

ЭЛЕКТРОННЫЕ СТРУКТУРА И СВОЙСТВА

PACS numbers: 07.81.+a, 07.85.Qe, 29.30.Dn, 71.10.Pm, 73.20.-r, 79.60.Bm, 79.60.Dp

Виявлення початку формування двовимірного електронного газу на поверхні топологічного ізолятора

М. Л. Прокопович, Є. С. Кушніренко

*Інститут металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Акад. Вернадського, 36,
03680, ГСП, Київ, Україна*

Розвинуто методу попіксельного зіставлення інтенсивності фотоемісійних спектрів з кутовим розрізненням та зареєстровано з його допомогою початок формування двовимірного електронного газу на поверхні топологічного ізолятора. Також розроблена метода уможливилює оцінити ступінь нелінійності фотоелектронного детектора безпосередньо з експериментальних даних, що створює необхідні умови для аналізу форми ліній фотоемісійних спектрів.

Развит метод попиксельного сопоставления интенсивности фотоэмиссионных спектров с угловым разрешением и с его помощью зарегистрировано начало формирования двумерного электронного газа на поверхности топологического изолятора. Также разработанный метод позволяет оценить степень нелинейности фотоэлектронного детектора непосредственно из экспериментальных данных, что создаёт необходимые условия для анализа формы линий фотоэмиссионных спектров.

A method of pixel-by-pixel intensity comparison for angle resolved photoemission spectra is developed. This method is used to detect the beginning of two-dimensional electron-gas formation on the surface of a topological insulator. In addition, the developed method allows estimating the degree of non-linearity of the photoelectron detector directly from the experimental data. It creates the necessary conditions for the analysis of shape of the line of photoemission spectra.

Ключові слова: ARPES, електронний спектр, топологічний діелектрик, двовимірний електронний газ.

(Отримано 8 липня 2014 р.)

1. ВСТУП

Фотоелектронна спектроскопія з кутовим розрізненням (ARPES) є одним з найважливіших інструментів у дослідженні електронної структури квазидвовимірних кристалів [1, 2]. Результати досліджень уможливають просунутися уперед у вивчанні нових матеріалів, наприклад, топологічних діелектриків [3, 4], забезпечують прогрес у з'ясуванні ще не поясненого явища високотемпературної надпровідності [5, 6]. Тому актуальність методи важко переоцінити.

У той же час, для правильної інтерпретації одержаних результатів необхідно усвідомлювати роль різних експериментальних чинників, таких як структурні модуляції [7, 8], матричні елементи [9], експериментальна роздільна здатність [10], нелінійність фотоелектронного детектора [11], тощо. Врахування цих факторів є необхідним для подальшого аналізу форми фотоemisійних спектрів та з'ясування механізмів міжелектронної взаємодії. Іншим чинником є еволюція поверхні досліджуваного зразка [3, 4]. Це можуть бути часовозалежні ефекти (наприклад, «старіння» топологічних діелектриків [12, 13]) або ефекти накладання спектрів поверхневих і об'ємних станів [14].

Метою роботи є дослідження нелінійності фотоелектронного детектора, що використовується в методі фотоелектронної спектроскопії з кутовим розділенням, та розробка методу попиксельного зіставлення інтенсивності фотоemisійних спектрів для виявлення малих змін у експериментальних спектрах, пов'язаних з ефектами еволюції поверхневих станів та формування двовимірного електронного газу на поверхні топологічного ізолятора.

2. ДЕТАЛІ ЕКСПЕРИМЕНТУ

У даній роботі використано ARPES-спектри, частково опубліковані в [4, 11], що їх одержано на монокристалах топологічного діелектрика Bi_2Se_3 , вирощених Бріджменовою методою. Експерименти ARPES виконувалися на синхротроні BESSY (Берлін) на лінії «12», укомплектованій електронним аналізатором SES 8000. (Деталі експерименту див. у [11].)

На рисунку 1 наведено типові ARPES-спектри топологічних поверхневих станів так званого «Діракового конуса» в центрі Бріллюєвської зони Bi_2Se_3 . ARPES-спектр є розгорткою фотоелектронів за кутом їх вильоту зі зразка та за їх кінетичною енергією, які можна перерахувати в імпульс та енергію зв'язку, однак для дослідження нелінійності це не істотно. Наведені спектри відрізняються інтенсивністю фотонного пучка, яка контролювалася вихідною апертурою ондулятора, що становила відповідно $4 \times 4 \text{ мм}^2$ (а), $0,8 \times 0,8 \text{ мм}^2$ (б) та $0,5 \times 0,5 \text{ мм}^2$ (в). Далі в статті інтенсивність фотоелектронів подаєть-

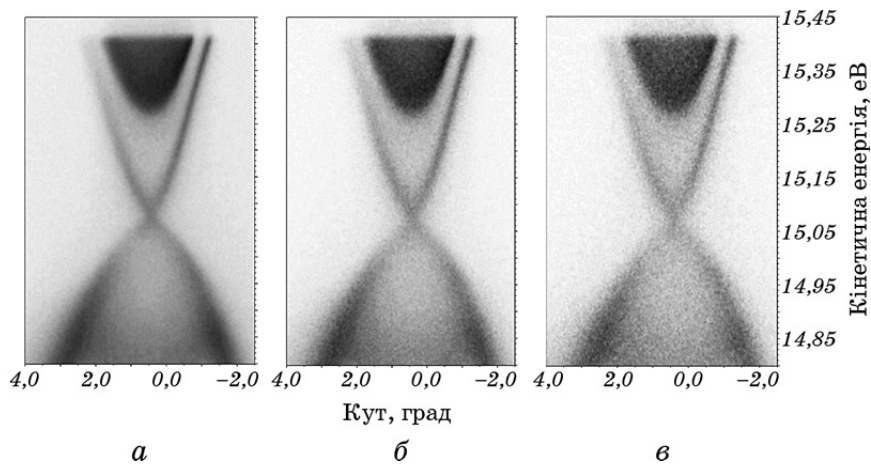


Рис. 1. Три фотоелектронні спектри, що є результатом опромінення монокристалу Bi_2Se_3 пучками світла різної інтенсивності. Інтенсивність являє собою кількість електронів, що потрапили на детектор (чорний колір відповідає більшим значенням).

ся у відліках на піксель зображення, що має розміри $1,5 \text{ меВ} \times 0,02^\circ$ та є одним з 294192 (454×648) пікселів у кожному зображенні. Для записаних спектрів час на запис спектрального каналу становив 453 с, так що максимальна кількість відліків на піксель становила $I_{\text{max}} = 6 \cdot 10^3$ срр, що відповідає потоку 13 відліків на піксель у секунду, або 0,43 відліків на секунду на 1 мкм^2 площі детектора.

ARPES-спектри, представлені на рис. 1, було записано для аналізу нелінійності детектора. Для цього вони мають істотно відрізнятися лише за загальною інтенсивністю фотоелектронів. Регулювання цієї інтенсивності відбувалося шляхом варіації вихідної апертури ондулятора з метою змінити тільки інтенсивність фотонів, лишивши незмінними інші параметри, такі як енергія фотонів і розмір пучка.

3. АНАЛІЗ НЕЛІНІЙНОСТІ ДЕТЕКТОРА

Позначимо реальну інтенсивність як I , а зчитану детектором інтенсивність як D . Очевидно, що D є функцією від I , яку можна апроксимувати квадратичним поліномом [11]:

$$D_1 = D(I) \approx I + aI^2, \quad (1)$$

де a — коефіцієнт нелінійності детектора.

Збільшення інтенсивності світла, що потрапляє на зразок, відобразиться в заміні I на nI . Тоді зареєстрована інтенсивність буде:

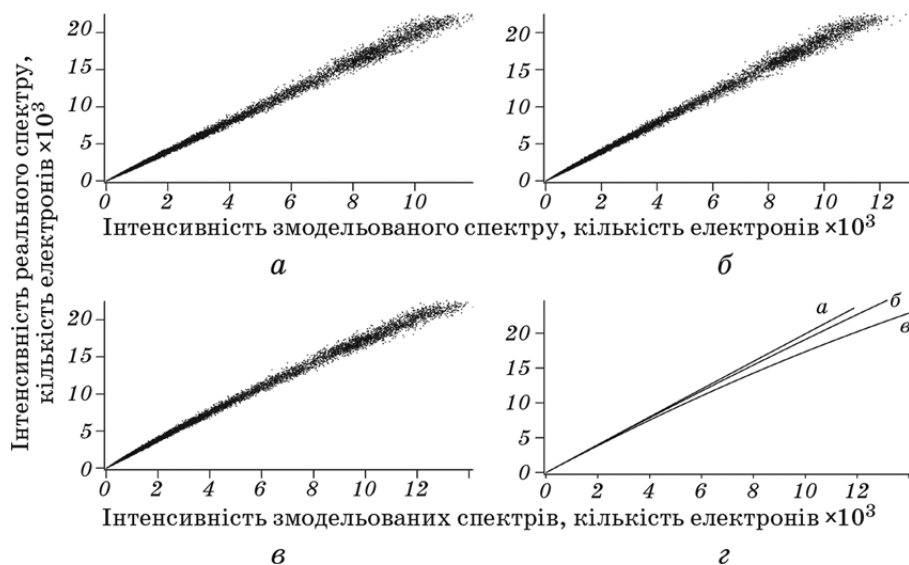


Рис. 2. Порівняння інтенсивності реального спектру і спектрів змодельованих на його основі з $n = 2,5$ і $\alpha = 0$ (а), $0,1$ (б), $0,4$ (в); результати апроксимації квадратичним поліномом (г).

$$D_n = D(nI) \approx nI(1 + a n I). \quad (2)$$

Для малих aI з формул (1) і (2) одержуємо:

$$D_n = nD_1 + a n(n-1)D_1^2. \quad (3)$$

Загалом D є функцією від I в кожному каналі детектора (тобто пікселі фотоматриці) $D_1^{i,j} = D(I_{i,j})$, тому, побудувавши залежність $D_n^{i,j}$ vs $D_1^{i,j}$, яка являє собою значення інтенсивності пікселя з індексами i, j для спектру D_n , відкладене по осі OY , і інтенсивність аналогічного пікселя з D_1 , відкладену по осі OX , можна визначити коефіцієнт нелінійності детектора a і підсилення пучка світла n . На рисунку 2 показано моделювання за формулою (2) на основі спектру з рис. 1, a з $n = 0,5$, $\alpha = 0, 0,1, 0,4$ і нормальним шумом з $\sigma = 2\%$ від I_{\max} .

Тепер переходимо до аналізу нелінійності на основі реальних даних. На рисунку 3 зображено порівняння двох спектрів з рис. 1. На цьому графіку у відповідність інтенсивності кожній точці одного спектру (рис. 1, б) ставиться у відповідність інтенсивність аналогічної точки іншого спектру (рис. 1, а), так само, як було зроблено на рис. 2. Коефіцієнти квадратичної апроксимації наведено у підписі до рис. 3. На рисунку 4 наведено порівняння спектрів з рис. 1 з іншим спектром, зображення якого не наведено в роботі.

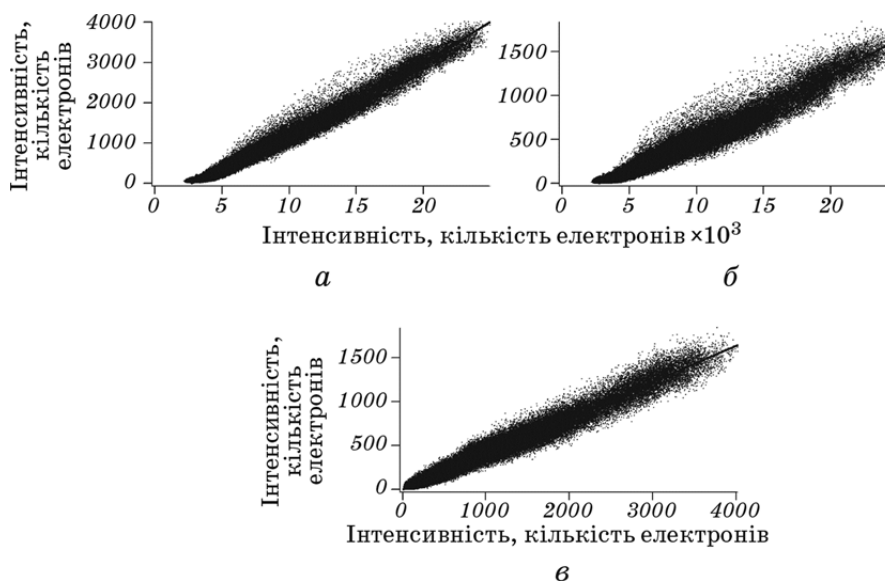


Рис. 3. Попарне порівняння спектрів, зображених на рис. 1, шляхом зіставлення інтенсивності їхніх відповідних пікселів: *a* — спектри (*б*) і (*a*) з рис. 1; *б* — аналогічно (*в*) і (*a*); *в* — аналогічно (*в*) і (*б*). Результати апроксимації квадратичним поліномом $ax^2 + bx + c = 0$:

a — $a = 1,49829 \cdot 10^{-6} \pm 7,87 \cdot 10^{-9}$, $b = 0,13885 \pm 0,00016$, $c = -390,41 \pm 0,57$;
б — $a = 6,2754 \cdot 10^{-7} \pm 4,65 \cdot 10^{-9}$, $b = 0,056577 \pm 9,48 \cdot 10^{-5}$, $c = -161,231 \pm 0,336$;
в — $a = 6,741 \cdot 10^{-7} \pm 1,27 \cdot 10^{-7}$, $b = 0,4066 \pm 0,00034$, $c = -1,4136 \pm 0,1112$.

Аналізуючи квадратичні члени апроксимаційних кривих з рис. 3, а також, беручи до уваги результати, описані в [11], можна дійти висновку, що нелінійність сучасних експериментальних установок є істотно меншою, ніж повідомлялося щодо старих детекторів (Gammadata, Scienta SES200) [15, 16], як показано на рис. 4.

4. ФОРМУВАННЯ ДВОВИМІРНОГО ЕЛЕКТРОННОГО ГАЗУ

Виявилось, що розроблена метода порівняння спектрів уможливує виділити та ідентифікувати найменші зміни в перерозподілі густини електронів. Якщо детально розглядати графік, зображений на рис. 3, то можна помітити невелику групу точок (обведена на рис. 5), які відокремлені від основного масиву і знаходяться на значній відстані від апроксимаційної кривої, хоча через їх невелику кількість на параметри кривої це не впливає.

Очевидно, що перед нами не шум, оскільки розташування цих точок характеризується односпрямованістю. Можна припустити, що ми бачимо нелінійний ефект, який не має ніякого відношення

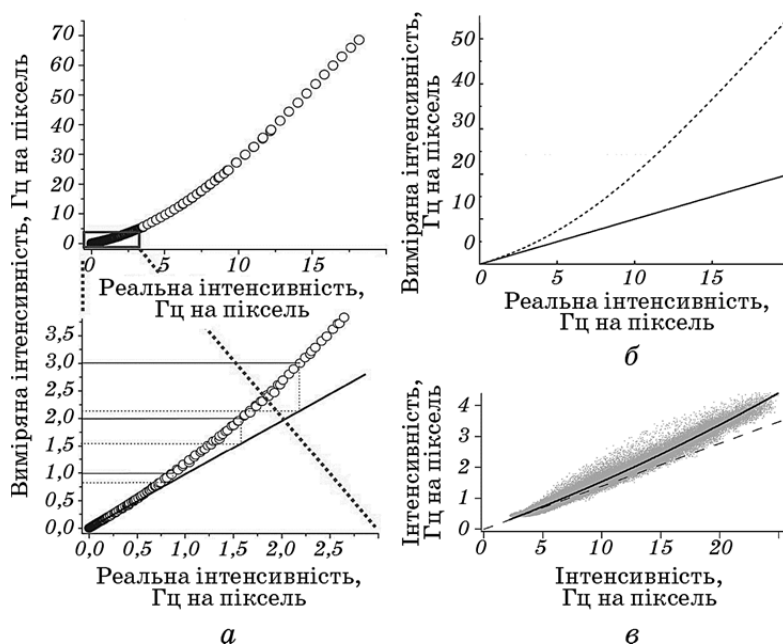


Рис. 4. Відгук детектора для різних значень інтенсивності, детальніше розглянута залежність для малої інтенсивності [16] (а); аналогічна залежність з [15] (б); попіксельне зіставлення спектрів (б) і (а) з рис.1, переведене зі шкали «кількість електронів на піксель» до шкали «Гц на піксель», суцільна лінія — апроксимація квадратичним поліномом, штрихова — ідеальна залежність (в).

до власне детектора.

Для того, щоб дослідити цей ефект детальніше пропонується наступна метода — в координатах кінетична енергія–кут, тобто коор-

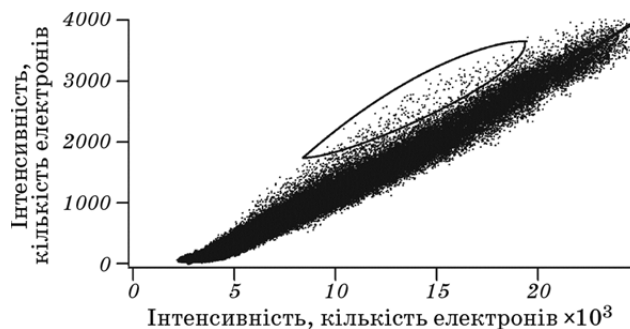


Рис. 5. Зіставлення інтенсивності відповідних пікселів спектрів (б) і (а) з рис.1, апроксимовано лінійною залежністю; обведено точки, які лежать значно вище кривої апроксимації.

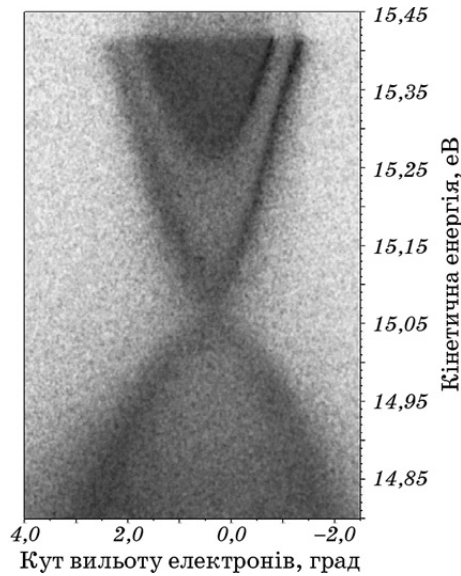


Рис. 6. Відношення інтенсивності спектру (б) з рис.1 до інтенсивності спектру (а) з рис.1 для кожного пікселя.

динатах спектру, як третю координату використати відношення двох спектрів, іншими словами, відкласти тангенс кута нахилу прямої, проведеної до кожної точки, зображеної на рис. 5. Це уможливить побачити, де локалізовані точки, що нас цікавлять. Одержавши необхідне зображення (рис. 6), можна побачити різницю в підсиленні інтенсивності в різних областях спектру.

Для покращення відношення сигнал/шум у роботі запропоновано два алгоритми фільтрації. Перший полягає в простому відсіюванні точок із низькою інтенсивністю. Його схематичне зображення подано на рис. 7. Тут як поріг встановлено 20% від максимальної інтенсивності кожного з спектрів. Таким чином відсіюються пікселі, значення яких не перевищують поріг, хоча б для одного зі спектрів (результат показано на рис. 9, а).

Таким чином вдається підсилити корисний сигнал, однак це досягається втратою частини даних. Інший алгоритм дозволяє уникнути цього, і полягає в тому, щоб зсунути всі точки з рис. 5 в область більших значень інтенсивності. Напрямо зсуву визначається лінійною апроксимацією. Таким чином рівняння для відношення в даному випадку має вигляд:

$$R^{i,j} = (D_1^{i,j} + V_{\max} b - a) / (D_2^{i,j} + V_{\max}), \quad (4)$$

де D_1 — спектр з рис. 2, б, D_2 — спектр з рис. 2, а, V_{\max} — максима-

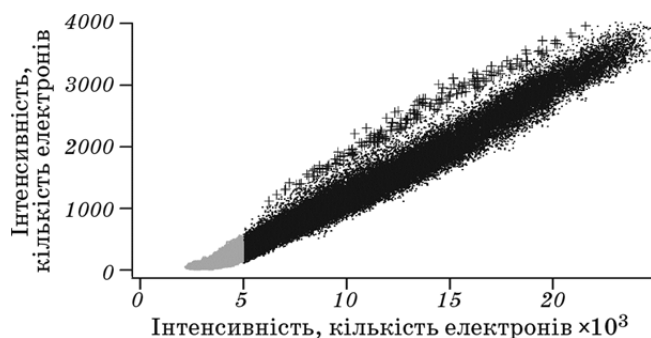


Рис. 7. Схематичне зображення фільтрації: сірим кольором виділені відфільтровані точки, маркерами позначені точки із відношенням інтенсивності двох спектрів 0,18 і більше.

льна інтенсивність спектру D_2 , a , b — відповідні коефіцієнти з рис. 8.

Схематичне зображення алгоритму подано на рис. 8, результат на рис. 9, б. Цей метод ефективний для наочности, оскільки представлені на рис. 9, б значення відношень не несуть той самий фізичний зміст, тобто підсилення інтенсивности. В той же час цей алгоритм не потребує відкидання даних.

На обох зображеннях з рис. 9 видно області з істотно більшим відношенням інтенсивности (цим точкам відповідає чорний колір). На рисунку 7 маркерами показано положення точок, що мають значення 0,18 і більше, тобто відповідають чорному кольору на рис. 9, а. Нижня частина цих точок відповідає області, що розташована на так званому Діраковому конусі (V-подібній кривій дисперсійної залежності поверхневих станів у топологічних діелектриках), а верхня відповідає області, що розташована на краю зони провідности.

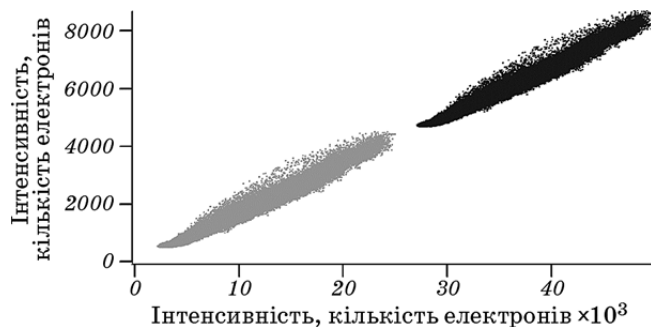


Рис. 8. Схематичне зображення зсуву: сірим кольором позначено масив точок з рис.5 до зсуву, але з коригуванням на коефіцієнт (нульовий член) з лінійної апроксимації, чорним — після зсуву.

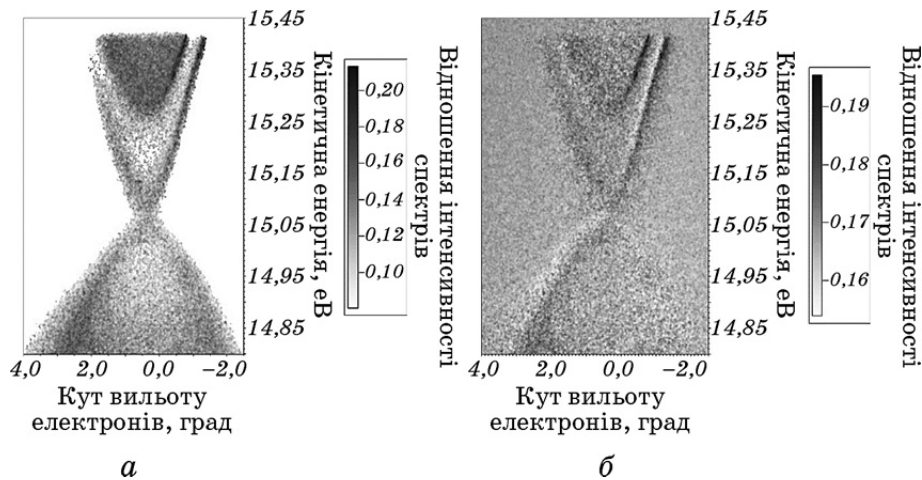


Рис. 9. Відношення інтенсивності двох спектрів для кожного пікселя, одержане за допомогою фільтрації пікселів з низькою інтенсивністю (а) і зсувом початкових спектрів (б).

Таким чином, збільшення фотоелектронної інтенсивності з часом локалізовано у вузьких зонах як вздовж Діракового конусу (топологічних поверхневих станів), так і на краю об'ємної зони провідності. Останнє є зародком формування «нетопологічного» [12] двовимірного електронного газу на поверхні зразка внаслідок загину зон [4], що пов'язують зі «старінням» зразка при тривалому перебуванні у вакуумній камері. Схожий ефект нещодавно спостерігався на значно довшій часовій шкалі в роботах [12, 13]: на рис. 10 показано спектри, одержані через різні проміжки часу після початку експерименту та до 16 годин.

Поєднуючи довготривалий експеримент з простими розрахунками, в роботах [12, 13, 17] було показано, що адсорбція залишкових газів на поверхні топологічного діелектрика, наприклад, витримка зразка в атмосфері газу CO , як показано на рис. 11, призводить, внаслідок загину зон, до формування потенціального бар'єру у вузькому приповерхневому шарі та в квантовій локалізації електронів провідності.

Співіснування топологічних і нетопологічних двовимірних електронних станів на поверхні топологічних ізоляторів з можливістю керування останніми за допомогою поверхневої абсорбції чи прикладання зовнішнього потенціалу відкриває нові перспективи застосування топологічних ізоляторів у спінтроніці [12]. За допомогою запропонованої в даній роботі методи можна спостерігати й аналізувати зародження двовимірного електронного газу вже протягом перших десяти хвилин, що значно скорочує час експерименту.

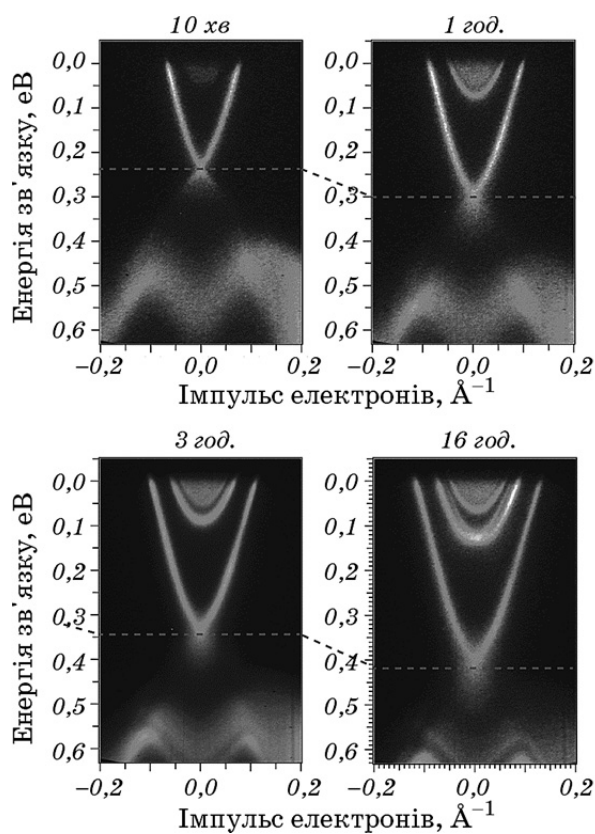


Рис. 10. Демонстрація ефекту «старіння» залежно від часу, що пройшов після розколу кристалу [13].

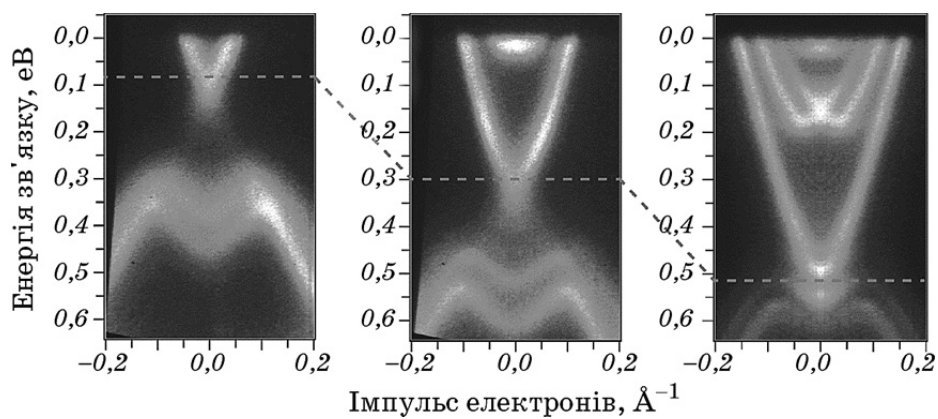


Рис. 11. ARPES-спектри Bi_2Se_3 через годину після розколу кристалу в атмосфері CO при різних часах експозиції [13].

5. ВИСНОВКИ

Розроблено методу зіставлення інтенсивності відповідних пікселів двох ARPES-спектрів різної інтенсивності, що уможливорює визначити нелінійність детектора у вигляді апроксимації квадратичним поліномом. Розроблена метода разом із алгоритмами фільтрації дає можливість виявляти області в спектрі з дуже незначними змінами інтенсивності. Аналіза спектрів топологічного ізолятора Bi_2Se_3 вищезазначеною методою уможливила спостерігати початок формування двовимірного електронного газу на поверхні топологічного ізолятора задовго до того, як цей ефект стане помітним на вихідних спектрах.

Роботу виконано в межах спільного проєкту НАН України та РФФД № 73-02-14.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. A. Damascelli, Z. Hussain, and Z.-X. Shen, *Rev. Mod. Phys.*, **75**: 473 (2003).
2. A. A. Kordyuk, *Fiz. Nizk. Temp.*, **40**: 375 (2014); idem, *Low Temp. Phys.*, **40**: 286 (2014).
3. P. Hofmann, *Synchrotron-Radiation Studies of Topological Insulators*, arxiv: 1210.2672v1 (2012).
4. A. A. Kordyuk, T. K. Kim, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky, M. Bauch, C. Hess, B. Büchner, H. Berger, and S. V. Borisenko, *Phys. Rev. B*, **83**: 081303 (2011).
5. A. A. Kordyuk, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky, D. S. Inosov, T. K. Kim, B. Büchner, and S. V. Borisenko, *Eur. Phys. J. Special Topics*, **188**: 153 (2010).
6. A. A. Kordyuk, *Fiz. Nizk. Temp.*, **38**: 1119 (2012); idem, *Low Temp. Phys.*, **38**: 888 (2012).
7. S. V. Borisenko, A. A. Kordyuk, A. Koitzsch, T. K. Kim, K. A. Nenkov, M. Knupfer, J. Fink, C. Grazioli, S. Turchini, and H. Berger, *Phys. Rev. Lett.*, **92**: 207001 (2004).
8. A. A. Kordyuk, S. V. Borisenko, V. B. Zabolotnyy, R. Schuster, D. S. Inosov, D. V. Evtushinsky, A. I. Plyushchay, R. Follath, A. Varykhalov, L. Patthey, and H. Berger, *Phys. Rev. B*, **79**: 020504 (2009).
9. S. V. Borisenko, A. A. Kordyuk, S. Legner, C. Durr, M. Knupfer, M. S. Golden, J. Fink, K. Nenkov, D. Eckert, G. Yang, S. Abell, H. Berger, L. Forro, B. Liang, A. Maljuk, C. T. Lin, and B. Keimer, *Phys. Rev. B*, **64**: 094513 (2001).
10. A. A. Kordyuk, S. V. Borisenko, A. N. Yaresko, S.-L. Drechsler, H. Rosner, T. K. Kim, A. Koitzsch, K. A. Nenkov, M. Knupfer, J. Fink, R. Follath, H. Berger, B. Keimer, S. Ono, and Yoichi Ando, *Phys. Rev. B*, **70**: 214525 (2004).
11. A. A. Kordyuk, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, B. Buchner, I. V. Plyushchay, H. Berger, and S. V. Borisenko, *Phys. Rev. B*, **85**: 075414 (2012).
12. M. Bianchi, D. Guan, Sh. Bao, J. Mi, B. B. Iversen, D. Philip, C. King, and P. Hofmann, *Nature Communications*, **1**: 128 (2010).

13. M. Bianchi, R. C. Hatch, D. Guan, T. Planke, J. Mi, B. B. Iversen, and P. Hofmann *Semicond. Sci. Technol.*, **27**: 124001 (2012).
14. V. B. Zabolotnyy, S. V. Borisenko, A. A. Kordyuk, J. Geck, D. S. Inosov, A. Koitzsch, J. Fink, M. Knupfer, B. Büchner, S.-L. Drechsler, H. Berger, A. Erb, M. Lambacher, L. Patthey, V. Hinkov, and B. Keimer, *Phys. Rev. B*, **76**: 064519 (2007).
15. A. W. Kay, F. J. Garcıade-Abajo, S.-H. Yang, E. Arenholz, B. S. Mun, N. Mannella, Z. Hussain, M. A. Van Hove, and C. S. Fadley, *Phys. Rev. B*, **63**: 115119 (2001).
16. N. Mannella, S. Marchesini, A. W. Kay, A. Nambu, T. Gresch, S.-H. Yang, B. S. Mun, J. M. Bussat, A. Rosenhahn, and C. S. Fadley, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **141**: 4559 (2004).
17. M. Bianchi, R. C. Hatch, J. Mi, B. B. Iversen, and P. Hofmann, *Phys. Rev. Lett.*, **107**: 086802 (2011).