На правах рукописи

Путилов Алексей Владимирович

Исследование пространственно-неоднородных электронных состояний методами низкотемпературной сканирующей зондовой микроскопии и спектроскопии

01.04.07 – физика конденсированного состояния

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород — 2020

Работа выполнена в Институте физики микроструктур РАН – филиале Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук», Нижний Новгород

Научный руководитель:	Аладышкин Алексей Юрьевич кандидат физико-математических наук, с.н.с., Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород
Официальные оппоненты:	Таланов Юрий Иванович доктор физико-математических наук, проф., с.н.с., Казанский физико-технический инсти- тут им. Завойского КазНЦ РАН, Казань
	Чайка Александр Николаевич кандидат физико-математических наук, с. н. с., Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка
Ведущая организация:	Институт общей физики им. А. М. Про- хорова РАН, Москва

Защита состоится <u>10</u> декабря 2020 г. в <u>14</u> часов на заседании диссертационного совета Д 002.069.03 при Институте физики микроструктур РАН – филиале Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук» (603087, Нижегородская обл., Кстовский р-н, д. Афонино, ул. Академическая, д. 7, ауд. 237).

 ${\rm C}$ диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики микроструктур РАН и на сайте

 $http://ipmras.ru/UserFiles/Diss/2020_PutilovAV/Diss_PutilovAV.pdf.$

Автореферат диссертации разослан ___ ноября 2020 г.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 002.069.03, доктор физико-математических наук, профессор РАН Д. Ю. Водолазов

Общая характеристика работы

Актуальность и степень разработанности темы исследования

При разработке устройств современной микроэлектроники ученые стремятся к уменьшению размеров логических элементов, элементов памяти и соединяющих их проводников. Это позволяет располагать элементы с большей плотностью и уменьшать емкость элементов, что увеличивает быстродействие устройств и снижает их энергопотребление. Однако существуют естественные ограничения на размеры элементов, связанные с проявлением квантовых эффектов. Они не проявляются на макроуровне, но возникают и становящихся важными при уменьшении размеров до нанометрового масштаба [1]. В первую очередь уменьшение размеров приводит квантованию энергетического спектра и изменению плотности состояний при низких температурах. Такие пространственные неоднородности, связанные с геометрическими параметрами системы, проявляются в транспортных свойствах (например, при исследовании кондактанса мезоскопических структур), в оптических свойствах низкоразмерных структур. Если характерные геометрические размеры системы много больше длины свободного пробега электронов, роль слабых дефектов можно описывать поправками к интегральным характеристикам (проводимости, теплопроводности и др.). В мезоскопических системах, размеры которых сравнимы с диффузионной длиной, усреднение по дефектам становится невозможным. Для исследования влияния дефектов на электронные свойства наносистем наиболее важными становятся локальные методы, пространственное разрешение которых сравнимо с размерами дефектов или как минимум с характерным расстоянием между соседними дефектами. Среди зондовых методов одним из наиболее удобных для исследования локальных электронных свойств является сканирующая туннельная микроскопия и спектроскопия (СТМ и СТС). Эти методики позволяет одновременно исследовать и рельеф поверхности (измеряя тем самым геометрические параметры исследуемой структуры), и извлекать локальную плотность состояний из вольт-амперной характеристики туннельного контакта. Эти методы успешно применяются в значительном числе исследований поверхностей полупроводников, металлов и сверхпроводников [2]. С помощью СТМ и СТС успешно исследуют форму поверхности и особенности роста структур, процессы адсорбции и десорбции, а также ряд электронных свойств с высоким пространственным разрешением вплоть до атомарного. В частности, техника СТМ и СТС позволяет измерять локальную работу выхода, исследовать локализованные на дефектах энергетические уровни, исследовать локальную величину полупроводниковой щели, а в сверхпроводящих образцах — исследовать пространственное распределение сверхпроводящей щели и структуру вихревых решеток.

Начальная стадия роста металлических структур на полупроводниковых подложках с туннельно-прозрачными интерфейсами имеет важное значение

для создания многослойных структур и с прикладной, и с фундаментальной точки зрения. В зависимости от условий напыления, материала подложки и напыляемого вещества возможно формирование атомарно гладкого интерфейса, взаимная диффузия напыляемого вещества и материала подложки, либо протекание между ними химической реакции. Понимание зависимости параметров формирующегося интерфейса от условий роста имеет большое значения для развития электроники. В диссертации рассматривается вопрос о начальной стадии роста нийобийсодержащих структур на поверхности Si(111) 7 × 7. Интерес к такой системе связан с возможностью формирования тонкой сверхпроводящей Nb пленки с контролируемыми параметрами, а также возможность формирования сверхпроводящих силицидов ниобия, критическая температура которых может достигать 13 К [3]. В диссертации рассмотрена начальная стадия роста Nb на поверхности Si(111) 7 × 7, характеризация и исследование формируемых квазиодномерных и квазидвумерных структур методами CTM и CTC.

Исторически одними из первых наблюдений явления размерного квантования в тонкопленочных металлических структурах было наблюдение интерференционных эффектов при отражении низкоэнергетичных электронов от тонкой золотой пленки [4]. Впоследствии квантовые размерные эффекты многократно исследовались различными методами, которые, как правило, демонстрировали обратно пропорциональную зависимость характерного межуровневого расстояния в дискретном спектре от толщины структуры [5]. В данной диссертации рассматривается еще одна известная система для исследования квантовых размерных эффектов — это тонкие Pb пленки и островки на поверхности Si(111) 7 × 7. Оригинальным результатом работы является исследование дефектов в тонких Pb пленках с помощью наблюдения уровней размерного квантования. В диссертации показано, что энергия уровней размерного квантования может быть пространственно неоднородна.

Открытие графена в 2004 году [6] показало, что двумерные кристаллы толщиной в один атомный слой могут быть стабильны, и что такие материалы могут обладать удивительными физическими свойствами благодаря электронной структуре. Одним из недостатком графена для некоторых потенциальных применений в микроэлектронике является отсутствие запрещенной зоны. Поэтому усилия различных групп ученых направлены на получение аналогов графена с ненулевой запрещенной зоной. Одним из решений является использование элементов четвертой группы с большим атомным номером, более сильным спин–орбитальным взаимодействием и, соответственно, большей шириной запрещенной зоны. Такие материалы — силицен, германен и станен, представляющие собой атомарный слой кремния, германия или олова, соответственно. В настоящее время синтез силицена был успешно изучен с использованием метода молекулярно-лучевой эпитаксии на поверхности Ag(111). Было выявлено существование различных поверхностных фаз силицена на поверхности серебра [7]. В ряде работ исследовались возможности создания германена на поверхностях Pt(111), Al(111), Au(111) [8]. Станен успешно синтезирован на поверхности топологического изолятора Bi_2Te_3 , Sb(111) и Ag(111). В диссертации представлены оригинальные результаты по синтезу германена на поверхности Au(111). Показано, что вместо формирования монослоя происходит взаимная диффузия атомов Au и Ge.

Известно, что неоднородности материальных параметров, граничных условий и магнитного поля обуславливают формирование пространственнонеоднородных состояний в сверхпроводнике. Это может быть граница с нормальным металлом и возникающий при этом эффект близости [9], плоскость двойникования [10], пространственно-неоднородное магнитное поле, созданное доменами в ферромагнитной подложке [11] или просто однородное магнитное поле, которое формирует в сверхпроводнике вихревую структуру [12]. Еще одним примером пространственно-неоднородной сверхпроводимости являются поверхностные сверхпроводящие состояния в магнитном поле $H_{c2} < H < H_{c3}$. Они были открыты в 1963 году [13] и хорошо исследованы теоретически [14] и экспериментально [15] для массивных сверхпроводников. Однако транспортные и индуктивные измерения не позволяют напрямую визуализировать поверхностные сверхпроводящие состояния в отличие от низкотемпературной СТС [16]. В диссертации выполнено численное моделирование отклика сверхпроводящего мезоскопического мостика, находящегося в резистивном состоянии, на локальный разогрев фокусированным лазерным лучом. Эти результаты позволили интерпретировать результаты эксперимента по визуализации неоднородных сверхпроводящих состояний методом сканирующей лазерной микроскопии.

Традиционно считалось, что магнетизм и магнитные элементы (в частности, Fe) является несовместимым со сверхпроводимостью. Тем не менее, открытие в 2008 году сверхпроводимости в LaFeAsO [17] с $T_c = 26$ К при допировании фтором было неожиданным и многообещающим по целому ряду причин. Во-первых, открытие повлекло за собой очень быстрое появление ряда Fe-содержащих сверхпроводников с существенно большей критической температурой. Это привело к появлению нового класса сверхпроводников на основе решетки вида FeX, где X — элемент V группы (P, As) или VI группы (S, Se, Te). Во-вторых, в Fe–содержащих сверхпроводниках механизм спаривания может быть связан с существованием магнетизма на фазовой диаграмме. Считается, что основную роль играют не фононы, как в низкотемпературных сверхпроводниках, а различные электронные возбуждения, например, спиновые флуктуации. Сверхпроводимость Fe-содержащих соединений существенно отличается и от низкотемпературной, и от высокотемпературной сверхпроводимости. В диссертации экспериментально исследуется структура кора вихря и вихревой решетки в монокристаллах FeSe в магнитном поле, а также неоднородные сверхпроводящие состояния вблизи одномерного дефекта.

Цели диссертационного исследования

Настоящая диссертация посвящена исследованию пространственно– неоднородных электронных состояний в нормальных металлах и сверхпроводящих структурах. Для этого были решены следующие задачи.

 Исследовать квантовые размерные эффекты в тонких Pb пленках и островках в окрестности структурных дефектов. Определить влияние дефектов на энергию уровней размерного квантования.

– Исследовать начальную стадию роста Nb наноструктур на поверхности Si(111) 7 \times 7. Определить условия формирования кристаллических и аморфных Nb–содержащих структур. Определить тип туннельной проводимости формируемых структур.

– Исследовать возможность создания монослоя Ge на поверхности Au(111) при термическом осаждении в условиях сверхвысокого вакуума.

– Исследовать особенности вихревой решетки в монокристаллах FeSe. Определить, как изменяется симметрия вихревой решетки и структура сердцевины вихря при повышении магнитного поля.

– Исследовать плотность состояний в FeSe в сверхпроводящем состоянии в окрестности протяженного дефекта.

 – Для интерпретации наблюдаемых в эксперименте особенностей отклика сверхпроводящего микромостика на локальное лазерное воздействие выполнить численное моделирование мезоскопических сверхпроводящих структур.

Научная новизна

Все основные результаты, представленные в данной работе, являются новыми и теоретически значимыми. Научная новизна определяется оригинальностью поставленных задач и заключается в следующих результатах.

– Обнаружены крупномасштабные неоднородности дифференциальной туннельной проводимости на заданной энергии в режиме постоянного тока для пленок свинца. Показано, что неоднородность связана со смещением уровней размерного квантования. Предложена модель, позволяющая описывать обнаруженную неоднородность зависимостью энергии дна зоны проводимости от латеральных координат.

– Получены квазиодномерные и двумерные ниобий–содержащие островки, а также объемные островки с огранкой методом термического осаждения ниобия на поверхность Si(111) 7×7 в условиях сверхвысокого вакуума и исследованы их электронные свойства *in-situ* с помощью CTM/CTC. Показано, что Nb при осаждении на нагретую до температуры 450 °C подложку Si(111) 7×7 не образует смачивающего слоя.

– Исследована начальная стадия осаждения Ge на поверхность Au(111) в процессе термического напыления в сверхвысоком вакууме. Показано, что в результате адсорбции Ge на поверхности Au(111) даже при комнатной температуре происходит замещение атомов Au атомами Ge в нескольких припо-

верхностных слоях.

– Исследована анизотропия кора вихрей в FeSe методом низкотемпературной CTM/CTC. Показано, что анизотропия кора вихря (отношение размера кора в двух перпендикулярных направлениях высокой симметрии) растет с повышением внешнего магнитного поля.

– Исследован кроссовер и переход вихревой решетки из треугольной в квадратную в монокристаллах FeSe методом низкотемпературной CTM/CTC.

– Обнаружено расщепление пиков когерентности в монокристаллах FeSe вблизи протяженного дефекта.

– В рамках нестационарной теории Гинзбурга–Ландау выполнено численно моделирование отклика мезоскопического сверхпроводника в резистивном состоянии на локальный нагрев. Полученные результаты позволяют интерпретировать наблюдаемые в эксперименте особенности отклика сверхпроводящего микромостика на локальное лазерное воздействие.

Теоретическая и практическая значимость работы

Теоретическая значимость работы связана с тем, что полученные в работе экспериментальные результаты вносят существенный вклад в понимание структуры смешанного состояния в монокристаллах FeSe.

Практическая ценность работы в основном заключается в следующем:

Развитии методов формирования тонкопленочных наноструктур на основе Ge, Nb, Pb в условиях сверхвысокого вакуума.

— Развитие методов диагностики уровней размерного квантования и скрытых дефектов в тонких Pb пленках и островках с помощью CTC на основе изучения карт дифференциальной проводимости при фиксированном напряжении на туннельном зазоре игла-образец в режиме заданного туннельного тока.

 Развитие методов определения размеров сердцевины вихря и параметров вихревой решетки, исследование их зависимости от приложенного магнитного поля.

Методология и методы исследования

В работе использовалась стационарная теория Гинзбурга–Ландау (ГЛ) для описания равновесных сверхпроводящих свойств, поверхностной сверхпроводимости и вихревой решетки в многозонных сверхпроводниках II рода. Использовалась нестационарная теория ГЛ для исследования транспортных свойств наноструктурированных сверхпроводников в однородном магнитном поле в резистивном состоянии.

Основными экспериментальными методами исследования были низкотемпературная сканирующая туннельная микроскопия в режиме удержания постоянного туннельного тока и сканирующая туннельная спектроскопия в режиме заданной высоты. В спектроскопических измерениях применялась методика синхронного детектирования. Для характеризации качества исследуемых структур использовались дифракция быстрых электронов. Для подготовки образцов, изготовленных *ex-situ* использовались скол в высоком вакууме и травление ионами аргона Ar⁺ и термический отжиг.

Для обработки и интерпретации экспериментальных данных использовались статистические методы анализа, аппроксимация методом наименьших квадратов, преобразование Фурье, триангуляция Делоне. Для обработки СТМ изображений и результатов спектроскопии использовались программы Gwyddion, WSxM, XPMPro, а также оригинальные скрипты, написанные для среды Python и MatLab.

Основные положения, выносимые на защиту

[1] Для достаточно толстых Pb(111) пленок (толщиной не менее 60 монослоев) обнаружен плавный систематический сдвиг уровней размерного квантования на величину порядка 50 мэВ на пространственных масштабах порядка 100 нм, который связан с наличием внутренних напряжений вблизи дефектов кристаллической структуры в таких пленках.

[2] В монокристаллах FeSe сердцевина вихрей имеет эллиптическую форму, при этом анизотропия сердцевины вихря (отношение большой и малой полуосей эллипса) зависит от внешнего магнитного поля H, ориентированного перпендикулярно плоскости слоев, и растет с его увеличением от 1.5 ± 0.1 для H = 1 Tл до 2.2 ± 0.1 для H = 7 Tл.

[3] В монокристаллах FeSe в сверхпроводящем состоянии во внешнем магнитном поле возникает вихревая структура, которая при $H \leq 1$ Tл является гексагональной, а при повышении магнитного поля искажается и переходит в решетку, близкую к квадратной. Анизотропия вихревой решетки не совпадает с анизотропией кора вихря в диапазоне магнитных полей $0 \leq H \leq 7$ Tл.

[4] Падение напряжения ΔV , индуцированное в сверхпроводящих микромостиках фокусированным лазерным лучом при $H_{c2} < H < H_{c3}$, имеет выраженные максимумы вблизи краев микромостика, при этом ширина максимумов определяется диаметром лазерного луча. Этот факт позволяет интерпретировать результаты экспериментов по сканирующей лазерной микроскопии в сильных магнитных полях как доказательство существования поверхностной (прикраевой) сверхпроводимости.

[5] При термическом напылении Nb на реконструированную поверхность Si(111) 7×7 формируются одномерные и двумерные Nb-содержащие островки с латеральным размером до 200 нм без формирования смачивающего слоя. Квазидвумерные островки обладают кристаллической структурой и демонстрируют несколько характерных типов поверхностной реконструкции. Эти структуры обладают металлическим типом туннельной проводимости при азотных температурах и полупроводниковым типом при гелиевых температурах.

[6] Адсорбция атомов Ge на поверхности Au(111) при комнатной температуре приводит к росту бинарного слоя, состоящего из перемешанных атомов Au и Ge. Отжиг бинарного слоя до температуры $T_s \sim 500$ K, равно как и адсорбция Ge на поверхности Au(111), находящейся при температуре $T_s \sim 500$ K, приводят к одинаковому структурному переходу и образованию сплава Au–Ge как минимум в двух приповерхностных слоях. Этот процесс делает невозможным формирование монослоя Ge на поверхности Au(111).

Личный вклад диссертанта

Работы по росту тонких свинцовых пленок и островков выполнялись совместно с А. Ю. Аладышкиным и С. С. Уставщиковым. Измерения крупномасштабных неоднородностей туннельной проводимости свинцовых пленок, обработка и интерпретация полученных экспериментальных данных выполнены диссертантом совместно с А. Ю. Аладышкиным. Термическое напыление Nb островков, анализ кристаллической структуры и туннельной проводимости этих островков выполнены лично. Рост Ge/Au структур и анализ образующегося бинарного соединения выполнен совместно с Д. А. Музыченко и А. Ю. Аладышкиным. Синтез монокристаллов FeSe выполнено Д. Чареевым, О. С. Волковой, А. Н. Васильевым. Измерения в сканирующем туннельном микроскопе Unisoku выполнено совместно с S. Moore, C. di Giorgio, D. Trainer под руководством М. Iavarone. Обработка и анализ полученных экспериментальных данных выполнен при частичном участии J. Curtis и А. Ю. Аладышкина. Численное моделирование вихревой решетки в сверхпроводнике в рамках двухзонной модели ГЛ выполнено В. Л. Вадимовым и А. С. Мельниковым. Nb мостики изготовлены M. Kemmler, D. Bothner, A. Loerincz и K. Ilin. Транспортные измерения и сканирующая лазерная микроскопия выполнена R. Werner. Численное моделирование транспортных характеристик микромостиков в рамках модели ГЛ выполнено диссертантом с использованием программы GLDD, которая создана В. В. Куриным, И. А. Шерешевским, И. М. Нефедовым, А. Ю. Аладышкиным и Д. А. Рыжовым.

Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность полученных результатов обеспечивается оптимальным выбором апробированных и хорошо известных методов измерения, методов обработки экспериментальных данных и теоретических моделей. Полученные экспериментальные данные согласуются с результатами других исследовательских групп, полученных для таких же или аналогичных структур. Основные результаты работы согласуются с существующими теоретическими моделями. Работа была выполнена в ИФМ РАН (Н. Новгород) в 2010–2020 годах, представленные результаты неоднократно обсуждались на семинарах ИФМ РАН по физике твердого тела, в НГТУ им. Алексеева и в университете Temple (Филадельфия). Результаты диссертации были представлены на ряде российских и международных конференций в 2012-2019 годах. В частности, на международном симпозиуме «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 2012, 2014–2020 годы), ежегодной конференции американского физического общества APS March Meeting (Новый Орлеан, 2017), XIX Нижегородской сессии молодых ученых (Арзамас, 2014), III международной школе по физике поверхности «Technologies and Measurements on Atomic Scale» (Сочи, 2014), XVIII всероссийской конференции «Проблемы физики твердого тела и высоких давлений» (Сочи, 2019), на международной конференции «Сканирующая зондовая микроскопия» (Екатеринбург, 2017), а также на Всероссийской конференции «Особенности применения сканирующей зондовой микроскопии в вакууме и различных средах» (Черноголовка, 2019).

Объём и структура диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, трех глав, заключения, списка цитируемой литературы (190 работ) и списка работ автора по теме диссертации (7 публикаций автора в реферируемых научных журналах и 16 публикаций в трудах и тезисах конференций) по теме диссертации. Общий объём диссертации составляет 121 страниц и включает 48 рисунков и 2 таблицы.

Основное содержание работы

Первая глава посвящена экспериментальным исследованиям морфологических и электронных свойств Pb, Nb и Ge наноструктур, сформированных на атомарно–гладких подложках Si(111) 7 × 7 и Au(111) 22 × $\sqrt{3}$ методом термического осаждения. Основным методом исследования является сканирующая туннельная микроскопия и спектроскопия.



Рис. 1: (а) Топографическое изображение Pb островка $(230 \times 230 \text{ нм}^2, V = 900 \text{ мB}, I = 400 \text{ пA})$. (б) Разность локальной проводимости dI/dV(x, y, V) и нерезонансного фона как функция напряжения на туннельном контакте V и координаты y вдоль линии I–II. (в) Оценка плавно–неоднородного потенциала $V_0(x, y)$.

Раздел 1.1 является вспомогательным. В нем обсуждаются особенности метода сканирующей туннельной микроскопии и спектроскопии, а также особенности и характеристики используемого оборудования.

В разделе 1.2 исследуется пространственная зависимость дифференциальной проводимости ультратонких Pb пленок, осажденных на поверхность Si(111) 7×7 . Для Pb пленок характерно наличие квантово-размерных состояний электронов проводимости и, соответственно, максимумов дифференциальной туннельной проводимости dI/dV, при этом их энергия определяется в основном локальной толщиной Pb слоя. Обнаружено, что величина туннельной проводимости в пределах атомарно-гладких террас может быть пространственно неоднородна, при этом период мелкомасштабной модуляции совпадает с периодом реконструкции Si(111) 7×7. Для достаточно толстых Pb пленок обнаружена крупномасштабная неоднородность туннельной проводимости, расположенная вблизи границы островка толщиной порядка 60 монослоев. Топографическое изображение участка островка размером 230×230 нм² изображена на рис. 1а. Для получения более полной информации была выполнена grid-спектроскопия, заключающаяся в проведении серии измерений дифференциальной проводимости dI/dV с помощью синхронного усилителя на сетке 32 × 32 точек. Обнаружено плавное смещение уровней размерного квантования к более высоким энергиям при движении вдоль оси у. Зависимость положения максимумов dI/dV от координаты y изображено на рис. 16. Для анализа электронных свойств в каждой точке поверхности был выбран один из пиков дифференциальной проводимости, напряжение которого $V_{p}(x,y)$ будем описывать формулой $V_{p}(x,y) = V_{0}(x,y) + V_{n}$, где V_{n} – положения пиков вдали от области крупномасштабной неоднородности. Был найден плавно неоднородный потенциал V₀(x, y) (рис. 1в), вычитание которого устраняет плавную неоднородность положения пиков. Возможной причиной возникновения потенциала могут служить образующиеся при росте структур внутренние напряжения тонких Pb плёнок, вызванные дефектами структуры, в частности, близостью к краю островка.

В разделе 1.3 исследована начальная стадия процесса роста островковых наноструктур в ходе термического осаждения ниобия на реконструированную поверхность Si(111) 7 × 7. При напылении ниобия на нагретую до температуры $T \approx 550^{\circ}$ С подложку формируются квазиодномерные и квазидвумерные структуры (с типичными латеральными размерами до 200 нм), а также трехмерные пирамидальные островки (рис. 2a), при этом между образующимися островками сохраняется поверхность Si(111) 7 × 7 без формирования смачивающего слоя. Возникающие на поверхности кремния квазиодномерные островки и преимущественной ориентации относительно подложки. Островки I типа имеют плоскую вершину, плоскость которой параллельна плоскости подложки, а островки II типа в поперечном сечении имеют остроконечную вершину. Формирующиеся квазидвумерные островки обладают периодической атомной структурой поверхности (рис. 26), что свидетельствует в пользу их монокри-



Рис. 2: (а) СТМ изображение поверхности образца после осаждения ниобия со скоростью 0.01 нм/мин в течение 40 минут на нагретую подложку $T \approx 550^{\circ}$ С (T = 5 K, V = +2.00 B, I = 20 пА, 460×310 нм²). Стрелками указаны направления роста квазиодномерных островков I и II типов, отмечены некоторые квазидвумерные (2D) и трехмерные (3D) островки. (6) СТМ изображение участка поверхности с расположенным на ней 2D островком. (29×29 нм², V = +2.00 B, I = 200 пА. (в) СТМ изображение поверхности образца после осаждения ниобия со скоростью 0.01 нм/мин в течение 24 мин на подложку при комнатной температуре (100×100 нм², V = -2.0 B, I = 200 пА).

сталличности. Элементарная ячейка имеет прямоугольную форму в отличие от ромбической элементарной ячейки поверхности Si(111) 7 × 7. Обнаружено, что при низких температурах туннельная проводимость квазидвумерного островка, так же как и проводимость поверхности Si(111) 7×7, в диапазоне напряжений от -0.4 до +0.5 В практически исчезает, что указывает на полупроводниковый характер туннельной проводимости Nb–содержащих островков (соединений Nb и Si). При напылении на подложку при комнатной температуре ниобий образует слой, состоящий из мелких кластеров с характерными размерами до 10 нм (рис. 2в). Этот слой демонстрируют металлических характер туннельной проводимости T = 5 K.

В разделе 1.4 представлены результаты исследования начальной стадии адсорбции Ge на поверхности Au(111). Установлено, что адсорбция единичных атомов Ge на поверхности Au(111) при комнатной температуре приводит к замещению атомов Au атомами Ge в первом поверхностном слое (рис. 3a), что при дальнейшем увеличении степени покрытия до 0.2–0.4 монослоя приводит к последовательному росту аморфоподобного бинарного слоя, состоящего из перемешанных атомов Au и Ge (рис. 3б). Несмотря на отсутствие дальнего порядка в локальной структуре бинарного слоя, его высота его строго детерминирована и составляет 0.23 ± 0.02 нм, что соответствует высоте моноатомной ступени золота для плоскости (111) (рис. 3в). Показано, что отжиг бинарного слоя до температуры 500 K, равно как и адсорбция Ge на поверхности Au(111), находящейся при температуре 500 K, при степенях покрытия вплоть до 1 монослоя приводят к одинаковому структурному переходу и образованию сплава Au–Ge как минимум в двух приповерхностных слоях.



Рис. 3: (а) Топографическое изображение поверхности Au(111) размером $72 \times 72 \text{ нм}^2$ после напыления 0.08 монослоя германия. (б) Топографическое изображение участка поверхности после нанесения 0.4 монослоя германия при комнатной температуре ($105 \times 50 \text{ нм}^2$, V = +1.0 B, I = 30 пA). (в) Сечение изображения (б) вдоль белой пунктриной линии. Указана толщина монослоя d, совпадающая с толщиной монослоя Au(111).

основании полученных данных сделан вывод о невозможности формирования однослойного германена на поверхности Au(111) при степенях покрытия менее одного монослоя и в диапазоне температур от комнатной до 200°С.

Глава 2 посвящена экспериментальному исследованию пространственнонеоднородных сверхпроводящих состояний в монокристаллах FeSe.

Раздел 2.1 содержит обзорную информацию об основных свойствах сверхпроводников, включая основные понятия теории Гинзбурга–Ландау, которая применяется к описанию вихревой решетки в сверхпроводниках II рода. В разделе 2.2 описывается кристаллическая и зонная структура железосодержащего сверхпроводника FeSe, а также проведен анализ литературы по теоретическому описанию и экспериментальному исследованию FeSe.



Рис. 4: Двумерные карты дифференциальной проводимости для кристалла FeSe при V = 0 мВ, нормированные на проводимость при V = -10 мВ для нескольких величин внешнего магнитного поля (а) 1 Тл, (б) 3 Тл, (в) 6 Тл. Измерения выполнены при T = 1.5 K, размер сканируемой области 156×156 нм².

В разделе 2.3 методами сканирующей туннельной микроскопии и спектроскопии исследованы особенности структуры вихревой решетки и коров вихрей в монокристаллах FeSe во внешнем магнитном поле H. Для визуализации и анализа вихревой решетки использовались карты дифференциальной проводимости dI/dV при нулевом напряжении V = 0 (рис. 4), полученные в режиме замороженного поля (field cooled). Для определения характерного размера кора вихря вдоль взаимно–перпендикулярных направлений высокой симметрии кристалла **a** и **b** дифференциальная проводимость вблизи кора была аппроксимирована формулой

$$G(x,y) = G_{\infty} + A \sum_{i} \exp\left(-\sqrt{\frac{(x-x_{i})^{2}}{\xi_{Long}^{2}} + \frac{(y-y_{i})^{2}}{\xi_{Short}^{2}}}\right).$$

Здесь G_{∞} — фоновый уровень проводимости, (x_i, y_i) — координаты центров вихрей, ξ_{Long} и ξ_{Short} — размеры кора вихря вдоль направлений **a** и **b**, A амплитуда модуляции, а суммирование проводится по центральному (аппроксимируемому) кору и его ближайшим соседям. Обнаружено, что с повышением магнитного поля размеры ко́ров вихрей, полученные из аппроксимации, изменяются (рис. 5а). Видно, что бо́льший размер остается неизменным, при этом ме́ньший размер уменьшается с повышением магнитного поля H. Таким образом, анизотропия кора, определяемая нами как ξ_{Long}/ξ_{Short} , повышается с повышением поля (рис. 5б).

Для анализа вихревой структуры использовалась известная в математике процедура — триангуляция Делоне. После этого проводился статистический анализ углов построенных треугольников. Обнаружено, что при низких магнитных полях наблюдается распределение с единственным максимумом, который близок к углу 60°. Это соответствует гексагональной вихревой решетке, которая и предсказана теорией Абрикосова для изотропного сверхпроводника. В высоких полях наблюдается распределение с двумя максимумами, которые соответствуют углам 45° и 80° (рис. 5в). В промежуточной области (H = 3 Тл) наблюдается одновременно три максимума, которые возникают из-за сосуществования квадратной и гексагональной вихревой решетки в разных областях в пределах области сканирования. Показано, что во всем диапазоне магнитных полей анизотропия кора вихрей не совпадает с анизотропией вихревой решетки, следовательно, наблюдаемые эффекты не могут быть описаны однозонной анизотропной теорией ГЛ. Для качественного описания поведения вихревой решетки в магнитном поле моими коллегами было выполнено моделирование в рамках двухзонной модели. Было показано, что при определенных параметрах двухзонная модель ГЛ описывает наблюдаемую в эксперименте трансформацию вихревой решетки при повышении внешнего поля.

В разделе 2.4 исследуется пространственное распределение параметра порядка вблизи одномерного дефекта в монокристалле FeSe. Вдали от дефекта, как и следовало ожидать, видна обычная для FeSe туннельная плотность состояний с двумя пиками когерентности на энергии примерно ±2.6 мэВ от-



Рис. 5: (а) Зависимость величин ξ_{Long} и ξ_{Short} от магнитного поля H в монокристаллах FeSe. (б) Зависимость анизотропии вихрей, определяемой как ξ_{Long}/ξ_{Short} , от магнитного поля. (в) Эволюция углов треугольников, полученных в результате триангуляции Делоне, как функция магнитного поля H.

носительно уровня Ферми. Вблизи дефекта каждый из пиков разделяется на два, и над ступенькой видны отчетливые четыре пика на туннельной плотности состояний. Наличие двух пар пиков когерентности можно связать с существованием двух разных по величине сверхпроводящих щелей на разных листах поверхности Ферми в многозонных сверхпроводниках.

Глава 3 посвящена теоретическому исследованию локализованной сверхпроводимости в микромостиках в резистивном состоянии. В разделе 3.1 изложена краткая теория локализованной поверхностной сверхпроводимости в рамках модели ГЛ и представлен анализ литературы по экспериментальному исследованию поверхностной сверхпроводимости.

В разделе 3.2 представлены краткое описание эксперимента по визуализации прикраевой сверхпроводимости в Nb мостиках в сильных магнитных полях с помощью фокусированного лазерного луча. Облучение образца лазерным лучом приводило к его локальному нагреву и изменению сопротивления мостика. Вызванное локальным нагревом дополнительное напряжение $\Delta V(x_0, y_0)$ измерялось как функция координат пятна (x_0, y_0) .



Рис. 6: Рассчитанный LTSLM сигнал как функция координаты поперек мостика для $T/T_c = 0.47, J_{ext} = 0.12$ для нескольких значений H/H_{c2} . Вертикальные пунктирные линии показывают границы сверхпроводящей области.

Оригинальным результатом главы является численное моделирование в рамках нестационарной теории Гинзбурга–Ландау, позволяющая понять и интерпретировать полученные экспериментальные результаты. В разделе 3.3 описана процедура и особенности численного моделирования резистивного состояния. Несмотря на то, что размеры моделируемого сверхпроводника $(30\xi_0 \times 60\xi_0, \xi_0 - длина когерентности при температуре T = 0)$ существенно меньше латеральных размеров мостиков, на которых проводился эксперимент [A7], моделирование качественно воспроизводит те же физические механизмы и процессы, которые происходят в реальных образцах. При моделировании распределение температуры в плоскости мостика описывалось формулой

$$T(x,y) = T + \Delta T \exp\left(-\frac{(x-x_0)^2 + (y-y_0)^2}{2\sigma^2}\right),\,$$

где (x_0, y_0) — координаты центра локального разогрева, $\Delta T = 0.5$ K, σ определяет размер области горячего пятна. Вычислялось среднее напряжение на мостике без локального разогрева $\langle V_{off} \rangle$ и с локальным разогревом $\langle V_{on} \rangle$, после чего строилась зависимость $\Delta V(y_0) = \langle V_{on} \rangle - \langle V_{off} \rangle$ при фиксированном питающем токе $J_{ext} = 0.12$ и используемых безразмерных единицах. Было обнаружено, что $H < H_{c2}$ при данной температуре мостик находился в сверхпроводящем состоянии, и локальный разогрев не приводил к возникновению конечного напряжения (рис. 6), Н — внешнее магнитное поле. При $H_{c2} < H < H_{c3}$ возникает наблюдается повышение среднего напряжения ΔV как результат локального разогрева, при этом функция ΔV в зависимости от поперечной координаты у имеет максимумы вблизи границ сверхпроводника ($y_0 = \pm 15\xi_0$). Наблюдаемый сигнал $\Delta V(y)$ асимметричен: в выбранной геометрии максимальное значение ΔV с левого края образца меньше, чем с правого края, что связано с различной величиной сверхпроводящего тока в левом и правом прикраевом канале. При повышении магнитного поля наблюдается постепенное уменьшение амплитуды прикраевых максимумов ΔV , связанное с разрушением прикраевой сверхпроводимости магнитным полем. При уменьшении диаметра луча в два раза измеряемый сигнал становится более резким, и практически обращается в нуль в центральной части мостика (рис. 66). Это подтверждает, что характерный масштаб неоднородности измеряемого сигнала ΔV определяется диаметром пучка, а не длиной когерентности. Показано, что амплитуда сигнала в максимуме, когда пучок полностью перекрывает прикраевой сверхпроводящий канал по ширине, слабо зависит от σ . Численное моделирование демонстрирует качественное согласие с экспериментальными результатами.

В Заключении сформулированы основные результаты диссертации:

1. Развита методика роста тонкопленочных металлических и полупроводниковых наноструктур на методом термического осаждения в сверхвысоком вакууме. В частности, исследованы особенности формирования бинарного сплава Au-Ge при комнатной температуре и малых покрытиях. Исследованы особенности роста квазиодномерных и квазидвумерных ниобий-содержащих структур на поверхности Si(111)7×7 и их электронные свойства. Исследованы особенности роста Pb островков на поверхности Si(111) 7×7 и их электронные свойства.

2. Исследованы свойства вихревых решеток в монокристаллах FeSe в сильных магнитных полях. Обнаружен кроссовер между гексагональной решеткой вихрей и квадратной решетной вихрей при увеличении магнитного поля. Проведен статистический анализ свойств вихревых решеток с использованием преобразования Фурье и триангуляции Делоне. Предложена модель сверхпроводящего состояния на основе двухзонной теории Гинзбурга–Ландау, объясняющая основные особенности, наблюдаемые в эксперименте. Исследована зависимость анизотропии кора вихря от величины внешнего магнитного поля.

3. Методами низкотемпературной сканирующей туннельной спектроскопии исследована пространственная зависимость дифференциальной проводимости тонких Pb пленок, осажденных на поверхность Si(111) 7 × 7. Обнаружено, что величина туннельной проводимости в пределах атомарно-гладких террас может быть пространственно неоднородна, при этом период мелкомасштабной модуляции совпадает с периодом реконструкции Si(111) 7 × 7. Обнаружены крупномасштабные неоднородности туннельной проводимости на фиксированной энергии. Показано, что в таких случаях уровни размерного квантования смещаются на величину порядка 50 мВ на расстоянии 100 нм. Это может быть связано с наличием внутренних напряжений в кристаллической структуре, приводящее к смещению дна зоны проводимости и, соответственно, всего спектра.

4. Для объяснения наблюдаемой в эксперименте асимметрии отклика сверхпроводящего микромостика в резистивном состоянии на локальное лазерное воздействие проведено численное моделирование в рамках нестационарной теории Гинзбурга–Ландау. Показано, что генерируемое дополнительное напряжение максимально вблизи краев мостика, что связано с разрушением прикраевой сверхпроводимости. Обнаружено, что величина максимумов у противоположных границ мостика различна, при этом бо́льший максимум соответствует бо́льшей величине сверхпроводящего прикраевого тока.

Список публикаций автора по теме диссертации

- [A1] Уставщиков, С. С. Туннельная интерферометрия и измерение толщины ультратонких металлических пленок Pb(111) / С. С. Уставщиков, А. В. Путилов, А. Ю. Аладышкин // Письма в ЖЭТФ. — 2017. — Т. 106, № 8. — С. 476—482.
- [A2] Путилов, А. В. Пространственно-неоднородные квантово-размерные состояния и визуализация скрытых дефектов в пленках Pb(111) / А. В. Путилов, С. С. Уставщиков, С. И. Божко, А. Ю. Аладышкин // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 109, № 11. С. 789—796.
- [А3] Путилов, А. В. Особенности начальной стадии роста ниобийсодержащих на-

ноструктур на поверхности Si(111) 7 × 7 / А. В. Путилов, Д. А. Музыченко, А. Ю. Аладышкин // Поверхность. — 2016. — Т. 2016, № 3. — С. 1–10.

- [А4] Музыченко, Д. А. Особенности роста поверхностных структур, вызванных адсорбцией Ge на поверхности Au(111) / Д. А. Музыченко, А. И. Орешкин, С. И. Орешкин, С. С. Уставщиков, А. В. Путилов, А. Ю. Аладышкин // Письма в ЖЭТФ. 2017. Т. 106, № 4. С. 201–207.
- [A5] Putilov, A. V. Vortex-core properties and vortex-lattice transformation in FeSe / A. V. Putilov, C. Di Giorgio, V. L. Vadimov, D. J. Trainer, E. M. Lechner, J. L. Curtis, M. Abdel-Hafiez, O. S. Volkova, A. N. Vasiliev, D. A. Chareev, G. Karapetrov, A. E. Koshelev, A. Y. Aladyshkin, A. S. Mel'nikov, M. Iavarone // Phys. Rev. B. - 2019. - Vol. 99, no. 14. - P. 144514.
- [A6] di Giorgio, C. Anisotropic Superconducting Gaps and Boson Mode in FeSe_{1-x}S_x Single Crystals / C. di Giorgio, A. V. Putilov, D. J. Trainer, O. S. Volkova, A. N. Vasiliev, D. Chareev, G. Karapetrov, J. F. Zasadzinski, M. Iavarone // J. Supercond. Nov. Magn. - 2017. - Vol. 30, no. 3. - P. 763-768.
- [A7] Werner, R. Edge superconductivity in Nb thin film microbridges revealed by electric transport measurements and visualized by scanning laser microscopy / R. Werner, A. Y. Aladyshkin, I. M. Nefedov, A. V. Putilov, M. Kemmler, D. Bothner, A. Loerincz, K. Ilin, M. Siegel, R. Kleiner, D. Koelle // Supercond. Sci. Technol. 2013. Vol. 26, no. 9. P. 095011.

Список цитируемой литературы

- Ferry, D. Transport in Nanostructures / D. Ferry, S. M. Goodnick // Cambridge : Cambridge University Press, 1997.
- [2] Stroscio, J. A. Scanning Tunneling Microscopy / J. A. Stroscio, W. J. Kaiser // Academic Press, Inc. – Vol. 27. – 1993.
- [3] Feldman, R. D. The effects of oxygen on superconducting A15 NbSi / R. D. Feldman, R. H. Hammond // J. Appl. Phys. 1981. Vol. 52, no. 3. P. 1427.
- [4] Thomas, R. E. Interference Effects in the Reflection of LowEnergy Electrons from Thin Films of Au on Ir / R. E. Thomas // J. Appl. Phys. – 1970. – Vol. 41. – P. 5330.
- [5] Jaklevic, R. C. Observation of Electron Standing Waves in a Crystalline Box / R. C. Jaklevic, J. Lambe, M. Mikkor, W. C. Vassell // Phys. Rev. Lett. - 1971. -Vol. 26, no. 2. - P. 88.
- [6] Novoselov, K. S. Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films / K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. Dubonos, I. Grigorieva, A. Firsov // Science. 2004. Vol. 306, no. 5696. P. 666.
- [7] Vogt, P. Silicene: Compelling Experimental Evidence for Graphenelike Two-Dimensional Silicon / P. Vogt, P. De Padova, C. Quaresima, J. Avila, E. Frantzeskakis, M. C. Asensio, A. Resta, B. Ealet, G. Le Lay // Phys. Rev. Lett. - 2012. - Vol. 108, no. 15. - P. 155501.

- [8] Dávila, M. E. Germanene: a novel two-dimensional germanium allotrope akin to graphene and silicene / M. E. Dávila, L. Xian, S. Cahangirov, A. Rubio, G. L. Lay // New J. Phys. - 2014. - Vol. 16, no. 9. - P. 095002.
- [9] Шмидт, В. В. Введение в физику сверхпроводников / В. В. Шмидт // МЦНМО — 2000.
- [10] Хлюстиков, И. Н. Локализованная сверхпроводимость в двойниковых металлических кристаллах / И. Н. Хлюстиков, А. И. Буздин // Успехи физических наук. — 1988. — т. 155, № 5. — с. 47.
- [11] Aladyshkin, A. Yu. Crossover between different regimes of inhomogeneous superconductivity in planar superconductor–ferromagnet hybrids / A. Y. Aladyshkin, J. Fritzsche, R. Werner, R. B. G. Kramer, S. Guenon, R. Kleiner, D. Koelle, V. V. Moshchalkov // Phys. Rev. B. - 2011. - Vol. 84, no. 9. - P. 094523.
- [12] Hess, H. F. Scanning-Tunneling-Microscope Observation of the Abrikosov Flux Lattice and the Density of States near and inside a Fluxoid / H. F. Hess, R. B. Robinson, R. C. Dynes, J. M. Valles, J. V. Waszczak // Phys. Rev. Lett. - 1989. - Vol. 62, no. 2. - P. 214.
- [13] Saint-James, D. Onset of superconductivity in decreasing elds / D. Saint-James, P. G. Gennes // Phys. Lett. - 1963. - Vol. 7, no. 5. - P. 306.
- [14] Park, J. G. Asymmetry in the Critical Surface Current of Type-2 Superconductors / J. G. Park // Phys. Rev. Lett. - 1965. - Vol. 15, no. 8. -P. 352.
- [15] Hempstead, C. F. Transitions and Surface effects in Type-II Superconductors / C. F. Hempstead, Y. B. Kim // Phys. Rev. Lett. - 1964. - Vol. 12, no. 6. - P. 145.
- [16] Ning, Y. X. Observation of surface superconductivity and direct vortex imaging of a Pb thin island with a scanning tunneling microscope / Y. X. Ning, C. L. Song, Z. L. Guan, X. C. Ma, X. Chen, J. F. Jia, Q. K. Xue // Europhys. Lett. - 2009. - Vol. 85, no. 2. - P. 27004.
- [17] Kamihara, Y. Iron–Based Layered Superconductor La[O_{1-x}F_x]FeAs (x = 0.05 0.12) with $T_c = 26$ K / Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, H. Hosono // J. Amer. Chem. Soc. -2008. Vol. 130, no. 11. P. 3296.

Путилов Алексей Владимирович

Исследование пространственно-неоднородных электронных состояний методами низкотемпературной сканирующей зондовой микроскопии и спектроскопии

Автореферат диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Подписано к печати 8 октября 2020 г. Тираж 100 экз.

Отпечатано на ризографе Института физики микроструктур РАН, 603950, Нижний Новгород, ГСП–105