



УДК 539.23

DOI 10.18413/2075-4639-2019-51-4-533-540

ПОЛУЧЕНИЕ И МЕХАНИЗМЫ ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ ТОНКИХ ПЛЁНОК ДИРАКОВСКОГО ПОЛУМЕТАЛЛА Cd_3As_2

PREPARATION AND CONDUCTION MECHANISMS OF THIN FILMS OF DIRAC SEMIMETAL Cd_3As_2

В.С. Захвалинский, Е.А. Пилюк, Т.Б. Никуличева, С.В. Иванчихин, М.Н. Япрынцеv, Т.А. Ерина

V.S. Zakhvalinskii, E.A. Pilyuk, T.B. Nikulicheva, S.V. Ivanchikhin, M.N. Yaprintsev, T.A. Erina

Белгородский государственный национальный исследовательский университет, Россия, 308015, г. Белгород, ул. Победы, 85

Belgorod National Research University, 85 Pobedy St, Belgorod, 308015, Russia

E-mail: zakhvalinskii@bsu.edu.ru

Аннотация

В работе описывается метод выращивания высококачественных тонких пленок Cd_3As_2 . Измерена зависимость электропроводности от температуры в интервале от 3 К до 300 К. В области гелиевых температур определен диапазон реализации механизма прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка по Шкловскому-Эфросу. В плотности локализованных состояний вычислены радиус локализации носителей заряда, ширина кулоновской $\Delta = 0.095$ мэВ и жёсткой щели $\delta = 0.002$ мэВ.

Abstract

In the article a method for growing high quality Cd_3As_2 thin films are described. The dependence of the conductivity on the temperature in the range from 3 K to 300 K. In the region of helium temperatures, range of realization of the Shklovskii-Efros type variable range hopping conductivity mechanisms was determined. In the density of localized states, the radius of localization of charge carriers, the Coulomb gap $\Delta = 0.095$ meV and the rigid gap $\delta = 0.002$ meV are calculated.

Ключевые слова: разбавленные магнитные полупроводники, дираковский полуметалл, арсенид кадмия, тонкие пленки, прыжковая проводимость.

Keywords: diluted magnetic semiconductors, Dirac semimetal, cadmium arsenide, thin films, hopping conductivity.

Введение

Топологические материалы, характеризующиеся нетривиальной топологией электронной зонной структуры, являются перспективными материалами и обладают свойствами квантового переноса носителей заряда [Murakami, 2007; Young, 2012; Hasan, 2010; Xu, Belopolski, 2015]. Дираковские топологические полуметаллы (ДТП) особое внимание привлекали после обнаружения в трехмерных (3D) материалах дираковских фермионов [Murakami, 2007; Young, 2012; Wang, 2013; Xu, 2015; Liu, 2014; Neupane, 2014; Jeon, 2014; Yang, 2014]. ДТП могут выступать в качестве 3D топологического изолятора [Hasan, 2010], полуметалла Вейля [Xu, Belopolski, 2015], двумерного (2D) топологического изолятора [Wang, 2013], за счет нарушения симметрии



в ДТП [Murakami, 2007; Young, 2012]. Одним из наиболее широко известных 3D кристаллическим ДТП является Cd_3As_2 [Wang, 2013], а его электронная зонная структура была непосредственно подтверждена фотоэлектронной спектроскопией с угловым разрешением (ARPES) и сканирующей туннельной спектроскопией (STS) [Wang, 2013; Xu, 2015; Liu, 2014; Neupane, 2014; Jeon, 2014]. Была также разработана классификационная схема ДТП с точки зрения симметрии кристаллографической точечной группы симметрии [Yang, 2014].

Как правило, различные классы приборов в микроэлектронике представляют плёночные гетероструктуры, поэтому изготовление тонких плёнок ДТП имеет решающее значение для изучения его потенциала в качестве прототипа топологических материалов. Подготовка высококачественных тонких плёнок ДТП является очень сложной задачей. 3D Cd_3As_2 известен как стабильный полупроводник типа A^2B^5 , но из-за его высокой летучести получение качественных плёнок связано с необходимостью низкотемпературного роста [Liu, 2015; Zhao, 2016; Schumann, 2016]. Электронная структура Cd_3As_2 состоит из зон проводимости и валентных зон с инвертированной структурой, соприкасающихся для формирования трехмерных дираковских конусов с вершиной в точках Дирака $\pm k_D$. До настоящего времени большинство исследований явлений переноса, включая поверхностный перенос, были получены для объемных образцов [He, 2014; Liang, 2015; Moll, 2016; Feng, 2015; Zhang, 2015; Narayanan, 2015]. Таким образом, исследование тонких плёнок Cd_3As_2 открывает новые возможности для исследования квантового переноса, например, затворной модуляции [Wang, 2017].

В данной работе описывается метод получения высококачественных тонких плёнок Cd_3As_2 и исследование механизма проводимости.

Материалы и методика эксперимента

Плёнки Cd_3As_2 были получены вч-магнетронным распылением в атмосфере аргона при давлении $8 \cdot 10^{-3}$ мбар. Скорость напыления при подаваемой мощности 10 Вт и расстоянии мишень-подложки составляла около 1 нм/мин. В качестве подложки был использован сапфир, температура подложки в процессе напыления составляла 20°C . Мишень, которая использовалась в качестве катода, представляла собой поликристаллический диск диаметром 40 мм и толщиной 3 мм. Синтез Cd_3As_2 для мишени осуществлялся прямым сплавлением Cd и As в вакууме. Контроль качества полученного материала подложки осуществлялся методами рентгенофазового анализа (РФА) с использованием дифрактометра Rigaku Ultima IV (Rigaku corp., Япония) и энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDX) на растровом электронном микроскопе FEI Quanta 600 FEG (FEI Company, Голландия).

Рамановский спектр был получен при комнатной температуре с использованием спектрометра комбинационного рассеяния света (КРС) LabRam HR Evolution (HORIBA JOBIN YVON S.A.S., France) с использованием лазера с длиной волны 532 нм, мощностью 100 мВт. Размер сфокусированного светового пятна на поверхности образца составлял 500 нм. Спектральное разрешение составляло 0.5 см^{-1} .

Паличие фазы Cd_3As_2 в полученных плёнках подтверждается результатами спектроскопии комбинационного рассеяния (КРС). Спектр КРС, показанный на рис. 1, показывает наличие двух основных пиков в области 194 и 249 см^{-1} , которые являются характерными для тонких плёнок Cd_3As_2 [Suslov, 2019].

Исследование транспортных свойств проводили по стандартной четырехточечной схеме на установке Mini Cryogen Free Systems (Cryogenic Ltd, UK) в температурном диапазоне 3–300 К.

Анализ результатов и обсуждение

Для определения механизма проводимости полученных образцов тонких плёнок в области гелиевых температур проводится анализ зависимости удельного сопротивления от температуры в соответствии с [Shklovskii, 1984]:

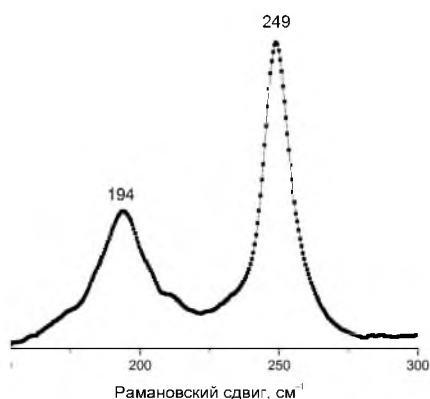


Рис. 1. Спектр КРС для тонкой пленки Cd_3As_2 , нанесенной на подложку из сапфира
 Fig. 1. Raman spectra for the thin films Cd_3As_2 deposited on a sapphire substrate

$$\rho(T) = \rho_0 \exp [E_A / (kT)], \tag{1}$$

где ρ_0 – предэкспоненциальный множитель, E_A – энергия активации, k – постоянная Больцмана.

Результаты, полученные при исследовании зависимости удельного сопротивления пленки Cd_3As_2 от температуры, приведены на рис. 2.

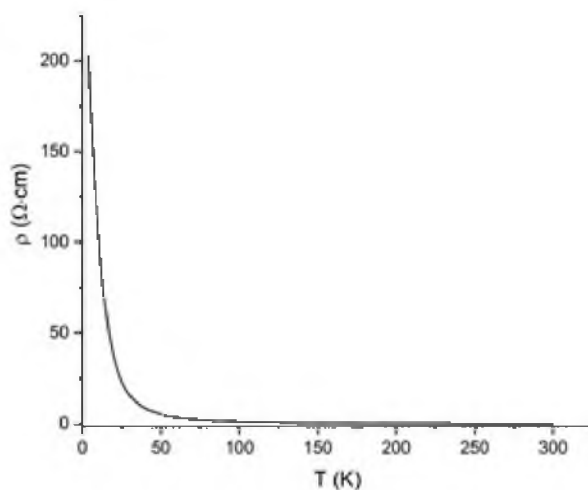


Рис. 2. Температурная зависимость удельного сопротивления тонкой пленки Cd_3As_2 , нанесенной на сапфировую подложку
 Fig. 2. Temperature dependence of resistivity of the thin film Cd_3As_2 deposited on a sapphire substrate

Удельное сопротивления образца может быть записано в универсальной форме:

$$\rho(T) = \rho_0 \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^p \right] = AT^m \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^p \right], \tag{2}$$



где T_0 – характеристическая температура. В случае $p = 1$ реализуется механизм проводимости по ближайшим узлам (в этом случае вместо T_0 обычно вводится энергия активации $E_0 \equiv kT_0$); $p = 1/4$ соответствует механизму проводимости с переменной длиной прыжка (ПППДП) моттовского типа [Mott, 1979], если $p = 1/2$ – ПППДП типа Шкловского-Эфроса (ШЭ) [Shklovskii, 1984]. Значение m определяется в зависимости от режима проводимости и вида волновой функции $\Gamma \equiv [(kT(T_0/T)^p a)/(2\hbar s)]^2$ локализованных носителей, соответственно. В уравнении (2) $T_0 = T_M$ или $T_0 = T_{SE}$ для $p = 1/4$ или $p = 1/2$ соответственно, где

$$T_M = \frac{\beta_M}{kg(\mu)a^3}, T_{SE} = \frac{\beta_{SE}e^2}{\kappa ka}, \quad (3)$$

κ – диэлектрическая постоянная, $\beta_M = 21$ и $\beta_{SE} = 2.8$ [Laiho, 2008].

При определении механизма прыжковой проводимости значение имеет не только параметр p в уравнении (2), но и зависимость от температуры стоящего в уравнении перед экспонентой множителя, которая задается степенной зависимостью от m . Поэтому оба параметра m и p необходимо определять одновременно и независимо. С учетом того, что локальная энергия активации, $E_a \equiv d \ln \rho / (d(kT)^{-1})$ [Laiho, 2008], можно представить уравнение (2) в виде:

$$\ln[E_a/(kT) + m] = \ln \rho + \rho \ln T_0 + \rho \ln(1/T). \quad (4)$$

Таким образом, для определённого режима прыжковой проводимости левая часть уравнения (4) будет представлять собой линейную функцию от $\ln(1/T)$ при заданном значении m , а следовательно, параметр p может быть определен по наклону зависимости $\ln[E_a/(kT) + m]$ от $\ln(1/T)$ (рис. 3).

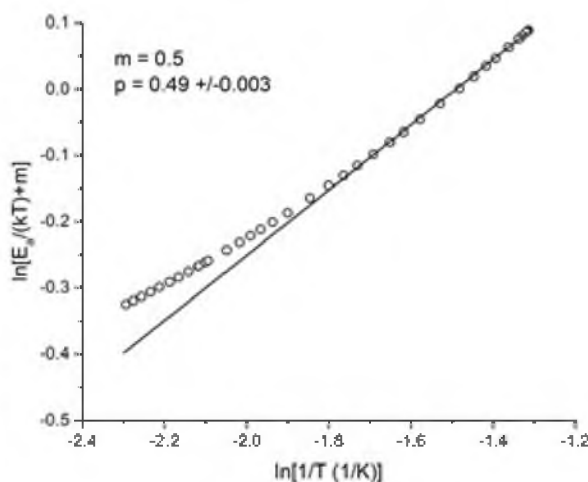


Рис. 3. Зависимость $\ln[E_a/(kT) + m]$ от $\ln(1/T)$ образца
Fig. 3. The plot of $\ln[E_a/(kT) + m]$ vs. $\ln(1/T)$ of the sample

При реализации ПППДП по закону Шкловского-Эфроса (ШЭ) плотность состояний $g(\varepsilon)$ не является постоянной из-за наличия кулоновской щели, в отличие от ПППДП по закону Мотта:

$$g(\varepsilon) \propto \left(\frac{\kappa}{e^2}\right)^d |\varepsilon|^{d-1}, g(0) = 0, \quad (5)$$

где d – это размерность пространства, энергия ε отсчитывается от ферми-уровня.



Для исследуемого образца механизм ПППДП по закону ШЭ реализуется в интервале низких температур $T = 3 \div 10$ К. Это можно объяснить тем, что механизм проводимости блокируется поверхностным рассеянием в тонкой пленке, и поэтому становится возможен механизм ПППДП. Данные, полученные для нулевого поля, позволяют определить плотность локализованных состояний, ширину кулоновской щели, радиус локализации носителя заряда, диэлектрическую проницаемость. Таким образом, найденные микроскопические параметры позволяют подтвердить сделанные выводы о механизмах прыжковой проводимости [Laiho, 2008].

Ширину мягкой кулоновской щели найдем из уравнения [Shklovskii, 1984]:

$$\Delta \approx \frac{k}{2} \sqrt{TT_{SE}}. \tag{6}$$

Диэлектрическая постоянная κ может быть найдена из выражения $\Delta \approx U$, где $U = e^2/(\kappa R_h)$ – энергия кулоновского отталкивания между дырками, находящимися на среднем расстоянии $R_h = (4\pi p_{77}/3)^{-1/3}$. Здесь p_{77} – холловская концентрация носителей заряда при $T=77$ К в полях меньше 0.1 Тл. Вне кулоновской щели [Shklovskii, 1984] и вблизи уровня Ферми [Mott, 1979] ПЛС может быть определена из выражений:

$$g_0 = \frac{3\kappa^3(\Delta - \delta)^2}{\pi e^6} \cdot g(\mu) = \frac{N_A}{2k(T^3 T_M)^{1/4}}. \tag{7}$$

Ширина кулоновской щели в ПЛС уровня Ферми определяется в соответствии со следующим выражением [Laiho, 2008]:

$$W = \frac{N_A}{2g_0} + \frac{2}{3}\Delta. \tag{8}$$

Средняя длина прыжка определяется из выражения:

$$r \approx \left(\frac{a_B}{g(\mu)T} \right)^{1/4} \approx a_B \left(\frac{T_M}{T} \right)^{1/4}.$$

Полученные микроскопические параметры для тонкой пленки Cd_3As_2 указаны в таблице 1.

Таблица 1
Table 1

Микроскопические параметры для тонкопленочного образца Cd_3As_2
Microscopic parameters for the thin film sample Cd_3As_2

ρ_0 Ом·см,	E_A , мэВ	a , Å	κ	Δ , мэВ	W , мэВ	δ , мэВ	g , см ⁻³ мэВ ⁻¹	r , нм
$1,12 \cdot 10^4$	0,19	418	18,6	0,095	0,17	0,002	$6,76 \cdot 10^{15}$	37,9

Ширина кулоновской щели Δ составляет около половины ширины акцепторной зоны W , что соответствует режиму ПППДП ШЭ. Соотношения между Δ и шириной зоны локализованных состояний W согласуются с соответствующими значениями для предполагаемых механизмов проводимости при $B = 0$ Тл.

Благодарность

Последование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 19-79-00152).



Список литературы

1. Feng, J. et al. 2015. Large linear magnetoresistance in Dirac semimetal Cd_3As_2 with Fermi surfaces close to the Dirac points. *Phys. Rev. B* 92. 081306(R).
2. Hasan, M. Z. & Kane, C. L. 2010. Colloquium: topological insulators. *Rev. Mod. Phys.* 82. 3045–3067.
3. He, L. P. et al. 2014. Quantum transport evidence for the three-dimensional Dirac semimetal phase in Cd_3As_2 . *Phys. Rev. Lett.* 113. 246402.
4. Jeon, S. et al. 2014. Landau quantization and quasiparticle interference in the three-dimensional Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 13. 851–856.
5. Laiho R., Lashkul A.V., Lisunov K.G., Lähderanta E., Shakhov M.A., Zakhvalinskii V.S. 2008. Hopping conductivity of Ni-doped p-CdSb. *J. Phys.: Condens. Matter.* V. 20. P. 295204.
6. Liang, T. et al. 2015. Ultrahigh mobility and giant magnetoresistance in the Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 14. 280–284.
7. Liu, Z. K. et al. 2014. A stable three-dimensional topological Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 13. 677–681.
8. Liu, Y. et al. 2015. Gate-tunable quantum oscillations in ambipolar Cd_3As_2 thin films. *NPG Asia Mater.* 7. e221.
9. Moll, P. J. W. et al. 2016. Transport evidence for Fermi-arc-mediated chirality transfer in the Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nature* 535. 266–270.
10. Mott N.F. and Davis E.A. 1979. *Electron Processes in Non-Crystalline Materials*. Oxford University Press. New York.
11. Murakami, S. 2007. Phase transition between the quantum spin Hall and insulator phases in 3D: emergence of a topological gapless phase. *New J. Phys.* 9. 356.
12. Narayanan, A. et al. 2015. Linear magnetoresistance caused by mobility fluctuations in n-doped Cd_3As_2 . *Phys. Rev. Lett.* 114. 117201.
13. Neupane, M. et al. 2014. Observation of a three-dimensional topological Dirac semimetal phase in high-mobility Cd_3As_2 . *Nat. Commun.* 5. 3786.
14. Schumann, T., Goyal, M., Kim, H. & Stemmer, S. 2016. Molecular beam epitaxy of Cd_3As_2 on a III–V substrate. *APL Mater.* 4. 126110.
15. Shklovskii B.I., Efros A.L. 1984. *Electronic Properties of Doped Semiconductors*. Berlin: Springer.
16. Suslov, A.V. 2019. Observation of subkelvin superconductivity in Cd_3As_2 thin films / A.V. Suslov, A.B. Davydov, L.N. Oveshnikov, L.A. Morgun, K.I. Kugel, V.S. Zakhvalinskii, E.A. Pilyuk, A.V. Kochura, A.P. Kuzmenko, V.M. Pudalov, and B.A. Aronson. *Physical Review B*. 2019. V. 99. P. 094512
17. Wang, Z., Weng, H., Wu, Q., Dai, X. & Fang, Z. 2013. Three-dimensional Dirac semimetal and quantum transport in Cd_3As_2 . *Phys. Rev. B* 88. 125427.

18. Wang, C. M., Sun, H.-P., Lu, H.-Z. & Xie, X. C. 2017. 3D Quantum Hall effect of Fermi arcs in topological semimetals. *Phys. Rev. Lett.* 119. 136806.
19. Xu, S.-Y. et al. 2015. Observation of Fermi arc surface states in a topological metal. *Science* 347. 294–298.
20. Xu, S.-Y., Belopolski, I. et al. 2015. Discovery of a Weyl fermion semimetal and topological Fermi arcs. *Science* 349. 613–617.
21. Yang, B.-J. & Nagaosa, N. 2014. Classification of stable three-dimensional Dirac semimetals with nontrivial topology. *Nat. Commun.* 5. 4898.
22. Young, S. M. et al. 2012. Dirac semimetal in three dimensions. *Phys. Rev. Lett.* 108. 140405.
23. Zhang, E. et al. 2015. Magnetotransport properties of Cd_3As_2 nanostructures. *ACS Nano* 9. 8843–8850.
24. Zhao, B. et al. 2016. Weak antilocalization in Cd_3As_2 thin films. *Sci. Rep.* 6. 22377.

References

1. Feng, J. et al. 2015. Large linear magnetoresistance in Dirac semimetal Cd_3As_2 with Fermi surfaces close to the Dirac points. *Phys. Rev. B* 92. 081306(R).
2. Hasan, M. Z. & Kane, C. L. 2010. Colloquium: topological insulators. *Rev. Mod. Phys.* 82. 3045–3067.
3. He, L. P. et al. 2014. Quantum transport evidence for the three-dimensional Dirac semimetal phase in Cd_3As_2 . *Phys. Rev. Lett.* 113. 246402.
4. Jeon, S. et al. 2014. Landau quantization and quasiparticle interference in the three-dimensional Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 13. 851–856.
5. Laiho R., Lashkul A.V., Lisunov K.G., Lähderanta E., Shakhov M.A., Zakhvalinskii V.S. 2008. Hopping conductivity of Ni-doped p-CdSb. *J. Phys.: Condens. Matter.* V. 20. P. 295204.
6. Liang, T. et al. 2015. Ultrahigh mobility and giant magnetoresistance in the Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 14. 280–284.
7. Liu, Z. K. et al. 2014. A stable three-dimensional topological Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nat. Mater.* 13. 677–681.
8. Liu, Y. et al. 2015. Gate-tunable quantum oscillations in ambipolar Cd_3As_2 thin films. *NPG Asia Mater.* 7. e221.
9. Moll, P. J. W. et al. 2016. Transport evidence for Fermi-arc-mediated chirality transfer in the Dirac semimetal Cd_3As_2 . *Nature* 535. 266–270.
10. Mott N.F. and Davis E.A. 1979. *Electron Processes in Non-Crystalline Materials*. Oxford University Press. New York.
11. Murakami, S. 2007. Phase transition between the quantum spin Hall and insulator phases in 3D: emergence of a topological gapless phase. *New J. Phys.* 9. 356.
12. Narayanan, A. et al. 2015. Linear magnetoresistance caused by mobility fluctuations in n-doped Cd_3As_2 . *Phys. Rev. Lett.* 114. 117201.



13. Neupane, M. et al. 2014. Observation of a three-dimensional topological Dirac semimetal phase in high-mobility Cd_3As_2 . *Nat. Commun.* 5. 3786.
14. Schumann, T., Goyal, M., Kim, H. & Stemmer, S. 2016. Molecular beam epitaxy of Cd_3As_2 on a III–V substrate. *APL Mater.* 4. 126110.
15. Shklovskii B.I., Efros A.L. 1984. *Electronic Properties of Doped Semiconductors*. Berlin: Springer.
16. Suslov, A.V. 2019. Observation of subkelvin superconductivity in Cd_3As_2 thin films / A.V. Suslov, A.B. Davydov, L.N. Oveshnikov, L.A. Morgun, K.I. Kugel, V.S. Zakhvalinskii, E.A. Pilyuk, A.V. Kochura, A.P. Kuzmenko, V.M. Pudalov, and B.A. Aronzon. *Physical Review B*. 2019. V. 99. P. 094512
17. Wang, Z., Weng, H., Wu, Q., Dai, X. & Fang, Z. 2013. Three-dimensional Dirac semimetal and quantum transport in Cd_3As_2 . *Phys. Rev. B* 88. 125427.
18. Wang, C. M., Sun, H.-P., Lu, H.-Z. & Xie, X. C. 2017. 3D Quantum Hall effect of Fermi arcs in topological semimetals. *Phys. Rev. Lett.* 119. 136806.
19. Xu, S.-Y. et al. 2015. Observation of Fermi arc surface states in a topological metal. *Science* 347. 294–298.
20. Xu, S.-Y., Belopolski, I. et al. 2015. Discovery of a Weyl fermion semimetal and topological Fermi arcs. *Science* 349. 613–617.
21. Yang, B.-J. & Nagaosa, N. 2014. Classification of stable three-dimensional Dirac semimetals with nontrivial topology. *Nat. Commun.* 5. 4898.
22. Young, S. M. et al. 2012. Dirac semimetal in three dimensions. *Phys. Rev. Lett.* 108. 140405.
23. Zhang, E. et al. 2015. Magnetotransport properties of Cd_3As_2 nanostructures. *ACS Nano* 9. 8843–8850.
24. Zhao, B. et al. 2016. Weak antilocalization in Cd_3As_2 thin films. *Sci. Rep.* 6. 22377.

**Ссылка для цитирования статьи
For citation**

Захвалинский В.С., Нилюк Е.А., Никуличева Т.Б., Иванчихин С.В., Яиринцев М.Н., Ерина Т.А. 2019. Получение и механизмы электропроводности тонких плёнок дираковского полуметалла Cd_3As_2 . *Научные ведомости Белгородского государственного университета. Серия: Математика. Физика.* 51 (4): 533–540. DOI 10.18413/2075-4639-2019-51-4-533-540.

Zakhvalinskii V.S., Pilyuk E.A., Nikulicheva T.B., Ivanchikhin S.V., Yaprincev M.N., Erina T.A. 2019. Preparation and conduction mechanisms of thin films of dirac semimetal Cd_3As_2 . *Belgorod State University Scientific Bulletin. Mathematics. Physics.* 51 (4): 533–540 (in Russian). DOI 10.18413/2075-4639-2019-51-4-533-540.