

VEZETÉSI CSATORNÁK ÉS LOKALIZÁCIÓ GRAFÉNBAN MÁGNESES TÉR HATÁSÁRA

PhD tézisfüzet

ENDRE TÓVÁRI

Témavezető:
DR. SZABOLCS CSONKA

Budapest

2017



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2

Bevezetés

Az elektromágneses hullámok, hasonlóan a víz felszínén terjedő fodrokhoz, képesek az interferenciára. Azonban az energiájuk nem nyelődhet el anyagban tetőzőlegesen kis mennyiségben, csak jól meghatározott, diszkrét adagokban, vagyis a fény részecskéként is viselkedhet [Planck 1900a; Planck 1900b; Einstein 1905]. Napjainkban a fény hullám- és részecsketermészetét egyidejűleg használják ki az elektronika és a fotonika számtalan területén alkalmazott lézerekben és LED-ekben. Másrészt viszont részecskék, például elektronok is képesek interferenciára [Thomson et al. 1927; Davisson et al. 1928], ami egy hullámokra jellemző tulajdonság. Egyéb optikai jellegű kísérletek is végezhetők elektronokkal: elektromos és mágneses terek segítségével lencsék, tükrök és hullámvezetők alakíthatók ki. Mindez nemcsak vákuumban, hanem szilárd vezetőkben is lehetséges - legegyszerűbben két dimenzióban, így felhasználható olyan, új funkciókat kínáló elektronikai eszközök létrehozására, amik az optika elvein működnek.

Elektron-optikai eszközökhöz ballisztikus transzportra van szükség, ami nagy tisztaságú alapanyagokat igényel. Ezt kristályhibáktól mentes félvezető heteroszerkezetek már sikerült elérni: úgynevezett két dimenziós elektron vagy lyukgázban (2DEG/2DHG), alacsony hőmérsékleten a töltéshordozók szabad úthossza akár a $100\ \mu\text{m}$ -t is meghaladhatja [Kumar et al. 2010]. Összehasonlításként ez a mennyiség fémekben csupán nanométer nagyságrendű. A félvezető eszközök minőségét gyakran a μ mobilitással jellemzik: $\mu \sim 10^5\text{-}10^7\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ megközelítőleg mikrométer-skálájú vagy nagyobb szabad úthossznak felel meg.

A grafén, az első szabadon álló 2D anyag felfedezése [Novoselov et al. 2004] meglepetésként jött a szilárdtest-fizikában, hiszen addig úgy tartották, hogy a 2D kristályok az abszolút nulla hőmérséklet fölött instabilak [Mermin et al. 1966; Fasolino et al. 2007]. Mivel grafénban az elektronok vagy lyukak eleve síkba vannak zárva, továbbá már a korai minták mobilitása is sok ezer cm^2/Vs volt, ígéretes anyagnak tűnt az elektron-optikához. Ráadásul a grafén töltéshordozói tömeg nélküli Dirac részecskéként viselkednek, így egy relativisztikus jelenség, a Klein-alagutazás szilárdtest-fizikai megfelelőjét mutatják [Katsnelson et al. 2006]: ennek során egy potenciálgátra merőlegesen beeső részecske akkor is egységnyi valószínűséggel jut át, ha az energiája kisebb a gát magasságánál. A tiltott sáv hiánya lehetővé teszi, hogy kapacitívan csatolt helyi kapuelektrodák segítségével inhomogén dópólást, akár p-n átmeneteket alakíthassunk ki. Mindez bővíti az elektron-optika eszköztárát a 2DEG-ekhez képest, hiszen grafénban például kígyóállapotok is létrehozhatók. Ezen kívül a 2D Dirac fermionok merőleges mágneses térben anomális kvantált Hall effektust (QHE) mutatnak [Novoselov et al. 2005; Zhang et al. 2005], ami akár szobahőmérsékleten is megfigyelhető [Novoselov et al. 2007]. A kvantum Hall állapotok $B = 100\ \text{mT}$ mágneses indukció alatt is megjelenhetnek, ami

megengedi, hogy szupravezető elektródákból injektált Cooper-párokkal kombináljuk őket, lehetővé téve a kvantum-összefonódás vizsgálatát, vagy olyan egzotikus topologikus állapotok, mint a parafermionok megvalósítását. A kvantum Hall állapotok pályáinak elektrosztatikus irányításával - interferencia révén - frakcionális kvantum Hall állapotok, illetve a völgy szabadsági fok szerint polarizált állapotok is tanulmányozhatók; utóbbiak mechanikai feszültségtől vagy sérült szimmetriájú Landau-szintektől eredhetnek.

A grafén a spintronika szempontjából is ígéretes, ugyanis a gyenge spin-pálya csatolás [Gmitra et al. 2009] és a magspinnel rendelkező ^{13}C atomok alacsony koncentrációja miatt az elektronok és lyukak hosszú távon is megőrzik spinállapotukat [Drögeler et al. 2016]. Ha egy töltést egy potenciálvölgybe, azaz kvantum pöttybe (quantum dot - QD) lokalizálunk, a spinje kvantum bitként, egy kvantumszámítógép építőelemeként szolgálhat [Loss et al. 1998; Trauzettel et al. 2007]. A kvantumszámítógépek olyan rendszerek, amik a kvantummechanika törvényeit kihasználva várhatóan bonyolult számításokat lesznek képesek nagy hatékonysággal megoldani [DiVincenzo 2000; Ladd et al. 2010]. Továbbá bizonyos élszerkezetű grafén nanoszalagok spinzűrőként [Son et al. 2006] vagy vékony vezetési csatornaként szolgálhatnak majd a jövő nanoelektronikai eszközeiben.

Célkitűzések

A SiO_2 dielektrikumra, mint hordozóra elkészített első grafénminták mobilitása 10^{12} cm^{-2} -es elektronsűrűségeknél $10^4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ körüli volt [Checkelsky et al. 2008], ami pár száz nm-es szabad úthossznak felel meg. Azonban elektron-optikai alkalmazásokhoz ballisztikus transzportra van szükség az egész mintában, ami tipikusan néhány μm méretű. Emellett egyrétegű grafénban a tiltott sáv hiánya megakadályozza a töltéshordozók elektromos terekkel való QD-ba zárását. Noha p-n átmenetekkel lehetséges nyalábosztók és hullámvezetők készítése, ezek bezáró hatása tökéletlen, és töltések szivároghatnak át. A PhD kutatás célja grafén alapú elektron-optikai és kvantum elektronikai eszközök készítési lehetőségeinek feltárása volt, a vezetési csatornáktól a kvantum pöttyökig.

A megszokott grafén nanoszalag készítési technikák durva élszerkezetű és alacsony vezetőképességű szalagokat produkálnak [Stampfer et al. 2009; Han et al. 2010], ezért az első célunk új módszerek, például a karbotermikus marás [Nemes-Incze et al. 2010] kipróbálása volt, hogy jó minőségű, jól definiált élszerkezetű szalagokat fabrikálhassunk. Mivel a SiO_2 -ra készített tömbi grafénminták jórészt ezen szubsztrát miatt diffúzívan vezetnek - ami a nanoszalagok tulajdonságait is korlátozza, a második célunk annak kiderítése volt, hogy a SiN_x jobb hordozó-e. A legjobb minőség a grafén felfüggesztésével és tisztításával érhető el [Bolotin et al. 2008;

Tombros et al. 2011]: ezen minták mobilitása 10^6 cm^2/Vs nagyságrendű lehet, ami mikrométeres szabad úthossznak felel meg, és felülmúl minden, hordozóra készített mintát. Egy polimer alapú felfüggesztési technikát helyi kapuelektrodák készítésével kombináltunk abból a célból, hogy megvizsgáljuk, milyen mértékben hangolható az elektrodák elektromos terével a ballisztikus töltések kváziklasszikus pályái, illetve a kvantum Hall vezetési csatornák útvonalai; továbbá azért, hogy a Landau-szintek közti tiltott sávok felhasználásával elektrosztatikusan lokalizálhassunk töltéseket, azaz QD-okat alakíthassunk ki egyrétegű grafénban.

Tézispontok

1. A grafén tulajdonságai SiN_x -en Megvizsgáltam a SiN_x hordozóra készített grafén tulajdonságait. Ahhoz, hogy a minták láthatósága megfelelő legyen a fabrikációhoz, először egy $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{SiN}_x$ heteroszerkezet optikai tulajdonságait szimuláltam grafénnal és anélkül; az oxidréteg vastagsága egy második szabadsági fokként segítette az optimalizálást. Grafénmintákat fabrikáltam egy olyan heteroszerkezetre, aminél a rétegvastagságok közel ideális kontrasztot adtak. Atomierő mikroszkóppal, optikai mikroszkóppal és Raman spektroszkópiával kiderítettem, hogy a néhányrétegű minták láthatósága elégséges a megtalálásukhoz, Raman jelük pedig a vastagság meghatározásához. Formára marás és kikontaktálás után mágneses térbeli méréseket végeztem 4 K hőmérsékleten mind a klasszikus, mind a kvantum Hall tartományban, és meghatároztam a minták mobilitását. Ennek 4500 cm^2/Vs -os értéke, valamint a QHE 4 T körüli megjelenése hasonló a SiO_2 -ra készített grafénmintákéhoz. Ezek szerint a SiN_x hasonlóan jó minőségű szubsztrát grafén áramkörök fabrikálásához, különösen - előnyös kémiai és mechanikai tulajdonságainak köszönhetően - nano-elektromechanikai rendszerek előállításához.

Kapcsolódó közlemény: 1.

2. Alsó kapuelektrodás, felfüggesztett eszközök készítése Részt vettem egy technika kifejlesztésében, mellyel grafénminták függeszthetők fel lokális kapuelektrodák fölött. A folyamat abból áll, hogy egy szigetelő felületre előre elkészítjük a kapuelektrodákat, egy lift-off rezisztával (LOR) borítjuk be őket, majd a grafénkristályt - amit egy másodlagos szeletre fabrikálunk - följük helyezzük. A grafénra vezetőkeket készítünk, és végül elektronsugaras megvilágítással eltávolítjuk alóla a LOR-t. Megmutattam, hogy a reaktív ionmarás nem befolyásolja a felfüggesztett szakaszok mechanikai stabilitását, és először készítettem lyukas felfüggesztett eszközöket. Továbbfejlesztettem a nagy mobilitás eléréséhez szükséges, nagy áramot alkalmazó tisztítási technikát. Alacsony hőmérsékleten méréseket végeztem két kapuelektrodával ellátott lyukas mintákon: a megfigyelt kvantált Hall platók alapján megmutattam,

hogy a lyukat határoló két ág két külön nanoszalagként vezet, amik szigetelő állapotba vihetők 3 T mágneses tér fölött, a nulla energiájú Landau-szint kicserélődési kölcsönhatásból eredő felhasadása miatt.

Kapcsolódó közlemények: 2., 4.

3. Kvantum Hall csatornák vezérlése Lyukas alsó kapuelektróda fölé függesztett mintákat fabrikáltam és tisztítottam meg. Egy ilyen eszköz közepén, a lyuk fölött a hátsó Si kapuelektróda, míg a külső területeken a lyukas kapuelektróda hangolja a töltéshordozók sűrűségét. Alacsony hőmérsékleten, a kvantum Hall tartományban végzett vezetőképesség-méréseket kiértékelve arra jutottam, hogy a bipoláris dópolású tartományban - ahol a külső és belső sűrűség előjele ellentétes, és egy kör alakú p-n átmenet alakul ki - kvantum Hall állapotok köröznek a minta közepén, melyek mérete és kontaktusokhoz való csatolása a kapufeszültségekkel hangolható. Szimulációval kapott helyfüggő kapacitások felhasználásával lemodelleztem a kvantum Hall vezetési csatornák útvonalait, és reális feltételezésekkel élve megbecsültem a minta teljes vezetőképességéhez való hozzájárulásukat, ami jó közelítéssel megfelelt a mérési adatoknak.

Kapcsolódó közlemény: 3.

4. Elektrosztatikus bezárópotenciál egyrétegű grafénban a kvantum Hall tartományban 200 nm széles felfüggesztett nanoszalagok transzport tulajdonságait vizsgáltam nagy mágneses térben. Periodikus vezetőképesség-oszcillációkat figyeltem meg a kvantált Hall-platók szélének közelében. A töltéshordozó-sűrűségtől és tértől való függésük alapján arra a következtetésre jutottam, hogy egy-egy kvantum pöttyön való átszórások hozzák létre az oszcillációkat: a lokalizáció a mágneses tér által keltett Landau-szintek közötti tiltott sávok, egy, a fabrikációs szennyezők miatti rendezetlenségi potenciál, valamint az elektrosztatikus árnyékolás összejátszásából származik. A QD-ok vezetéshez való hozzájárulása azért észlelhető, mert előre- vagy visszaszórást okoznak a kontaktusok, illetve a kvantum Hall élállapotok között, míg az, hogy mindössze egyetlen QD-tól eredő periodikus jelet látunk, a minta kis szélességének köszönhető. Széles, dupla kapuelektródás mintákon is végeztem méréseket, és az ezekben - számos QD hatására - megjelenő vezetőképesség-fluktuációk között vonalelkerüléseket figyeltem meg a kapufeszültségek függvényében, ami dupla kvantum pöttyök kialakulására utal. Ezekkel az eredményekkel megmutattam, hogyan hozhatóak létre kvantum pöttyök a kvantum Hall tartományban - az egyébként tiltott sávot nélkülöző - egyrétegű grafénban.

Kapcsolódó közlemény: 4.

5. Ballisztikus pályák mágneses térben Egy olyan felfüggesztett grafénmintát készítettem, aminek a két kapuelektródája párhuzamos volt a két kontaktussal. Tisz-

títás révén kiemelkedő mobilitást értem el, ráadásul a QHE - más egyrétegű grafénmintákhoz képest - rekord alacsony mágneses térnél (60 mT) jelent meg. Méréseket végeztem kis B mágneses térben, és vezetőképesség-oszcillációkat figyeltem meg a két kapufeszültség, valamint B függvényében, melyek a töltések Lorentz-erő által meggömbített ballisztikus pályáinak Fabry-Pérot interferenciájából eredtek. Antiszimmetrikus dőpolásnál, mikor a minta két felében ellenkező előjelű az n elektronsűrűség, és így a két élt összekötő p-n átmenet jön létre, fluktuációkat figyelünk meg, melyek parabolákat követnek az $|n| - B$ térképen abban a tartományban, ahol még érvényes a kváziklasszikus közelítés. Szoros kötésű közelítéssel számolt vezetőképesség- és áramsűrűség-szimulációk alapján arra a következtetésre jutottunk, hogy a fluktuációkat kigyóállapotok okozzák. Ezek ciklotron-félkörökből álló, a p-n átmenetet követő pályák, melyek az átmenet végére (a minta szélére) érve vagy a forrás, vagy a nyelő kontaktusba szóródnak, csökkentve vagy növelve az áramot.

Kapcsolódó közlemény: 5.

A tézisponthoz kapcsolódó tudományos közlemények

1. Endre Tóvári, Miklós Csontos, Tamás Kriváchy, Péter Fürjes, Szabolcs Csonka: Characterization of $\text{SiO}_2/\text{SiN}_x$ gate insulators for graphene based nanoelectromechanical systems, **Applied Physics Letters** 105, 123114 (2014)
2. Romain Maurand, Peter Rickhaus, Péter Makk, Samuel Hess, Endre Tóvári, Clevin Handschin, Markus Weiss, Christian Schönenberger: Fabrication of ballistic suspended graphene with local-gating, **Carbon** 79, pp. 486-492 (2014)
3. Endre Tóvári, Péter Makk, Ming-Hao Liu, Peter Rickhaus, Zoltán Kovács-Krausz, Klaus Richter, Christian Schönenberger, Szabolcs Csonka: Gate-controlled conductance enhancement from quantum Hall channels along graphene p-n junctions, **Nanoscale** 8, 19910 (2016)
4. Endre Tóvári, Péter Makk, Peter Rickhaus, Christian Schönenberger, Szabolcs Csonka: Signatures of single quantum dots in graphene nanoribbons within the quantum Hall regime, **Nanoscale** 8, 11480 (2016)
5. Peter Rickhaus, Péter Makk, Ming-Hao Liu, Endre Tóvári, Markus Weiss, Romain Maurand, Klaus Richter, Christian Schönenberger: Snake trajectories in ultraclean graphene p-n junctions, **Nature Communications** 6, 6470 (2015)

További publikációk

6. Péter L. Neumann, Endre Tóvári, Szabolcs Csonka, Katalin Kamarás, Zsolt E. Horváth, László P. Biró: Large scale nanopatterning of graphene, **Nuclear Instruments & Methods B** 282, pp. 130-133 (2012)
7. Péter Rakyta, Endre Tóvári, Miklós Csontos, Szabolcs Csonka, András Csordás, József Cserti: Emergence of bound states in ballistic magnetotransport of graphene antidots, **Physical Review B** 90, 125428 (2014)
8. Ming-Hao Liu, Peter Rickhaus, Péter Makk, Endre Tóvári, Romain Maurand, Fedor Tkatschenko, Markus Weiss, Christian Schönenberger, Klaus Richter: Scalable Tight-Binding Model for Graphene, **Physical Review Letters** 114, 036601 (2015)

Irodalomjegyzék

- Bolotin, Kirill I et al. (2008). **Solid State Communications** 146.9, pp. 351–355.
- Checkelsky, Joseph G et al. (2008). **Physical Review Letters** 100.20, p. 206801.
- Davisson, CJ et al. (1928). **Proceedings of the National Academy of Sciences** 14.4, pp. 317–322.
- DiVincenzo, David P (2000). **Fortschritte der Physik**.
- Drögeler, Marc et al. (2016). **Nano Letters** 16.6. PMID: 27210240, pp. 3533–3539.
- Einstein, A (1905). **Annalen Der Physik** 17.6, pp. 132–148.
- Fasolino, Annalisa et al. (2007). **Nature Materials** 6.11, pp. 858–861.
- Gmitra, M et al. (2009). **Physical Review B** 80.23, p. 235431.
- Han, Melinda Y et al. (2010). **Physical Review Letters** 104.5, p. 056801.
- Katsnelson, MI et al. (2006). **Nature Physics** 2.9, pp. 620–625.
- Kumar, A et al. (2010). **Physical Review Letters** 105.24, p. 246808.
- Ladd, Thaddeus D et al. (2010). **Nature** 464.7285, pp. 45–53.
- Loss, Daniel et al. (1998). **Physical Review A** 57.1, p. 120.
- Mermin, N. D. et al. (1966). **Physical Review Letters** 17, p. 1133.
- Nemes-Incze, Péter et al. (2010). **Nano Research** 3.2, pp. 110–116.
- Novoselov, Konstantin S et al. (2007). **Science** 315.5817, pp. 1379–1379.
- Novoselov, Kostya S et al. (2004). **Science** 306.5696, pp. 666–669.
- Novoselov, KSA et al. (2005). **Nature** 438.7065, pp. 197–200.
- Planck, Max Karl Ernst Ludwig (1900a). **Verhandl. Dtsc. Phys. Ges.** 2, p. 202.
- (1900b). **Verhandl. Dtsc. Phys. Ges.** 2, p. 237.
- Son, Young-Woo et al. (2006). **Nature** 444.7117, pp. 347–349.
- Stampfer, C et al. (2009). **Physical Review Letters** 102.5, p. 056403.
- Thomson, George P et al. (1927). **Nature** 119.3007, p. 890.
- Tombros, Nikolaos et al. (2011). **Journal of Applied Physics** 109.9, p. 093702.
- Trauzettel, Björn et al. (2007). **Nature Physics** 3.3, pp. 192–196.
- Zhang, Yuanbo et al. (2005). **Nature** 438.7065, pp. 201–204.