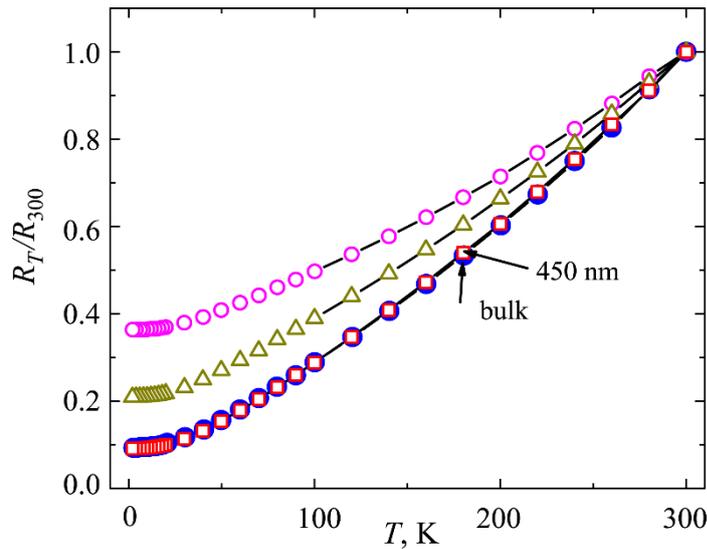


Рис.2. Температурные зависимости нормированного сопротивления объемного образца и нанопластин различной толщины: ● – для объемного образца, □ – для нанопластины с толщиной 450 нм, △ – для нанопластины с толщиной 50 нм, ○ – для нанопластины с толщиной 25 нм.

кривых  $R_T/R_{300}$  уменьшается, а остаточное удельное сопротивление растет при дальнейшем уменьшении толщины образцов. Можно сказать, что соединение  $\text{Sb}_2\text{Te}_3$  до толщин  $\sim 450$  нм ведет себя как объемный материал. Увеличение сопротивления означает увеличение степени беспорядка в образцах из-за уменьшения их толщины, следствием чего является увеличение интенсивности рассеяния носителей заряда и подавление их подвижности. Измерение холловского сопротивления на образцах с толщинами 450 нм и 25 нм позволило получить величину подвижности  $\mu$  и концентрации  $p$  носителей заряда в этих образцах. При вычислениях использовались соотношения  $\mu = R_{\text{Hall}}/\rho$  и  $p = 1/(R_{\text{Hall}} q)$ , где  $\rho$  – удельное сопротивление,  $R_{\text{Hall}} = (R_{xy} d)/B$  – коэффициент Холла,  $R_{xy}$  – поперечное сопротивление и  $q$  – элементарный заряд. Для образца с толщиной 25 нм имеем:  $\mu = 0.0145$  м<sup>2</sup>/Вс,  $p = 3 \times 10^{26}$  м<sup>-3</sup> при 2К и  $\mu = 0.0075$  м<sup>2</sup>/Вс,  $p = 2 \times 10^{26}$  м<sup>-3</sup> при 300К. Для образца с толщиной 450 нм имеем:  $\mu = 0.43$  м<sup>2</sup>/Вс,  $p = 7.6 \times 10^{25}$  м<sup>-3</sup> при 2К и  $\mu = 0.052$  м<sup>2</sup>/Вс,  $p = 5.7 \times 10^{25}$  м<sup>-3</sup> при 300К. Необходимо отметить, что эти результаты получены при измерениях в магнитных полях ниже 0.5 Т. В более сильных магнитных полях холловское сопротивление, в частности образца с толщиной 450 нм, показывает нелинейную зависимость от магнитного поля. Причиной такого поведения является сосуществование в этом материале дырок с высокой и малой подвижностью [15].

Полученные величины  $\mu$  подтверждают результаты измерения температурной зависимости сопротивления образцов. Единственным источником увеличения беспорядка в монокристаллических нанопластинах с уменьшением их

толщины является увеличение количества дефектов в них. Это предположение подкрепляется также данными по концентрации носителей заряда, полученными посредством измерения холловского сопротивления. Дело в том, что источником носителей заряда в соединении  $Sb_2Te_3$  являются внутренние дефекты, такие как вакансии сурьмы  $Sb$  и антиструктурные дефекты типа  $Sb_{Te}$ . Таким образом, увеличение количества носителей заряда прямо указывает на увеличение количества структурных дефектов. Зависимость концентрации носителей заряда от толщины нанопластин, по-видимому, является следствием того, что поверхность и приповерхностная область образцов насыщена дефектами, а уменьшение толщины приводит к увеличению относительного вклада поверхности и приповерхностной области в транспорт зарядов в образце. Подобная зависимость концентрации носителей заряда от толщины наблюдалась в работе [16].

Полученные результаты по измерению магнитосопротивления нанопластин при 2К и 300К приведены на рис.3. Величина и форма кривых магнитосопротивления образцов демонстрируют сильную зависимость от толщины и температуры нанопластин. Обычное положительное магнитосопротивление, которое должно наблюдаться в данном случае, вызывается силой Лоренца, действующей на заряды, отклоняющей их от первоначальной траектории и вынуждающей их совершать движение по циклотронным орбитам. Это магнитосопротивление зависит квадратично от магнитного поля и подвижности носителей заряда, т.е.  $MR \sim 1 + (\mu B)^2$ . Выявленная сильная зависимость подвижности носителей заряда от толщины нанопластин отражена также на полученных кривых  $MR$ . При высоких температурах подвижность дополнительно подавляется интенсивным рассеянием носителей заряда на фонах. Поэтому у всех нанопластин  $MR$  значительно уменьшается при комнатной температуре по сравнению с величиной

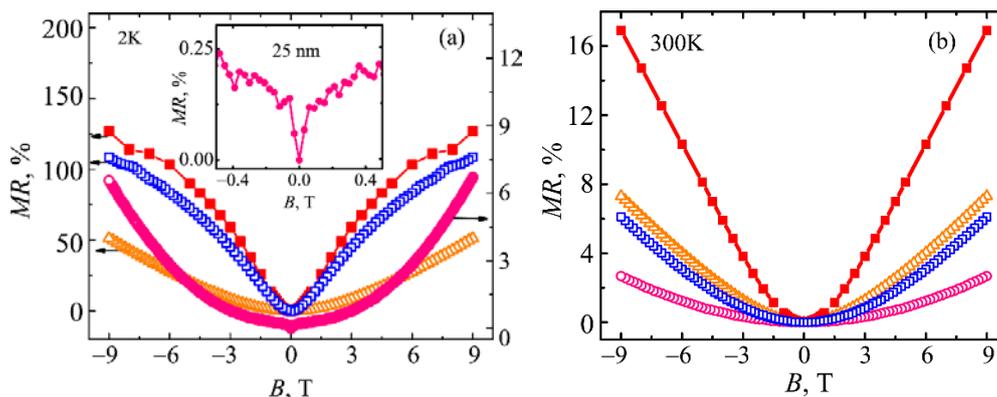


Рис.3. (а) Магнитосопротивление нанопластин при 2К. Вставка показывает аномалию слабой антилокализации. (б) Магнитосопротивление нанопластин при 300К. ■ – для нанопластины с толщиной 450 нм в поперечном магнитном поле, □ – для нанопластины с толщиной 450 нм в продольном магнитном поле, Δ – для нанопластины с толщиной 50 нм, ○ – для нанопластины с толщиной 25 нм.

при 2К. Значительная анизотропия магнитосопротивления (зависимость величины  $MR$  от направления магнитного поля) у образца с толщиной 450 нм, вероятно, обусловлена анизотропией эффективной массы ( $m^*$ ) носителей заряда в соединении  $Sb_2Te_3$  [17]. Самая тонкая из исследованных нанопластин демонстрирует аномалию на кривой  $MR$  вблизи нулевого магнитного поля. Эта аномалия является проявлением эффекта антилокализации, присущего топологическим изоляторам, и отражает вклад поверхностных состояний в электронную проводимость [18]. Для поверхностных состояний при сильном спин-орбитальном взаимодействии, когда направление импульса и спина взаимно сильно связаны и защищены симметрией обращения времени, рассеяние запрещено. Включение магнитного поля приводит к ослаблению спин-орбитального взаимодействия и нарушению симметрии. Вследствие этого рассеяние становится разрешенным, что вызывает резкое увеличение сопротивления с ростом магнитного поля. Антилокализационная аномалия четко проявляемая при 2К, постепенно уменьшается с увеличением температуры из-за сокращения фазовой длины когерентности и не наблюдается при 300К [14]. Поскольку этот эффект у более толстых образцов не проявляется, то можно с большой вероятностью предположить, что он обусловлен именно вкладом поверхностных состояний.

На рис.4 приведены значения производной сопротивления нанопластин по магнитному полю  $dMR/dB$  в зависимости от приложенного магнитного поля  $B$ . Эти кривые позволяют прояснить функциональную зависимость  $MR$  от магнитного поля и выявить некоторые характерные особенности ее поведения. Под действием магнитного поля носители заряда пытаются совершать движение по циклотронным орбитам. Как правило магнитосопротивление насыщается или ведет себя  $\sim B^2$  в зависимости от того, соответственно замкнуты или открыты циклотронные орбиты. Условие замкнутости орбит дается неравенством  $\omega_c \tau > 1$ , где  $\omega_c = qB/m^*$  – циклотронная частота и  $\tau$  – время релаксации. В нашем случае ни одна из кривых  $MR$  не показывает насыщение, указывая на то, что циклотронные орбиты в интервале приложенных магнитных полей незамкнуты. Радиус орбиты  $r = \hbar k_F / qB$ , где волновой вектор у поверхности Ферми  $k_F = (3\pi^2 p)^{1/3}$ , для образца с толщиной 450 нм при 2К соответствует величине  $\sim 220$  нм в магнитном поле 4 Т. Таким образом, в магнитных полях  $> 4$  Т орбита носителей заряда уже целиком может лежать в образце с толщиной 450 нм, однако для других образцов она превышает их толщину во всем диапазоне приложенных магнитных полей.

Как видно из рис.4,  $MR$  тонкого образца показывает зависимость  $\sim B^2$  (производная линейна) как при 2К, так и при 300К. Это указывает на то, что рассеяние (вызванное ограниченными размерами, дефектами и фононами), ограничивающее подвижность носителей заряда, достаточно интенсивное и качественно не меняется во всем диапазоне температур и магнитных полей.  $MR$  образца с толщиной 450 нм показывает зависимость  $\sim B^2$  при 2К и 300К в полях  $< 2$  Т. В таких полях орбита носителей заряда сильно превышает размеры образца и качественно не влияет на процессы рассеяния, и условия похожи на те, которые существуют в образце с толщиной 25 нм. В более сильных магнитных полях, когда

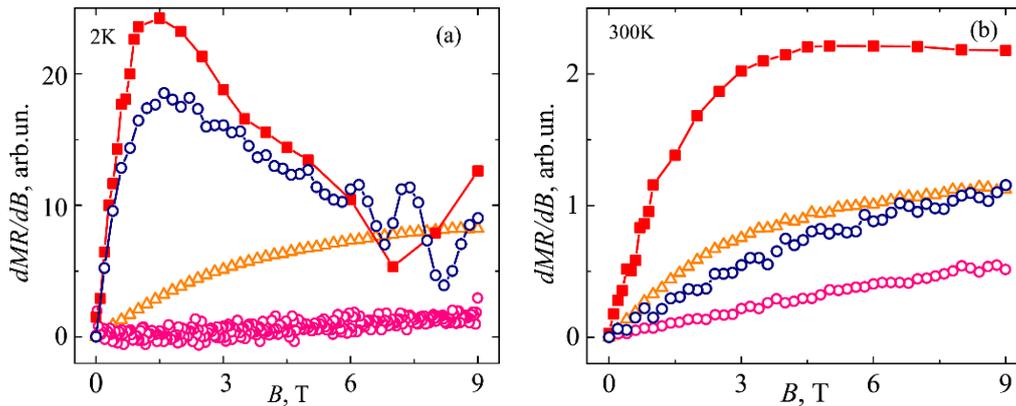


Рис.4. Производные магнитосопротивления по полю. (а) при 2К. (б) при 300К. ■ – для нанопластины с толщиной 450 нм в поперечном магнитном поле, □ – для нанопластины с толщиной 450 нм в продольном магнитном поле, Δ – для нанопластины с толщиной 50 нм, ○ – для нанопластины с толщиной 25 нм.

радиус орбиты носителей заряда сравнивается или становится меньше толщины образца, происходит качественное изменение рассеяния, что и отражается на зависимости  $MR$  от магнитного поля. Вероятно, играет роль присутствие в образце с толщиной 450 нм носителей с высокой и низкой подвижностями. Такое разделение по подвижностям в образце с толщиной 25 нм отсутствует из-за сильного рассеяния, которое нивелирует разницу в подвижностях носителей заряда [15]. Что касается поведения  $MR$  у образца с толщиной 50 нм, то оно демонстрирует что-то промежуточное между двумя крайними случаями, как можно увидеть из рис.4.

Зависимости  $dMR/dB$  от магнитного поля образца с толщиной 450 нм позволили выявить при 2К осцилляции, возрастающие с увеличением магнитного поля (см. рис.4а) и идентифицированные как осцилляции Шубникова–де Гааза. Осцилляции периодичны по обратному полю ( $1/B$ ) с частотой  $F = 36$  Т. Поскольку эти осцилляции у исследуемого образца наблюдаются как в поперечном, так и в продольном магнитном поле, то они скорее всего относятся к объемным состояниям, т.к. поверхностные состояния не должны давать отклик в продольном магнитном поле.

#### 4. Заключение

Таким образом, измерено магнитосопротивление нанопластин различной толщины соединения  $Sb_2Te_3$ , принадлежащего к классу топологических изоляторов, в магнитных полях до 9 Т и при температурах 2К и 300К. Сильная зависимость магнитосопротивления от толщины нанопластин и их температуры припи-

сывается поведению подвижности носителей заряда, которая в свою очередь зависит от толщины нанопластин и их температуры. На магнитосопротивлении наиболее тонкого образца с толщиной 25 нм выявлена аномалия слабой антилокализации, присущая топологическим изоляторам и являющаяся вкладом поверхностных состояний в электронный транспорт. Осцилляции Шубникова–де Гааза выявлены на кривых магнитосопротивления наиболее толстого образца с толщиной 450 нм, которые являются откликом объемных состояний на приложенное магнитное поле.

Автор выражает благодарность профессору Янг Юан Чену за предоставленную возможность проведения измерений в Лаборатории низких температур и наноматериалов Института Физики (Тайбей, Тайвань).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. C. Wood. Rep. Prog. Phys., **51**, 459 (1988).
2. H. Zhang, Ch.-H. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Zh. Fang, Sh.-Ch. Zhang. Nat. Phys., **5**, 438 (2009).
3. J. Zhang, C.-Z. Chang, Z. Zhang, J. Wen, X. Feng, K. Li, M. Liu, K. He, L. Wang, X. Chen, Q.-K. Xue, X. Ma, Y. Wang. Nat. Comm., **2**, 574 (2011).
4. M.Z. Hasan, C.L. Kane. Rev. Modern. Phys., **82**, 3045 (2011).
5. J.E. Moore. Nature, **464**, 194 (2010).
6. Y. Ando, S.-C. Zhang. Physics, **1**, 6 (2008).
7. J.G. Analytis, R.D. McDonald, S.C. Riggs, J.H. Chu, G.S. Boebinger, I.R. Fisher. Nat. Phys., **6**, 960 (2011).
8. H. Steinberg, D.R. Gardner, Y.S. Lee, P. Jarillo-Herrero. Nano Lett., **10**, 5032 (2010).
9. J. Lee, J. Park, J.-H. Lee, J.S. Kim, H.-J. Lee. Phys. Rev. B, **86**, 245321 (2012).
10. S.S. Hong, J.J. Cha, D. Kong, Y. Cui. Nat. Commun., **3**, 756 (2012).
11. S. Matsuo, T. Koyama, K. Shimamura, T. Arakawa, Y. Nashihara, D. Chiba, K. Koboyashi, T. Ono, C.-Z. Chang, K. He, X.-C. Ma, Q.-K. Xue. Phys. Rev. B, **85**, 075440 (2012).
12. L. Bao, L. He, N. Meyer, X. Kou, P. Zhang, Z.-G. Chen, A.V. Fedorov, J. Zou, T.M. Riedemann, T.A. Lograsso, K.L. Wang, G. Tuttle, F. Xiu. Nat. Commun, **2**, 726 (2012).
13. Y. Jiang, Y. Wang, M. Chen, Z. Li, C. Song, K. He, L. Wang, X. Chen, X. Ma, Q.-K. Xue. Phys. Rev. Lett., **108**, 016401 (2012).
14. Y.-C. Huang, P.C. Lee, C.H. Chien, F.Y. Chiu, Y.Y. Chen, S.R. Harutyunyan. Physica B, **452**, 108 (2014).
15. P.C. Lee, Y.-Ch. Huang, C.H. Chien, F.Y. Chiu, Y.Y. Chen, S.R. Harutyunyan. Physica B, **459**, 12 (2015).
16. Y.S. Kim, M. Brahlek, N. Bansal, E. Edrey, G.A. Kapilevich, K. Iida, M. Tanimura, Y. Horibe, S.W. Cheong, S. Oh. Phys. Rev. B, **84**, 073109 (2011).
17. V.A. Kulbachinskii, Z.M. Dashevskii, M. Inoue, M. Sasaki, H. Negishi, W.X. Gao, P. Lostak, J. Horak. Phys. Rev. B, **52**, 10915 (1995).
18. J.H. Bardarson, J.E. Moore. Rep. Prog. Phys., **76**, 056501 (2013).

**Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> ՆԱՆՈԹԻԹԵՂՆԵՐԻ ՀԱՍՏՈՒԹՅՈՒՆԻՑ ԿԱԽՎԱԾ  
ՄԱԳՆԻՍԱԴԻՄԱԴՐՈՒԹՅՈՒՆԸ ԵՎ ԹՈՒՅԼ ԱՆՏԻԼՈԿԱԼԻԶԱՑՄԱՆ ԵՐԵՎՈՒՅԹԸ  
Ս.Ր. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ**

Հետազոտված են տարբեր հաստության Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> միաբյուրեղ նանոթիթեղների (որոնք պատկանում են տոպոլոգիական մեկուսիչների դասին) մագնիսադիմադրությունը: Չափումները, որոնք կատարվել են 2 Կ և 300 Կ ջերմաստիճաններում և մինչև 9 Տ մագնիսական դաշտերում ցույց են տալիս, որ մագնիսադիմադրությունները ուժեղ կախված են նանոթիթեղների հաստությունից և ջերմաստիճանից: Մագնիսադիմադրության այդպիսի վարքը պայմանավորված է լիցքակիրների շարժունակության վարքով, որը իր հերթին կախված է նանոթիթեղների հաստությունից և ջերմաստիճանից: Ամենաբարակ՝ 25 նմ հաստություն ունեցող նմուշի մագնիսադիմադրության կորը ցուցադրում է վառ արտահայտված թույլ անտիլոկալիզացման երևույթը, որը հատուկ է տոպոլոգիական մեկուսիչներին և ցույց է տալիս մակերևութային վիճակների ներդրումը էլեկտրոնային փոխադրումների մեջ: Շուբնիկովի–դե Հասսի տատանումները ցուցաբերվել են ամենահաստ նմուշի (450 նմ հաստությամբ) մագնիսադիմադրության կորի վրա որը հանդիսանում է ծավալային վիճակների պատասխանը մագնիսական դաշտի կիրառմանը:

**THICKNESS-DEPENDENT MAGNETORESISTANCE OF Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> NANOFKAKES  
AND WEAK ANTILOCALIZATION EFFECT**

**S.R. HARUTYUNYAN**

Magnetoresistance of single crystalline Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> topological insulator nanoflakes of different thickness has been studied in magnetic fields up to 9 T at temperatures of 2K and 300K. The obtained values of magnetoresistance demonstrate strong dependence on thickness of the nanoflakes. The behavior of the magnetoresistance was attributed to the behavior of the mobility of charge carriers which in its turn depends on thickness and temperature of the nanoflakes. The magnetoresistance of the sample with the thickness of 25 nm shows pronounced weak antilocalization effect (inherent for topological insulators) which is the contribution of surface states to the electronic transport. Shubnikov–de Haas oscillations were revealed on the magnetoresistance of the thickest sample (with the thickness of 450 nm) which is a response of the bulk states on applied magnetic field.