

Проявление послойной локализации сингулярностей ван Хова в туннелировании между листами двухслойного графена¹⁾

Е. Е. Вдовин⁺ 2), Ю. Н. Ханин⁺, С. В. Морозов⁺, М. А. Кащенко^{*×}, А. А. Соколик[°], К. С. Новоселов[∇]

⁺Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^{*}Центр фотоники и двумерных материалов, Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

[×]Лаборатория физики программируемых функциональных материалов, Центр нейrofизики и нейроморфных технологий, 127495 Москва, Россия

[°]Институт спектроскопии РАН, 142190 Троицк, Москва, Россия

[∇]Institute for Functional Intelligent Materials, National University of Singapore, Building S9, 4 Science Drive 2, 117544 Singapore

Поступила в редакцию 15 октября 2024 г.

После переработки 6 ноября 2024 г.

Принята к публикации 6 ноября 2024 г.

Исследовано туннелирование между двумя листами двухслойного графена, кристаллические решетки которых повернуты относительно друг друга на небольшой угол. Обнаружено аномальное поведение туннельной проводимости, обусловленное проявлением сингулярностей ван Хова на краях зоны проводимости и валентной зоны, пространственно локализованных в различных монослоях двухслойного графена.

DOI: 10.31857/S0370274X24120108, EDN: JXKWEQ

Постоянный интерес к поиску новых материалов и исследованиям возможностей управления их зонной структурой поддерживается объективными фундаментальными и технологическими стимулами. Одним из ярких примеров такого материала в последнее время является двухслойный графен, исследования которого показали возможность открытия в нем запрещенной зоны и управления ее величиной с помощью электрического поля [1–3]. При этом было теоретически [4, 5] и экспериментально (с помощью фотоэлектронной спектроскопии [6, 7] и сканирующей туннельной микроскопии атомного разрешения [7, 8]) продемонстрировано образование сингулярностей ван Хова на краях валентной и проводящей зон и обнаружен эффект их послойной локализации, то есть пространственного расположения волновых функций электронных состояний, соответствующих сингулярностям ван Хова, по различным монослоям двухслойного графена. Недавние исследования продемонстрировали принципиальную важность таких сингулярностей и их послойной локализации для понимания многочастичных корреляций при низких энергиях таких, например, как образо-

вание кристалла Вигнера [9, 10]. Естественно было бы ожидать заметных проявлений пространственной локализации сингулярностей ван Хова при туннелировании в структурах с двухслойным графеном, однако изучения роли таких эффектов до настоящего времени не проводилось.

В данной работе мы представляем результаты исследования туннельного транспорта в макроскопических вертикальных вандерваальсовских гетероструктурах на основе двухслойного графена (*bilayer graphene*, BLG). Равновесная туннельная проводимость измерялась между двумя листами BLG, кристаллические решетки которых развернуты друг относительно друга на небольшой угол $\approx 0.7^\circ$, что накладывает определенные ограничения на возможность межслоевого туннелирования с сохранением энергии и квазиимпульса. Границы туннелирования на экспериментальной карте проводимости в зависимости от затворных напряжений хорошо описываются построенной нами моделью, учитывающей электростатику системы и туннелирование на уровне Ферми между листами BLG. Обнаружены аномальные по амплитуде асимметричные всплески проводимости на границах области туннелирования, которые мы связываем с проявлениям сингулярностей ван Хова на краях зоны проводимости и валентной зоны вблизи щели, образующейся в двухслойном

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: vdov62@yandex.ru

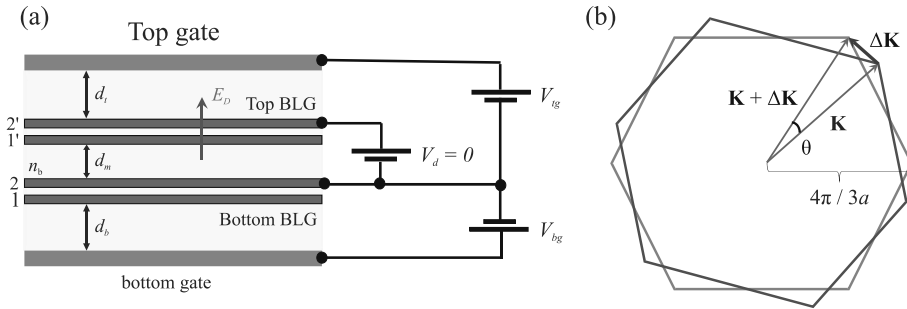


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Последовательность слоев активной части экспериментальной структуры и схема измерений, где d_i – толщины слоев hBN , V_{tg} , V_{bg} и V_d – затворные и смещающее напряжения соответственно; (б) – представление зон Бриллюэна экспериментального образца, кристаллические решетки двух BLG которого повернуты относительно друг друга на угол θ

графене под влиянием электрического поля. Резкая асимметрия таких всплесков согласуется с представлением о пространственной локализации сингулярностей ван Хофа в различных монослоях двухслойного графена, и подтверждает сделанное ранее теоретическое предположение о существенном подавлении туннелирования из удаленного от барьера слоя [11, 12].

Исследованные нами образцы представляли собой вандерваальсовскую гетероструктуру, активная часть которой состояла из двух листов BLG, разделенных туннельным барьером из гексагонального нитрида бора (6 слоев hBN). Кристаллические решетки двух BLG повернуты относительно друг друга на небольшой угол ($\theta \approx 0.7^\circ$). Схематическое изображение экспериментальной структуры представлено на рис. 1а, а детальное описание ее изготовления и оптическая фотография даны в (см. дополнительные материалы SM1). Активные слои структуры размещались на подложке Si/SiO₂, затворы к нижнему и верхнему слоям графена были изготовлены из толстого графита и золота, отделенных толстыми (~ 40 – 50 нм) подзатворными диэлектриками из hBN . Наличие двух затворов позволяет независимо управлять концентрациями носителей (n_t, n_b) в обоих BLG, путем приложения затворных напряжений V_{tg} и V_{bg} . При этом (n_t, n_b) почти пропорциональны V_{tg} и V_{bg} , но, с учетом эффектов квантовой емкости, появляется частичное перекрестное влияние V_{tg} на n_b и V_{bg} на n_t (см. ниже в описании электростатической модели). К каждому слою BLG были подведены по два металлических контакта, что позволяло производить транспортные измерения по четырехзондовой схеме.

Поскольку решетки BLG повернуты относительно друг друга на угол $\theta \approx 0.7^\circ$, их долины \mathbf{K} , \mathbf{K}' в пространстве квазиимпульсов смещены на вектор

$\Delta\mathbf{K} \approx 4\pi\theta/3a$, где $a = 2.46 \text{ \AA}$ – постоянная решетки (см. рис. 1б). Это смещение раздвигает в импульсном пространстве поверхности Ферми верхнего и нижнего BLG, делая туннелирование между ними с сохранением энергии и параллельной слоям компоненты импульса возможным, если импульсы Ферми k_{Ft} и k_{Fb} в двух BLG вместе с раздвижкой долин $\Delta\mathbf{K}$ удовлетворяют неравенствам:

$$|k_{Ft} - k_{Fb}| \leq \Delta K \leq k_{Ft} + k_{Fb}. \quad (1)$$

При выполнении этого условия поверхности Ферми в двух слоях пересекаются, что делает возможным туннелирование (рис. 2б), а при его нарушении, когда пересечений нет, туннелирование запрещено (рис. 2а). Отметим, поскольку мы исследуем равновесную туннельную проводимость между слоями BLG, т.е. напряжение смещения мало, $V_d \approx 0$, туннелирование происходит вблизи общего для обоих BLG уровня Ферми. Как видно из рис. 2б, туннельные переходы между BLG запрещены до тех пор, пока с ростом концентраций носителей в слоях n_t и n_b не происходит соприкосновения колец на дисперсионных параболах, соответствующих уровням Ферми. Момент соприкосновения отвечает открытию порога туннелирования (см. дополнительные материалы, SM2). Подобная ситуация уже изучалась теоретически и экспериментально при туннелировании в GaAs гетероструктурах между слоями двумерного газа, электронные зоны которых смещались друг относительно друга на импульс $\Delta\mathbf{K}$ в результате приложения параллельной слоям магнитного поля [13, 14].

Для расчета порогов туннелирования в координатах (V_{tg}, V_{bg}) мы рассмотрели электростатику системы, представленной на рис. 1а. Геометрические емкости между верхним BLG и верхним затвором, нижним BLG и нижним затвором, а также между дву-

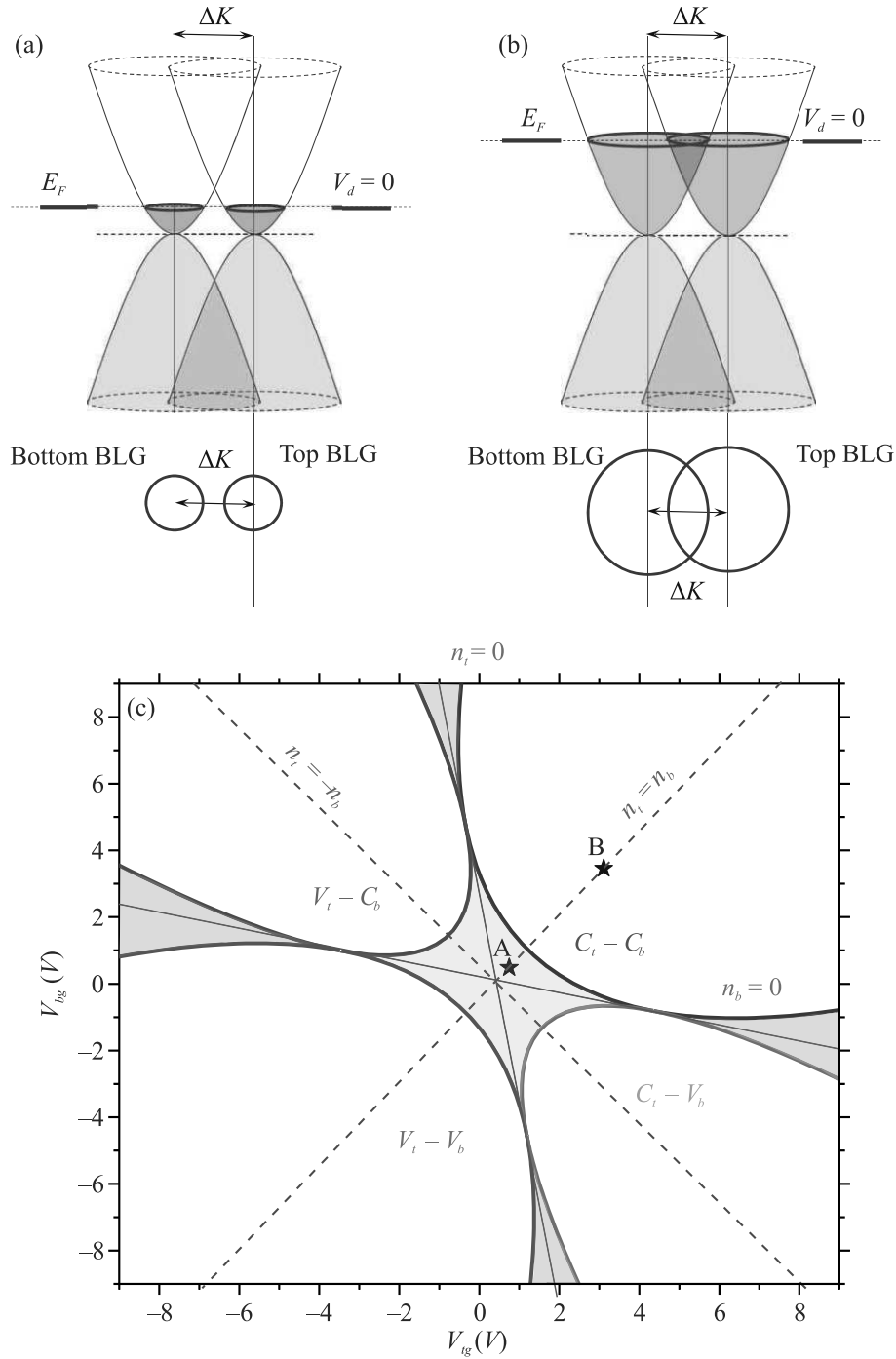


Рис. 2. (Цветной онлайн) Взаимное расположение дисперсионных параболоидов двух слоев BLG в области запрещенной для туннелирования (а) и в области для туннелирования с сохранением энергии и латерального импульса (б); (с) – расчетная карта порогов туннелирования, полученная в рамках упрощенной электростатической модели туннелирования, не учитывающей непараболичность низкоэнергетических зон BLG

мья BLG описываются $C_t = \varepsilon/4\pi d_t$, $C_b = \varepsilon/4\pi d_b$ и $C_m = \varepsilon/4\pi d_m$ соответственно ($d_{t,b,m}$ – соответствующие толщины диэлектрика hBN с диэлектрической константой $\varepsilon \approx 3.2$). С учетом квантовой емкости

BLG C_Q , которая является постоянной в приближении параболической дисперсии, при нулевом смещении $V_d = 0$ мы получаем связь между (V_{tg}, V_{bg}) и (n_t, n_b) :

$$\begin{cases} (V_{tg} = V_{tg}^0 + e[n_t(C_t + C_Q + C_m) - n_b C_m]/C_t C_Q, \\ V_{bg} = V_{bg}^0 + e[n_b(C_b + C_Q + C_m) - n_t C_m]/C_b C_Q. \end{cases} \quad (2)$$

Полагается, что $n_i > 0$ при электронном легировании и $n_i < 0$ при дырочном легировании соответствующего слоя $i = t, b$, а импульсы Ферми связаны с концентрациями носителей соотношением $k_{Fi} = (\pi|n_i|)^{1/2}$. Параметры V_{tg}^0 и V_{bg}^0 описывают небольшое смещение точек электронейтральности образцов BLG вследствие фонового легирования. Границы областей туннелирования задаются комбинацией уравнений (1) и (2). Наилучшее согласие с экспериментом достигается при реалистичных значениях параметров модели $d_t = 40$ нм, $d_b = 48$ нм, $d_m = 2$ нм, $C_Q = 5.2 \times 10^6$ см⁻¹, $\theta = 0.7^\circ$.

Рассчитанные пороги туннелирования в координатах (V_{tg}, V_{bg}) представлены на рис. 2с, где в голубой области в центре карты запрещено туннелирование между слоями BLG, в светлых лепестках – разрешено, а границы между этими областями – пороги туннелирования. Прямые $n_t = 0$ и $n_b = 0$ описывают положения точек электронейтральности верхнего и нижнего BLG. Отметим, что любые линии, параллельные линиям $n_t = 0$ ($n_b = 0$) будут отвечать условию $n_t = \text{const}$ ($n_b = \text{const}$), а диагонали карты отвечают условиям $n_t = n_b$ ($n_t = -n_b$). Подавление туннелирования в фиолетовых областях вблизи этих линий на краях карты связано с запретом туннельных переходов из-за отсутствия пересечений колец, вложенных друг в друга, при больших V_{tg}, V_{bg} (см. дополнительные материалы, рис. S2с). Данная карта посчитана в соответствии с упрощенной электростатической моделью, не учитывающей непараболичность низкоэнергетических зон BLG и появление щели между валентной зоной и зоной проводимости при наличии перпендикулярного слоев электрического поля. Несмотря на упрощения электростатической модели она хорошо описывает границы туннелирования на экспериментально измеренной карте проводимости в координатах (V_{tg}, V_{bg}) при $V_d = 0$.

Измеренная нами карта проводимости dI/dV_d (V_{tg}, V_{bg}) представлена на рис. 3 и дает информацию о процессах туннелирования между слоями BLG в нашей системе. Небольшие максимумы проводимости вблизи порогов туннелирования по периметру центральной темно-синей области обусловлены “геометрическим” эффектом локального роста числа состояний, участвующих в туннелировании после момента соприкосновения колец на дисперсионных параболах, аналогично наблюдавшемуся в работах [13, 14]. Разрезы карты вдоль диагоналей,

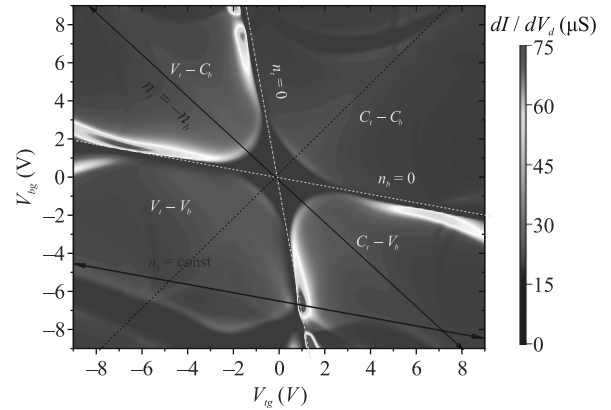


Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальная карта проводимости dI/dV_d (V_{tg}, V_{bg}), где лепестки $C_t - C_b$, $V_t - V_b$ и т.д. соответствуют туннелированию между состояниями в проводящих и валентных зонах в верхнем и нижнем BLG

демонстрирующие такие локальные максимумы, показаны в дополнительных материалах SM3. Темно-синие полосы низкой проводимости в глубине лепестков (например при $V_{bg} \sim -7$ В) отражают появление щели вблизи второй точки Дирака, вследствие взаимной ориентации BLG и подзатворных hBN на 1 и 3 градуса соответственно, что подтверждено нашими магнитотуннельными измерениями. Однако данные эффекты лежат за рамками данной работы и будут обсуждаться нами в дальнейшем.

Совершенно неожиданным на карте рис. 3 оказались области аномально-высокой проводимости на краях лепестков, которые не могут быть описаны рассмотренной выше электростатической моделью и простой картиной пересечения поверхностей Ферми, и являются предметом данного исследования. Следует сразу отметить, что такие аномальные всплески проводимости расположены ассиметрично относительно линий $n_t = 0$ и $n_b = 0$, когда туннелирование происходит между электронными состояниями вблизи точки электронейтральности одного BLG и состояниями в глубине валентной зоны или зоны проводимости другого BLG. Как будет показано ниже, они обусловлены проявлением сингулярностей ван Хова на границах зоны проводимости и валентной зоны, образующихся в первом BLG в поперечном электрическом поле и локализованных в одном из двух монослоев этого BLG. Аномальность наблюдаемого эффекта ярко демонстрируется разрезом карты вдоль линии $n_b = 2.3 \times 10^{12}$ см⁻² (синяя кривая на рис. 4а). Для сравнения штриховой линией показан разрез карты вдоль электрон-дырочной диагонали, демонстрирующий слабые максимумы на гра-

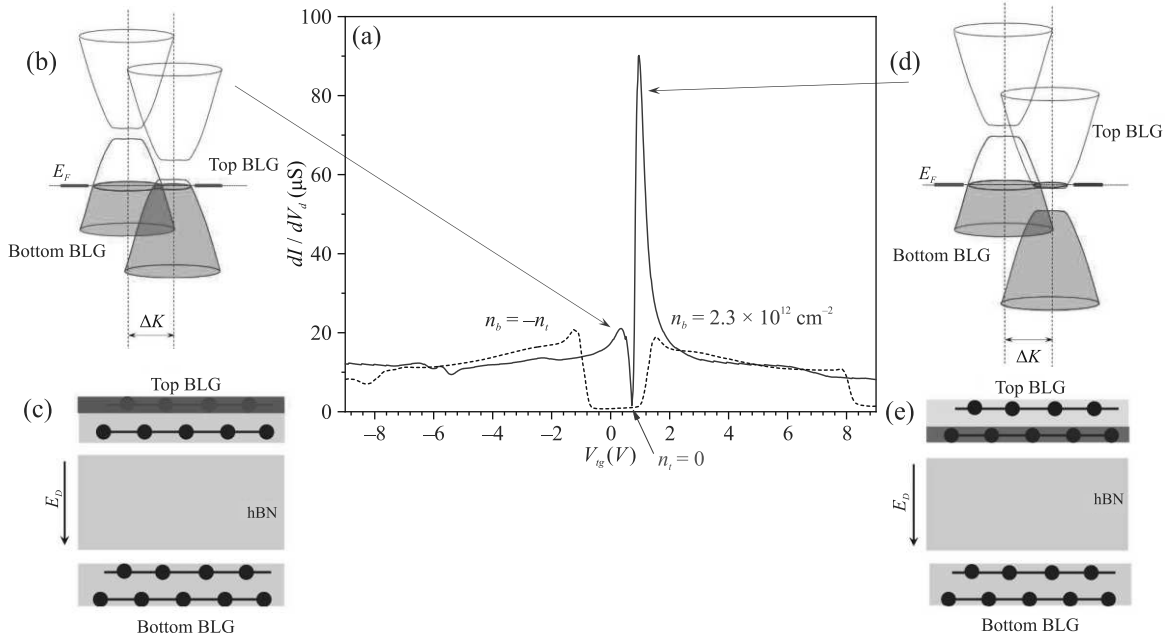


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Разрез карты с рис. 3 вдоль $n_b \sim 2.3 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$ – синяя линия, вдоль диагонали $n_t = -n_b$ – штриховая линия; (b), (c) – взаимное расположение зон и схема слоев структуры при туннелировании с участием локализованной вдали от барьера *hBN* сингулярности ван Хова в верхнем BLG (локализация показана интенсивным красным цветом); (d), (e) – взаимное расположение зон и схема слоев структуры при туннелировании с участием локализованной вблизи от барьера *hBN* сингулярности ван Хова в верхнем BLG (показана интенсивным синим цветом)

ницах области туннелирования, обсужденные нами выше.

Чтобы понять природу этого эффекта, следует сначала рассмотреть влияние поперечного электрического поля на зонную структуру двухслойного графена при низких энергиях вблизи точки электронейтральности [1, 5–8, 15–17]. В отсутствие поля в чистом двухслойном графене низкоэнергетические валентная зона и зона проводимости часто вполне удовлетворительно описываются двумя параболоидами, соприкасающимися в точке электронейтральности, как, например, показано на рис. 2a, b. Приложение поперечного слоям электрического поля приводит к образованию запрещенной зоны между ними и модификации дисперсии их низкоэнергетических краев в подобие “мексиканской шляпы” [2, 6]. Такое уплотнение дисперсионных поверхностей (см., например, рис. 4b, d) в свою очередь порождает две сингулярности ван Хова в плотности состояний на краях зоны проводимости и валентной зоны. Более того, теоретически было предсказано, что эти две окологорловые сингулярности ван Хова в плотности состояний на краях валентной зоны и зоны проводимости будут пространственно локализованы только в одном из двух монослоев BLG [5, 7, 17]. Однако, при этом

параболическая дисперсия электронов в BLG быстро восстанавливается при удалении от точки электронейтральности. Таким образом, при указанном направлении поля в нашей экспериментальной системе, схема которой представлена на рис. 4, в верхнем BLG сингулярность на краю валентной зоны будет локализована в дальнем от *hBN* барьера монослое (рис. 4c), а сингулярность на краю электронной зоны – на ближнем к барьеру монослое (рис. 4e). При этом, как теоретически рассматривалось в [11, 12], туннелирование из состояний дальнего от барьера монослоя BLG будет существенно подавлено и основной вклад в проводимость вносит ближайший к туннельному барьеру монослой. Поэтому преимущественная локализация сингулярностей ван Хова на одном из двух монослоев BLG имеет большое значение для объяснения наблюдаемого нами эффекта.

Таким образом, с учетом сказанного выше, резкий пик проводимости на синей кривой рис. 4a, отражающий сечение яркой области на правой границе нижнего правого лепестка $C_t - V_b$ карты на рис. 3 (в окрестности $V_{tg} = 1 \text{ В}$, $V_{bg} = -6.7 \text{ В}$), обусловлен доминирующим вкладом в проводимость сингулярности ван Хова, локализованной в ближайшем к барьеру монослое верхнего BLG. Действительно,

в этих условиях туннелирование происходит между валентной зоной нижнего BLG и самым краем зоны проводимости верхнего BLG с сингулярностью ван Хова, так что оно соответствует схеме, представленной на рис. 4d, е. При этом электронные состояния на уровне Ферми верхнего BLG, относящиеся к сингулярности ван Хова, локализованы на ближайшем к барьеру (нижнему) графеновом монослое (на рис. 4е такая локализация состояний показана насыщенным синим цветом). В то же время участвующие в туннелировании состояния валентной зоны нижнего BLG находятся вдали от точки электронейтральности (концентрация $n_b = 2.3 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$ получена нами из измерений магнитоосцилляций равновесной туннельной проводимости из-за квантования Ландау, которые здесь не приводятся), где дисперсия почти не искажена влиянием поля, а плотность состояний монотонна [9, 16]. С другой стороны, слабый пик проводимости на синей кривой рис. 4а соответствует условиям, представленным на рис. 4b, с, когда в туннелировании участвуют электронные состояния в верхнем BLG, располагающиеся на сингулярности ван Хова на краю валентной зоны. Волновые функции этих состояний локализованы в графеновом монослое, удаленном от барьера (показано на рис. 4с насыщенным красным цветом), и туннелирование с таких состояний подавлено [11, 12]. Отметим, что отсутствие видимого влияния запрещенной зоны на расстояние между пиками на синей кривой рис. 4а обусловлено тем, что с изменением затворного напряжения сканируется концентрация n_t , а не энергия, и интервал запрещенной зоны проходит практически мгновенно при $n_t \approx 0$ (см. [9]). Аналогичные проявления послойно локализованных сингулярностей ван Хова на всех остальных порогах туннелирования экспериментальной карты с рис. 3 детально представлены в дополнительных материалах SM4-9 и качественно соответствуют описанной выше модели туннелирования.

Как результат, мы обнаружили аномальное поведение туннельной проводимости в макроскопических вертикальных вандерваальсовских гетероструктурах на основе двухслойного графена, обусловленные проявлением сингулярностей ван Хова на краях зоны проводимости и валентной зоны вблизи щели, открывающейся в двухслойном графене под влиянием перпендикулярного слоям электрического поля. Показано, что резкая асимметрия всплесков туннельной проводимости по разные стороны точек электронейтральности свидетельствует о пространственной локализации сингулярностей ван Хова в различных монослоях двухслойного графе-

на, в зависимости от направления электрического поля.

Е. Е. Вдовин выражает благодарность М. Т. Гринуэй (M. T. Greenaway) (School of Physics and Astronomy, University of Nottingham, Nottingham NG7 2RD, UK) за помощь на начальном этапе работы над статьей.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 23-12-00115).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляет, что у них нет конфликта интересов.

1. E. McCann, Phys. Rev. B **74**, 161403(R) (2006).
2. E. McCann and V. I. Fal'ko, Phys. Rev. Lett. **96**, 086805 (2006).
3. H. Min, B. Sahu, S. K. Banerjee, and A. H. MacDonald, Phys. Rev. B **75**, 155115 (2007).
4. E. K. Yu, D. A. Stewart, and S. Tiwari, Phys. Rev. B **77**, 195406 (2008).
5. A. Ramasubramaniam, Nano Lett. **11**(3), 1070 (2011).
6. T. Ohta, A. Bostwick, Th. Seyller, K. Horn, and E. Rotenberg, Science **313**(5789), 951 (2006).
7. K. Su Kim, T.-H. Kim, A. L. Walter, Th. Seyller, H. W. Yeom, E. Rotenberg, and A. Bostwick, Phys. Rev. Lett. **110**, 036804 (2013).
8. F. Joucken, C. Bena, Zh. Ge, E. A. Quezada-Lopez, F. Ducastelle, T. Tanagushi, K. Watanabe, and J. Velasco, Jr., Phys. Rev. Lett. **127**, 106401 (2021).
9. S. C. de la Barrera, S. Aronson, Zh. Zheng, K. Watanabe, T. Taniguchi, Q. Ma, P. Jarillo-Herrero, and R. Ashoori, Nat. Phys. **18**, 771 (2022).
10. A. M. Seiler, F. R. Geisenhof, F. Winterer, K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Xu, F. Zhang, and R. Th. Weitz, Nature **608**, 298 (2022).
11. T. L. M. Lane, J. R. Wallbank, and V. I. Fal'ko, Appl. Phys. Lett. **107**, 203506 (2015).
12. J. J. P. Thompson, D. J. Leech, and M. Mucha-Kruczynski, Phys. Rev. B **99**, 085420 (2019).
13. J. P. Eisenstein, T. J. Gramila, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. B **44**, 6511 (1991).
14. L. Zheng and A. H. MacDonald, Phys. Rev. B **47**, 10619 (1993).
15. Y. Zhang, T.-T. Tang, C. Girit, Zh. Hao, M. C. Martin, A. Zettl, M. F. Crommie, Y. R. Shen, and F. Wang, Nature **459**, 820 (2009).
16. K. Lee, B. Fallahazad, J. Xue, D. C. Dillen, K. Kim, T. Taniguchi, K. Watanabe, and E. Tutuc, Science **345**(6192), 58 (2014).
17. E. Icking, L. Banszerus, F. Wortche, F. Volmer, Ph. Schmidt, C. Steiner, S. Engels, J. Hesselmann, M. Goldsche, K. Watanabe, T. Taniguchi, Ch. Volk, B. Beschoten, and Ch. Stampfer, Adv. Electron. Mater. **8**(11), 2200510 (2022).