Письма в ЖЭТФ, том 108, вып. 9, с. 674 – 686

Резонансно-туннельные явления в многослойных вандерваальсовских двумерных кристаллических системах

Е. Е. Вдовин[1], *Ю. Н. Ханин*

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

Поступила в редакцию 11 сентября 2018 г.

После переработки 14 сентября 2018 г.

Представлен краткий обзор работ, в основном экспериментального характера, освещающих наиболее интересные, на наш взгляд, аспекты применения метода резонансно-туннельной спектроскопии к новому типу гетеросистем – вандерваальсовых гетероструктур, появившихся в результате недавнего открытия двумерных кристаллов – нового класса материалов, родоначальником которого является графен. Рассмотрена роль углового согласования кристаллических решеток проводящих графеновых электродов вандерваальсовых систем в процессах туннелирования носителей между ними, и тесно связанные с этим вопросы выполнения законов сохранения при туннельных переходах. Кратко обсуждены проявления многочастичных корреляционных взаимодействий носителей в вандерваальсовских системах, таких как вигнеровская кристаллизация электронов в двумерном электронном газе в магнитном поле и бозе-конденсация экситонов в параллельных двумерных электронных газах.

DOI: 10.1134/S0370274X18210142

Введение. Резонансно-туннельная спектроскопия (РТС) уже давно и надежно зарекомендовала себя в качестве высокочувствительного и разностороннего метода исследований как свойств полупроводниковых гетеросистем (и материалов составляющих их слоев), так и разнообразных квантовомеханических явлений в таких системах. Количество работ по РТС огромно, поэтому здесь мы отметим лишь малую их часть, наиболее интересную, с нашей точки зрения, и полезную для дальнейшего изложения [1–7]. Совершенно естественно, что с появлением нового класса двумерных материалов с нетрадиционным для полупроводников электронным спектром, начиная с графена, а вернее, конечно, с момента реализации гетероструктур на основе этих двумерных кристаллов (вандерваальсовых гетероструктур), РТС была тут же востребована для их изучения.

Прежде чем приступать к описанию работ по туннелированию в вандерваальсовых гетероструктурах, нам кажется необходимым хотя бы вкратце коснуться физических свойств двумерных кристаллов на примере их родоначальника – графена [8]. Кристаллическая решетка графена состоит из шестиугольников, т.е. является двумерной гексагональной кристаллической решеткой, и может быть представлена в виде совокупности двух наложенных двух на друга решеток Бравэ, имеющих элементарную ячейку в форме параллелограмма. При этом полная волновая функция электронов кристалла может быть представлена в виде линейной комбинации волновых функций электронов из разных подрешеток. Такая ситуация обычно описывается дополнительным квантовым числом – псевдоспином.

Спектр носителей тока в графене устроен так, что электронная и дырочная зоны соприкасаются в углах шестиугольной зоны Бриллюэна. В зоне Бриллюэна есть две независимые ветви спектра, каждая из которых имеет вид $E = \hbar v_{\mathrm{F}} k$, где волновой вектор k отсчитывается от точки касания, а скорость v_{F} имеет порядок 10^8 см/с. Такой спектр называют безмассовым и носители при этом описываются уравнением Дирака. Кроме того, графен является двухдолинным полуметаллом, т.е. для описания состояний носителей достаточно рассматривать лишь два соседних угла в шестиугольной зоне Бриллюэна, и уравнение Дирака должно быть модифицировано для учета электронов и дырок из разных долин (K, K′).

Последовательность изложения в данном тексте следует преимущественно за исторической хронологией усовершенствования вандерваальсовых гетероструктур – от систем со случайно ориентированными проводящими и барьерными слоями к хорошо согласованным (менее 2 град) и, затем, к исследованиям влияния контролируемой разориентации на свойства вандерваальсовых гетероструктур. Отклонения от этого в каждом случае будут оговариваться отдельно.

[1]e-mail: vdov62@yandex.ru

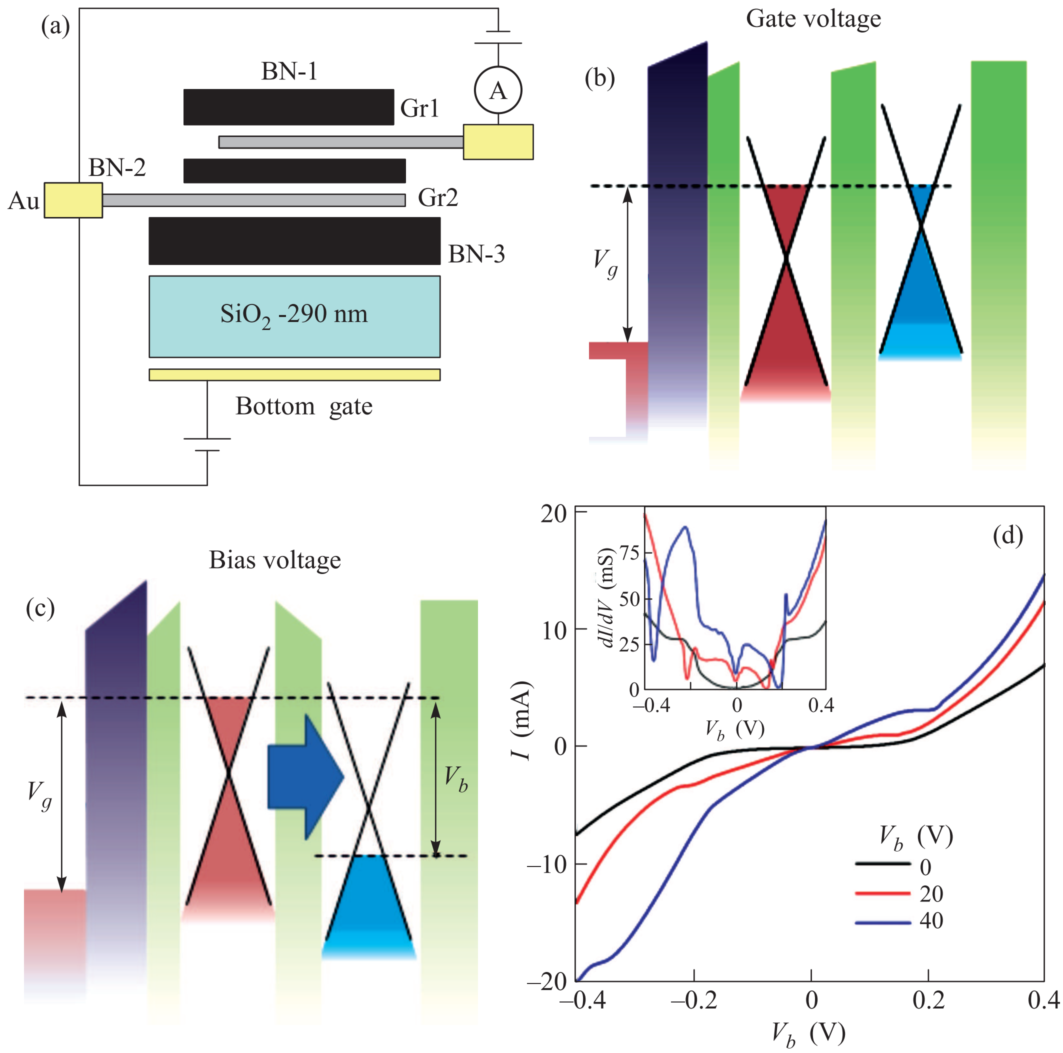

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схематическое изображение измерительной цепи и экспериментальной гетероструктуры Gr/hBN/Gr. (b), (c) – Схематическое представление влияния V_g и V_b на заполнение носителями конусов в графеновых слоях и на туннельный ток. (d) – Туннельные характеристики, $I - V_b$, при $V_g = 0$, 20 и 40 В, на вставке зависимости $dI/dV_b - V_b$, очевидные минимумы которых соответствуют моментам совпадения химических потенциалов с точками электронейтральности в слоях. (По результатам работ [9, 12].)

Часть 1. Вандерваальсовские гетероструктуры с произвольно разориентированными слоями и процессы туннелирования без сохранения импульса. Полевой туннельный транзистор на основе вертикальной структуры из двух слоев графена, разделенных диэлектриком. При первых попытках реализации многослойных вертикальных вандерваальсовских гетероструктур не было понимания важной роли степени углового рассогласования кристаллических решеток проводящих графеновых слоев на межслоевую туннельную проводимость (что будет обсуждено ниже) и структуры изготавливались из случайным образом ориентированных друг относительно друга графеновых чешуек. Кроме того, такой упрощенный подход в первых работах был обусловлен значительными технологическими трудностями реализации контролируемого процесса углового согласования кристаллических решеток, составляющих гетероструктуру слоев. Наиболее важным результатом этих первых попыток явилось создание полевого туннельного транзистора на основе гетеросистем из двух слоев механически отслоенного графена, разделенных атомарно тонкими барьерами из гексагонального нитрида бора (h-BN) или дисульфида молибдена (MoS_2), положенных на подложки из высоколегированного окисленного кремния Si/SiO_2, выполняющие роль затвора [9]. В таких транзисторах были достигнуты ве-

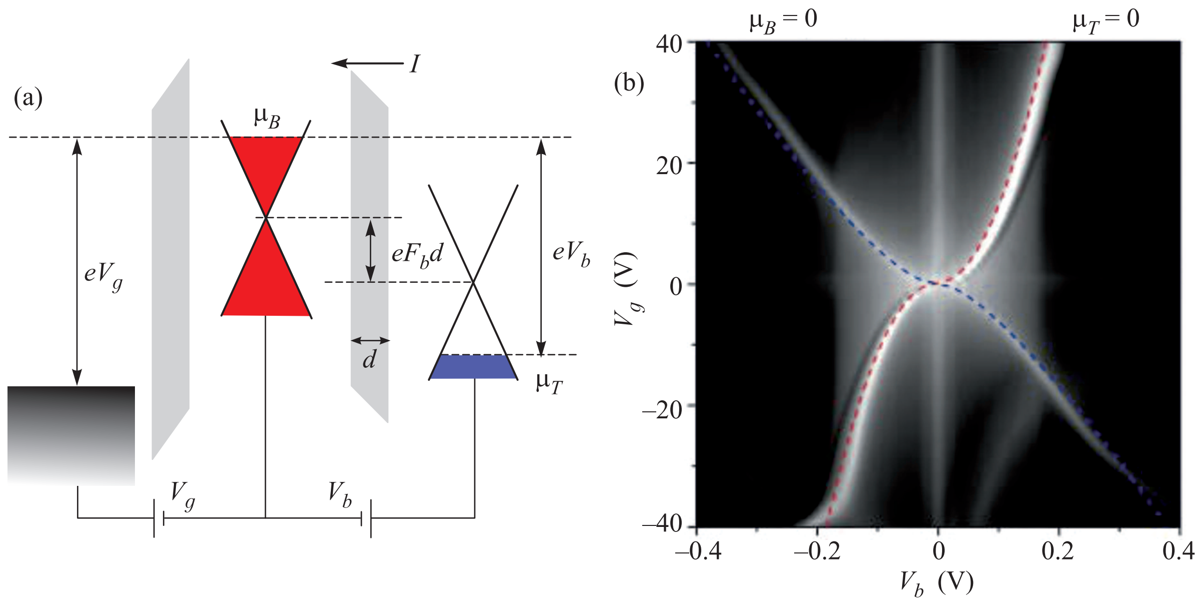

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зонные диаграммы в моменты совпадения химических потенциалов μ_{T} и μ_{B}B с точками электронейтральности в верхнем и нижнем слоях (a) и соответствующая карта проводимости, где синяя пунктирная линия отвечает минимумам проводимости при совпадениях μ_{B}, а красная – μ_{T} (b). (По результатам работ [12, 13].)

личины отношения проводимости между графеновыми слоями в открытом и запертом состояниях 50 и 10^4, соответственно, что дало некоторые надежды на возможность их практического применения, которые полностью отсутствовали для планарных графеновых систем из-за отсутствия запрещенной зоны в графене.

Схематически активная область экспериментальной гетеросистемы графен (Gr)/нитрид бора (h-BN)/графен (Gr) и измерительная цепь представлены на рис. 1a, где не показаны два дополнительных слоя BN. Нижний слой BN, лежащий на слое SiO_2, использовался для увеличения подвижности носителей в листах Gr, а верхний, покрывающий всю структуру, для защиты от влияния атмосферы, поскольку графен чрезвычайно чувствителен к химическому легированию.

Туннельные вольт-амперные характеристики (ВАХ) представляли собой экспоненциальные зависимости, показанные на рис. 1d, и были обусловлены туннельными переходами электронов из заполненных в пустые состояния дираковских конусов в верхнем $\mathrm{Gr_B}$ и нижнем $\mathrm{Gr_T}$ слоях без сохранения компоненты импульса вдоль слоев [9], как показано на рис. 1c и 2a. Из-за низкой плотности состояний вблизи точки Дирака, которая также является точкой электронейтральности, уровнем Ферми можно управлять в широких пределах с помощью внешнего затвора. Даже при фиксированном межслойном напряжении смещения, повышая и понижая уровень Ферми слоев графеновых электродов внешним затвором, можно эффективно контролировать количество занятых катодных электронных состояний и доступных анодных электронных состояний для туннелирования и, таким образом, величину межслоевого туннельного тока.

В такой ситуации туннельный ток описывается соотношением:

$$I(V) \propto \int dE DoS_{\mathrm{B}}(E) DoS_{\mathrm{T}}(E-eV) T(E) \times$$
$$\times \left[f(E-eV) - f(E) \right],$$

где $f(E)$ – функция распределения Ферми, DoS_i – плотности состояний в слоях. Авторы [9] полагали, что вдольслоевая составляющая импульса не сохраняется при туннелировании из-за рассеяния на интерфейсах графен/нитрид бора, хотя предположение и оказалось неверным, как будет видно из дальнейшего изложения. Изменение затворного напряжение V_g меняло концентрацию носителей в слоях, преимущественно в нижнем, и приводило к изменению туннельного тока, как видно из рис. 1b, d. Как уже указывалось, в данных работах совершенно не учитывалась роль угловой разориентации слоев в туннелировании, важность и механизм влияния которой на туннельные переходы стала осознаваться лишь несколько позднее [10]. Связь между разориентацией

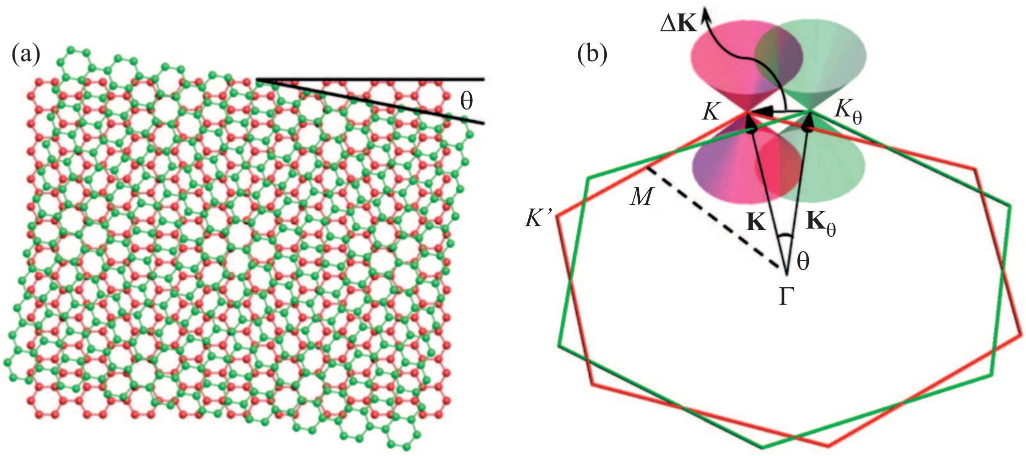

Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Схематическое изображение рассогласованных на угол θ решеток верхнего и нижнего листов графена. Барьерный слой hBN между графеновыми электродами не показан. (b) – Отражение такого рассогласования в k-пространстве. (По результатам работы [11].)

и туннелированием между слоями была позднее объяснена моделью, представленной на рис. 3 и 4. Вследствие того, что дираковские конуса расположены в точках K или K$'$ на краю зоны Бриллюэна, то даже небольшое угловое смещение решетки одного слоя Gr относительно другого приводит к значительному сдвигу конусов, соответствующих каждому из слоев, в k-пространстве и, следовательно, уменьшению их пересечения, определяющего число состояний, доступных для туннельных переходов между слоями с сохранением компоненты импульса вдоль слоев. В результате при не очень больших концентрациях носителей, актуальных в большинстве экспериментов, туннелирование с сохранением импульса оказывается невозможным без участия процессов рассеяния. Однако, при этом такие рассогласованные структуры дали возможность изучить неупругие туннельные переходы с участием фононов или локализованных состояний в барьерных слоях.

Прежде чем описывать эксперименты по туннелированию в таких системах, полезно будет рассмотреть особенности электростатической модели графенового туннельного транзистора, обусловленные спецификой зонной структуры графена и частичной экранировкой электрического поля затвора вблизи точки электронейтральности, представленные в [9, 11]. В рамках этой модели связь между химическими потенциалами слоев μ_i, концентрациями n_i и напряжениями V_g и V_b описываются следующей системой уравнений

$$eV_b = \mu_{\mathrm{B}} - \mu_{\mathrm{T}} - \Delta\varphi,$$

$$eV_g = \mu_{\mathrm{B}} + e^2 D(n_{\mathrm{B}} + n_{\mathrm{T}})/\varepsilon\varepsilon_0,$$

где D – общая толщина SiO_2 и hBN подслоя, d – толщина hBN туннельного барьера, для монослоя графена химический потенциал $\mu_i = \pm\hbar v_{\mathrm{F}}(\pi|n_i|)^{1/2}$, $\Delta\varphi = e^2 d n_{\mathrm{T}}/\varepsilon\varepsilon_0$ – разность энергий между точками электронейтральности верхнего и нижнего слоев графена. Решения этой этой системы уравнений позволяет определить моменты пересечения химических потенциалов μ_i с точками электронейтральности в слоях в координатах V_g и V_b (показаны штриховыми линиями на рис. 2b на трехмерной карте туннельной проводимости, проявляющиеся как линии минимумов проводимости. Эти решения точно определены для каждого конкретного транзистора с заданными толщинами диэлектрических слоев D и d и являются основой для дальнейшей идентификации любых других особенностей карт туннельной проводимости.

Изучение неупругого туннелирования в разориентированных гетеросистемах Gr/h-BN/Gr позволило определить спектр фононных плотностей состояний слоев, составляющих гетеросистему [12]. Экспериментальные зависимости проводимости от V_b демонстрировали серии особенностей с хорошей точностью описываемых расчетом, учитывающем фононные плотности состояний монослоев графена и барьера и, таким образом отражающие вклад в туннельную проводимость неупругих туннельных переходов, которые разрешены только тогда, когда разность химических потенциалов в нижнем и верхнем слоях графена превышает энергию фонона, что, в свою очередь, соответствует напряжению смещения отдельного конкретного резонансного пика в проводимости.

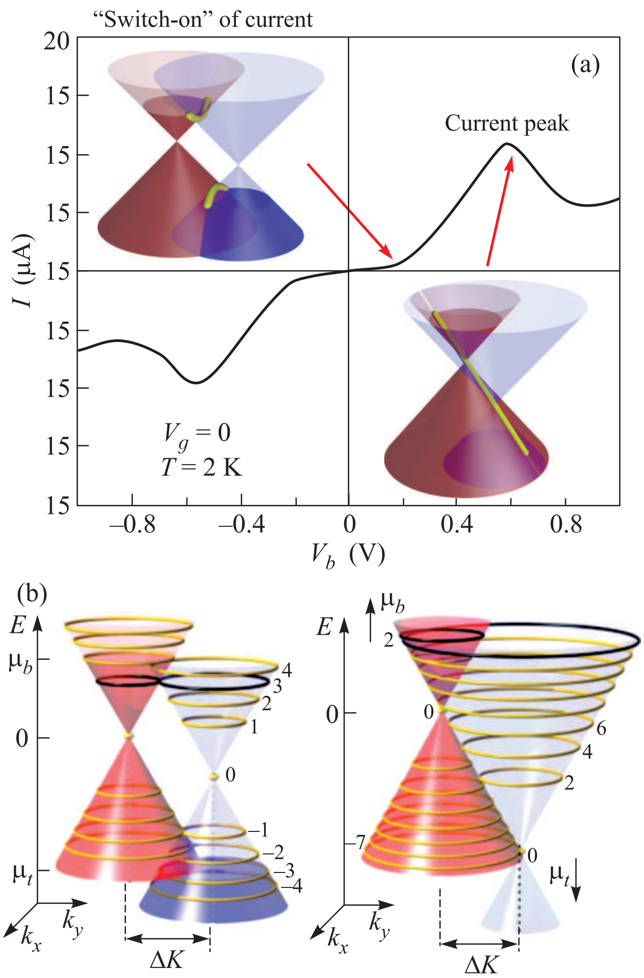

Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Экспериментальная ВАХ туннельной структуры Gr/hNB/Gr при $V_g = 0$ и $B = 0$ и малом угловом рассогласовании решеток $\theta \sim 1.8^\circ$. На вставках показаны пересечения дираковских конусов верхнего (синий) и нижнего (красный) слоев графена, соответствующие порогу туннелирования и пику тока на ВАХ. (b) – Схематическое изображение межслойного туннелирования в условиях квантования Ландау и режиме широкого окна туннельной проводимости. (По результатам работы [23].)

Туннелирование с участием локализованных состояний в вандерваальсовских структурах исследовано в работах [13, 14] для случаев систем металл/h-BN/металл и металл/h-BN/Gr, в которых серии туннельных резонансов на экспериментальных ВАХ были объяснены переходами через нульмерные состояния дефектов кристаллической структуры h-BN барьера. Этот результат позволил надеяться на реализацию в будущем экспериментов по исследованию особенностей плотностей состояний двумерных проводящих слоев в вандерваальсовских структурах с использованием нульмерного состояния в качестве сканера, аналогично ранним работам в полупроводниковых гетероструктурах [6, 7].

Часть 2. Вандерваальсовские гетероструктуры с ориентированными слоями и процессы туннелирования с сохраненем импульса. В теоретической работе [15] было предсказано, что при туннелировании между идеально согласованными слоями графена на ВАХ должен наблюдаться острый резонасный пик тока с областью отрицательной дифференциальной проводимости, обусловленный тунельными переходами с сохранением как импульса, так и энергии. Кроме того, было продемонстрировано сильное влияние на туннелирование рассогласования между верхним и нижним слоями в графеновой системе. Показано, что проводимость в условиях резонанса является резкой функцией угла рассогласования решеток верхнего и нижнего электродов. В результате чего, узкий и высокий резонанс для идеально сориентированных электродов при разориентации даже на десятые доли градуса должен уширяться и пиковое значение тока уменьшается [15, 16].

Однако для экспериментальной проверки этого предсказания потребовалось приложение большого количества технологических усилий. Поскольку в графене носители заполняют K-точки зоны Бриллюэна, то критическим препятствием для изготовления такой резонансно-туннельной графен/барьер/графен системы оказалось достижение довольно высокой степени углового выравнивания между двумя слоями графеновых электродов. Действительно, на практике оказалось, что достаточно лишь нескольких градусов углового рассогласования для эффективного подавления резонансного туннелирования с сохранением импульса и энергии. Первоначально способ установления вращательного выравнивания между слоями графена заключался в визуальном нахождении прямых краев отслаиваемых графеновых чешуек и выравнивании слоев во время переноса в надежде, что такой край окажется одной и той же кристаллографической ориентации для обеих чешуек. Позднее было показано, что путем такого тщательного визуально-механического совмещения чешуек во время процесса переноса можно достичь углового выравнивание не лучше чем 1.5–2° [10]. Развитие метода изготовления резонансных вандерваальсовских графен/барьер/графен системы с использованием полимерных полусферическим штампов для переноса чешуек позволило улучшить степень углового согласования до 0.1° [17].

Несмотря на уже существовавшее к тому времени предсказание [15], первый эксперимент, в котором наблюдалась область отрицательной дифференциальной проводимости при туннелировании в вандерваальсовской графен/барьер/графен системе, использовал модель, где в качестве основной ее причины предполагались процессы рассеяния с особой (экзотической) колоколообразной формой рассеивающего потенциала [18] и игнорировалось разрушающее влияние разориентации на резонанс. Природа такого потенциала при этом осталась не проясненной. Делались предположения, что такой потенциал рассеяния может возникнуть, например, от ионизированных примесей, рассогласования графенового и барьерного слоев или флуктуаций электронной плотности. Утверждалось, что в первом приближении потенциал рассеяния $VS(q)$ сводится к виду, в котором угловая разориентация двух слоев графена проявляется только как множитель перед интегралом рассеяния. Поэтому разориентация уменьшает только общую амплитуду туннельного тока, но не его функциональную зависимость от V_b или V_g. Фактически, в таком случае, кроме небольшого уменьшения вероятности туннелирования из-за разориентации, влияние потенциала рассеяния на V_b- и V_g-зависимость туннельного тока аналогично тому, как если бы два слоя графена были идеально сориентированы. Иными словами, на основании теоретического анализа утверждалось, что относительное вращение слоев графена не влияет на форму кривой $I(V_b)$ для любого V_g, хотя и корректирует величину туннельного тока.

В следующей же работе этих авторов [10] взгляд на резонансное туннелирование в таких структурах был пересмотрен. Более того, по сути эта работа была посвящена подтверждению концепции резонансного туннелирования в вандерваальсовских графен/барьер/графен системах, изложенных в теоретических работах [15, 16]. И если в предыдущей работе авторов [18] угловое согласование, достаточное для наблюдения области отрицательной дифференциальной туннельной проводимости, было достигнуто, вероятно, случайным образом (в работе нет никаких упоминаний о предпринимавшихся попытках согласования кристаллических решеток графеновых слоев в процессе изготовления образцов), то в новой работе этому было уделено особое внимание и представлена методика углового совмещения с точностью до $1{-}2^{\circ}$, с помощью которой и были изготовлены экспериментальные туннельные структуры на основе графена и нитрида бора. В результате в экспериментальной системе туннельный ток между графеновыми слоями управлялся напряжением смещения между ними и напряжением на нижележащем электроде из легированного кремния, играющего роль затвора. Эксперимент подтвердил, что туннельная проводимость таких гетероструктур критически зависят от относительной ориентации кристаллических решеток составляющих их атомных слоев вследствие влияния правила отбора для сохранения внутрислоевых импульсов туннелирующих электронов. Причина такой резкой зависимости заключается в том, что рассогласование двух решеток графена всего на несколько градусов приводит к значительному смещению соответствующих им дираковских конусов в импульсном пространстве (см. рис. 3 и 4a). Ток между графеновыми электродами определяется вероятностью туннельных переходов электронов, которая зависит от длины линии пересечения дираковских конусов в смежных слоях графена. Взаимное же расположение дираковских конусов зависит от угла рассогласования кристаллических решеток графена и вдобавок может управляться напряжением V_b. В узком диапазоне V_b пересечение конусов максимально. Таким образом, вольт-амперные характеристики имеют резонансный пик и область с отрицательным дифференциальным сопротивлением (см. рис. 3c и 4a). Теоретическое моделирование работы такого транзистора на основе работ [15, 16, 19] полностью совпало с экспериментальными вольт-амперными характеристиками, выявив характерные особенности, связанные с совпадением дираковской точки в одном из графеновых слоев с краями зон или дираковской точкой в другом графеновом слое.

Помимо демонстрации резонансного туннелирования, авторы показали, как при приложении магнитного поля вплоть до $B = 15$ Т параллельно плоскости графена (перпендикулярно течению туннельного тока в образце), зонная структура одного слоя может эффективно сдвигаться в пространстве импульсов относительно другого вследствие действия силы Лоренса на величину eBd, где d – дистанция туннелирования, приводя к изменению условий резонанса, и, следовательно, вызывать изменение резкости соответствующего пика в токе. Причем, расчеты предсказывали, что при этом, вследствие исчезновения эквивалентности условий резонанса для всех 6 пар дираковских конусов двух графеновых слоев должно происходить расщепление резонансного пика на 6 отдельных пиков, чего, однако, в эксперименте не наблюдалось, вероятно, из-за их уширения. И только позднее, в эксперименте с подобными структурами в магнитном поле до 30 Т удалось зарегистрировать такое расщепление резонанса [20]. В этой работе показано, что вращение направления приложенного магнитного поля в плоскости образца приводило к периодическому изменению резонансных условий для всех шести пар конусов в углах зоны Бриллюэна, а значение V_b, соответствующее резонансу в каждом конкретном углу, является синусоидальной функцией угла α между B и выделенным кристаллографическим направлением решетки графена. При этом для согласования экспериментальных значений амплитуд этих парциальных резонансов с расчетами, в отличие от похожих экспериментов по туннелированию в полупроводниковых двумерных системах [21], пришлось учитывать хиральную природу волновых функций, обусловленную существованием двух подрешеток в кристаллической структуре графена. Это проверялось путем прямого сравнения экспериментальных данных с расчетными предсказаниями, как учитывающими хиральную природу волновых функций, так и игнорирующими ее. В результате, первый тип расчетов показал лучшее согласие с экспериментом и на основании этого авторы говорят о сохранении хиральности при туннелировании. Необходимость учета хиральности при магнитотуннелировании в параллельных двумерных электронных системах была предсказана ранее в теоретической работе [22].

Обратим внимание также на совершенно свежую интересную работу по резонансному туннелированию в вандерваальсовских структурах, состоящих из двух монослоев диселенида вольфрама (WSe_2), разделенных гексагональным нитридом бора, с контролируемым рассогласованием их решеток [23]. Особенностью монослоя WSe_2 является то, что из-за сильного спин-долинного взаимодействия дырочная долина оказывается расщеплена по спину, причем в точках K и K′ это расщепление имеет противоположный знак. При идеальном согласовании решеток наблюдались резкий пик проводимости и область отрицательного дифференциального сопротивления в окрестности нулевого межслоевого смещения вследствии сохранения энергии и импульса. В случае же поворота решеток электродов на 180°, когда напротив точки K одного слоя оказывается зеркально симметричная точка K′ другого, туннелирование полностью подавляется. Эти результаты свидетельствуют о том, что кроме сохранения импульса при туннелировании в вандерваальсовских структурах, сохраняются спин и долина.

Часть 3. Вандерваальсовские гетероструктуры в перпендикулярном слоям магнитном поле. Туннельные переходы между уровнями Ландау в графеновых слоях. Туннелирование в магнитном поле перпендикулярном графеновым слоям, впервые изучалось экспериментально в туннельных структурах с двумя листами однослойного графена, разделенными hBN барьером, и одним (нижним) затвором, роль которого выполняла высоколегированная Si подложка [24]. Магнитное поле при такой ориентации приводило к квантованию движения электронов в плоскости слоев и формированию неэквидистантных дискретных спектров уровней Ландау (УЛ), вследствие принципиального отличия свойств безмассовых дираковских фермионов в графене от носителей в традиционных материалах. Графически УЛ можно представить как окружности на поверхности дираковских конусов (см. рис. 4b), энергетический спектр которых описывается выражением $E = \pm\nu_{\mathrm{F}}(2e\,\hbar|N|\cdot B)^{1/2}$, где $N = 0, \pm1, \pm2$, а ν_{F} – скорость Ферми. Собственные состояния электронов на УЛ графена формируются из двух компонент, одна из которых обусловлена псевдоспинами, а вторая – состояниями, подобными простому гармоническому осциллятору. В этой работе были обнаружены наборы резонансных особенностей туннельных спектров, соответствующие туннельным переходам электронов между УЛ в двух слоях графена, где максимумы тока отражали моменты совпадения заполненных и пустых УЛ в эмиттере и коллекторе, соответственно. Изменение затворного напряжения V_G меняло заполнения УЛ в слоях графена и позволило построить трехмерные карты туннельной проводимости в зависимости от смещающего V_b и затворного V_g напряжений, наглядно визуализующие туннельные переходы между различными наборами УЛ в эмиттере и коллекторе, составляющими интегральный туннельный ток в каждой точке этой карты. Каждая область проводимости на карте соответствует вполне определенным наборам заполненных и пустых УЛ в двух слоях графена, участвующих в туннельных переходах и дающих вклад в ток. Идентификация особенностей профиля карты производилась на основании численных расчетов, учитывающих вклад в проводимость всех УЛ в двух слоях графена, одновременно находящихся в условиях резонанса в окне туннельной проводимости, т.е. в энергетическом интервале между уровнями Ферми в эмиттерном и коллекторном графеновых слоях, между которыми происходит туннелирование, вырезающем из плотностей состояний каждого из слоев именно те их заполненные и пустые части, которые только и могут непосредственно участвовать в туннельных переходах. Экспериментальная ситуация осложнялась в данном случае наличием только одного затвора, что приводило к необходимости приложения больших смещающих напряжений V_b, т.е. использо-

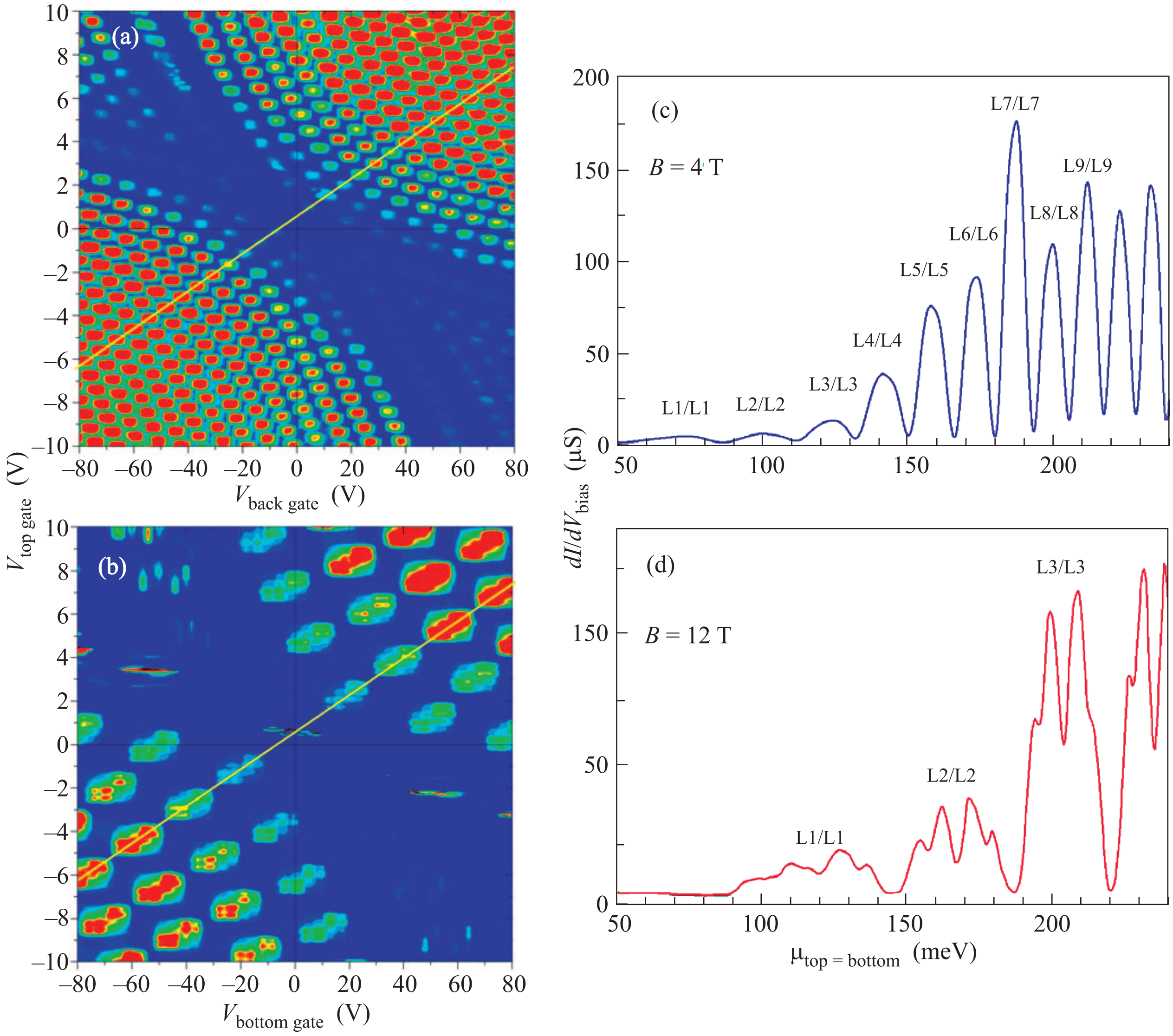

Рис. 5. (Цветной онлайн) Трехмерные карты равновесной туннельной проводимости при $B = 4$ T (a) и $B = 12$ T (b) при температуре $T = 2$ K. Пунктирным линиям соответствует условие равенства концентраций, $n_{\text{top}} = n_{\text{bottom}}$. (c)–(d) – Соответствующие сечения карт равновесной проводимости. На рис. 9d наблюдается расщепление каждого резонансного пика с рис. 9c на 4 из-за снятия вырождения. (По результатам работы [27].)

вания в эксперименте "широкого окна туннельной проводимости", когда в туннелировании участвуют одновременно по нескольку совпадающих по энергии пар УЛ в каждом из графеновых слоев. И хотя расчеты в данном случае показали хорошее совпадение с экспериментальными картами проводимости и позволили даже говорить авторам о сохранении энергии, импульса и хиральности в туннельных процессах, существенно более удобными и однозначными для идентификации и описания туннельных переходов между УЛ, а также обоснованного обсуждения степени соблюдения законов сохранения при этом, были бы двухзатворные структуры, позволяющие независимо управлять концентрацией носителей в каждом из слоев графена. Подобные структуры на основе GaAs уже успешно использовались ранее для изучения равновесного туннелирования между двумерными электронными системами (ДЭС) в узком окне проводимости [25, 26], а в случае туннельных графеновых гетероструктур такой подход позволил селективно исследовать процесс туннелирования между единичными УЛ из каждого слоя, выделенными узким окном проходимости, и принципиально упростил интерпретацию эксперимента. Исследования магнитотуннелирования в узком окне проводимости в двухзатворных графен/нитрид бора/графен структурах были проведены в работах [27, 28]. В результате были построены и идентифицированы трехмерные карты равновесной туннельной проводимости в зависимости от напряжений на обоих затворах, отражающие движение резонансов между различными комбинациями индивидуальных уровней Ландау в верхнем и нижнем слоях графена. Магнитотуннельная спектроскопия переходов между УЛ на такой двухзатворной структуре в условиях равновесной проводимости позволяет не только избавиться от необходимости численных расчетов для идентификации переходов, но и дает однозначную информацию об уширениях УЛ и свойствах волновых функций таких, как, например, роли хиральности при туннелировании. В сильном магнитном поле (>8 T) удалось наблюдать переходы между расщепленными уровнями Ландау с различными индексами, принадлежащими разным графеновым слоям, вследствии снятия вырождения по спину и долине (см. рис. 5). Еще одной интересной особенностью экспериментальных туннельных характеристик была ступенчатая структура карт тока в координатах V_b–V_g с плато и резкими перескоками между ними, обусловленная пиннингом химических потенциалов на уровнях Ландау в двух графеновых слоях.

Неожиданно обнаруженный в эксперименте рост межслоевой туннельной проводимости для переходов между УЛ в сильных магнитных полях при повышении температуры (см. рис. 6) не нашел объяснения в рамках одноэлектронных представлений, и, предположительно, может указывать на проявление кулоновской щели при туннелировании [25, 26], т.е. необходимость учета влияния многочастичных корреляционных взаимодействий, что требует, однако, дополнительных экспериментальных и теоретических исследований.

Часть 4. Многочастичные корреляционные эффекты в вандерваальсовских туннельных гетероструктурах. В данном разделе мы кратко рассмотрим эффекты многочастичных корреляционных взаимодействий носителей в туннельных гетеросистемах с двумя параллельными слоями двумерного электронного газа (ДЭГ), наиболее интересными из которых, на наш взгляд, оказываются проявления вигнеровской кристаллизации электронов в ДЭГ в магнитном поле (кулоновская щель в туннельной плотности состояний) и бозе-конденсации экситонов в параллельных слоях ДЭГ. В полупроводниковых AlGaAs гетероструктурах с двумя квантовыми ямами с ДЭГ вигнеровская кристаллизация уже нашла свое проявление в виде кулоновской щели в туннельной плотности состояний при магнитотуннелировании между ними, т.е. подавления межслоевой туннельной проводимости в сильных магнитных полях вблизи нулевого напряжения смещения. И несмотря на то, что уже было предложено несколько принципиально различных теоретических подходов к описанию кулоновской туннельной щели, мы, вслед за авторами основополагающих экспериментальных работ об этом [25, 26], будем придерживаться в рамках данного текста наглядной качественной модели, не опровергнутой принципиально до настоящего времени, основанной на образовании вигнеровского кристалла в магнитном поле, суть которой состоит в следующем.

В магнитном поле, перпендикулярном ДЭГ, движение электронов внутри слоев ограничивается малыми орбиталями в шкале длин $l_B = (\hbar/eB)^{0.5}$, которая при большом магнитном поле становится меньше среднего расстояния между электронами. Считается, что при достаточно больших магнитных полях ДЭГ образует кристалл Вигнера [29]. При этом еще до образования кристалла Вигнера конфигурация электронов в ближнем порядке напоминает кристаллическое состояние. Когда электрон быстро переходит из одного слоя в другой, он сначала попадает в междоузельное положение такой кристаллической решетки. Поскольку каждый электрон в системе электронов N должен слегка сдвинуться, чтобы разместить новый электрон, система очень медленно релаксирует в новое состояние [30]. Несмотря на то, что существует низкоэнергетическая конфигурация с $\mathrm{N}+1$ электронами, это состояние недоступно для туннелирования, и источник внешнего напряжения должен скомпенсировать затраты энергии на переход через это междоузельное положение. Этот чисто многочастичный эффект проистекает из-за затрат энергии, сопровождающих процесс быстрой экстракции (вырывания) и инжекции (внедрения) пространственно ограниченного магнитным полем электрона в промежуточное положение в сильно коррелированной электронной системе, создаваемой квантованием Ландау [25, 31–33]. Даже если двумерная электронная система является термодинамически бесщелевой (т.е. сжимаемой), в туннельном спектре появляется псевдощель, при условии что процессы инжекции (и экстракции) электрона являются быстрыми по сравнению с временем, требуемым для релаксации флуктуаций плотности заряда двумерных электронных систем. В соответствии с экспериментом величина щели имеет порядок энергии кулоновского взаимодействия электронов в слое 2ДЭГ $e^2/\varepsilon\langle a\rangle$, где $\langle a\rangle = \mathrm{N}^{-1/2}$ – среднее межэлектронное расстояние.

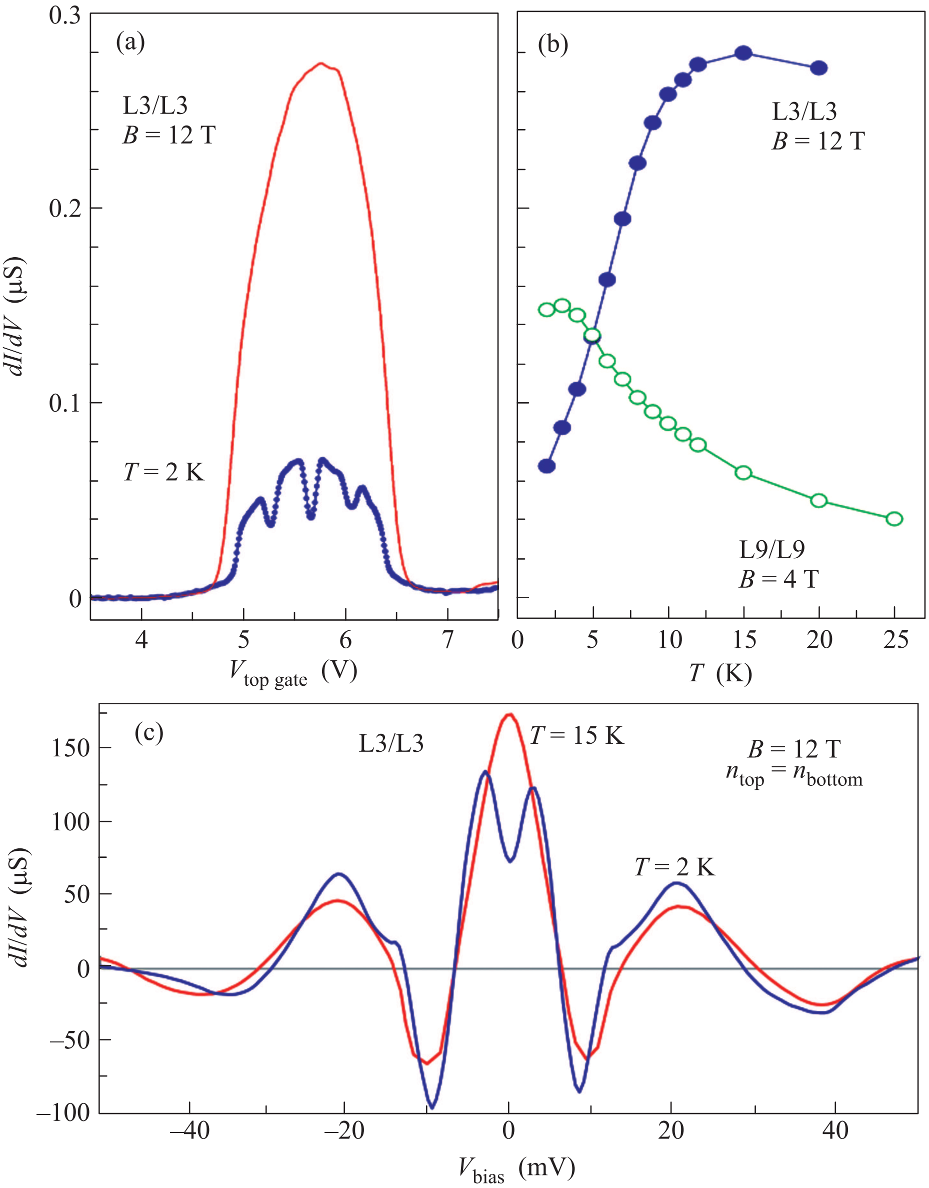

Рис. 6. (Цветной онлайн) (a) – Зависимости туннельной проводимости $dI/dV_{\rm bias}$ от $V_{\rm top}$ gate перехода 3–3 в магнитном поле $B = 12$ Т при $V_{\rm bottom\,gate} = 57$ В, синяя при $T = 2$ К и красная при $T = 15$ К. (b) – Зависимости туннельной проводимости $dI/dV_{\rm bias}$ от температуры при $V_{\rm back\,gate} = 57$ В и $V_{\rm top\,gate} = 5.4$ В при $B = 4$ Т (зеленая) и $B = 12$ Т (синяя). (c) – Эффект подавления туннельной проводимости при $V_{\rm bias} = 0$. (На основе данных из работы [27].)

Несмотря на то, что довольно широко распространено мнение о невозможности существования кристалла Вигнера в графене в отсутствие магнитного поля (см. например, [40, 41]), такая возможность в магнитном поле теоретически предсказана уже достаточно давно и даже описаны разнообразные кристаллические фазы такой системы [42]. Поэтому еще остается реальная надежда на обнаружение эффектов вигнеровской кристаллизации в графеновых системах как в виде туннельной кулоновской щели в магнитном поле.

Конденсация экситонов также уже обнаружила себя в полупроводниковых гетеросистемах с двумя параллельными двумерными электронными газами в сильном магнитном поле как гигантское усиление туннельной проводимости системы [37]. И опять же, несмотря на наличие различных теоретических интерпретаций данного эксперимента, с которыми можно ознакомиться подробно отдельно (см. [38] и цитируемую в работе литературу), следуя за авторами оригинальных экспериментальных работ, мы для

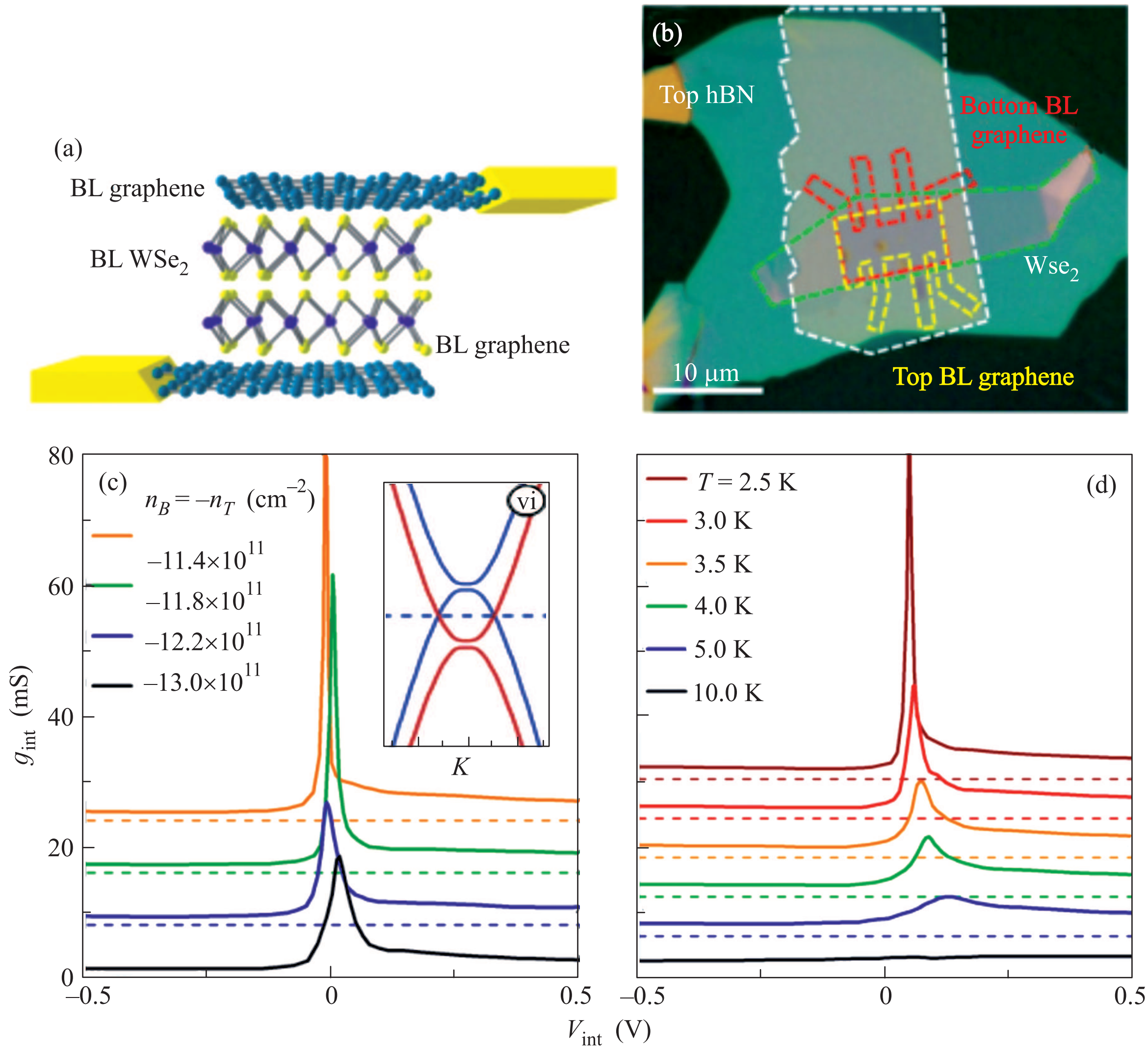

Рис. 7. (Цветной онлайн) (a) – Схематическое изображение слоев туннельной вандерваальсовской системы $2Gr/WSe_2/2Gr$ с двухслойными графеновыми электродами. (b) – Изображение структуры, полученное в оптическом микроскопе, пунктирные линии ограничивают различные активные слоя структуры. (c) – Зависимости туннельной проводимости в узком интервале слоевых концентраций в котором наблюдался всплеск нулевой проводимости. (d) – Эффект подавления пика проводимости температурой. (На основе данных из работы [38].)

простоты восприятия приведем здесь только принципиальную качественную модель данного явления.

В двухслойной двумерной электронной системе две квантовые ямы разделены тонким барьерным слоем и, регулируя толщину барьера (что не реально в рамках одного эксперимента) или концентрации электронов в слоях, тем самым меняя соотношение расстояний между электронами в слое и между слоями ДЭГ, можно достичь ситуации, когда электроны в одном слое могут взаимодействовать через кулоновское взаимодействие с электронами в другом слое и, тем не менее, иметь чрезвычайно малую вероятность туннелирования через барьер. Достижение этого предела сильной корреляции и слабого туннелирования является ключом к возникновению экситонной бозе-конденсации в двухслойной электронной системе. Эксперимент показал, что при помещении в сильное перпендикулярное слоям магнитное поле такие системы могут проявлять ряд необычных свойств при суммарном факторе заполнения уровней Ландау $\nu_T = \nu_1 + \nu_2 = 1$ [37, 39]. В частности, в области низких температур зависимость дифференциальной туннельной проводимости от межслоевого напряжения демонстрирует высокий и узкий симметричный пик с максимумом при напряжении смещения $V_b = 0$. Пик туннельной проводимости, как уже отмечалось выше, наблюдается только при достаточно малых расстояниях между слоями (малых концентрациях электронов в слоях при постоянной толщине барьера в условиях реального эксперимента [37, 38]), когда кулоновское взаимодействие носителей из разных слоев становится существенным.

Гигантское усиление туннельной проводимости системы, наблюдавшееся в эксперименте, авторы объясняют переходом двухслойной системы в состояние с межслоевой фазовой когерентностью. Волновая функция когерентного состояния является антисимметричной относительно перестановок координат электронов. Такая волновая функция минимизирует энергию взаимодействия электронов из разных слоев, поскольку уменьшается вероятность конфигураций, когда два электрона находятся близко друг к другу. Иными словами, напротив каждого электрона в другом слое расположена корреляционная дырка. Как следствие, туннелирование электрона из одного слоя в другой не блокируется кулоновским отталкиванием от электронов другого слоя, что и приводит в конечном итоге к пику проводимости.

Кроме того, в подобных двухслойных полупроводниковых системах пик межслоевой дифференциальной проводимости при напряжении смещения $V_b = 0$ был зарегистрирован и в отсутствии магнитного поля [40], что, в результате анализа экспериментальных данных, включая температурное поведение туннельной проводимости, указало на возможность бозе-конденсации межслоевых экситонов и в таких условиях. Теоретически возможность формирования фазово-когерентного состояния двухслойной электронной системы в отсутствии магнитного поля предсказана в [41]. При этом отмечалось, что роль магнитного поля в экспериментах [37, 39] в основном состоит в усилении кулоновского притяжения электрона и корреляционной дырки.

Теперь обратим внимание на то, что и в графеновых гетеросистемах эффект бозе-конденсации экситонов уже наблюдался в виде гигантского роста туннельной проводимости в отсутствии магнитного поля. Группа Э. Тутука продемонстрировала существование стабильного экситонного конденсата [42]. В этой работе сообщалось об экспериментальном наблюдении резкого усиления туннелирования между двухслойными графеновыми кристаллами через барьер WSe_2, когда графеновые слои заполнены носителями противоположной полярности и равной концентрации (экспериментальная структура более подробно описана в [43]). Туннелирование резко возрастало с уменьшением температуры и в туннельном токе при температуре 1.5 K появлялся резкий вертикальный порог на зависимости от межслойного напряжения, так что межслойная проводимость на много порядков превышала предсказанную для некоррелированных электронов и дырок (см. рис. 7). Такое усиление туннелирования при условии электронейтральности, естественно, не описывается в рамках одночастичных моделей, которые в остальном хорошо согласуются с измеренными туннельными вольт-амперными характеристиками, и поэтому предполагает проявление многочастичного состояния с конденсированными межслойными экситонами, когда электроны и дырки с равными концентрациями заполняют два слоя. Возможность получать экситонный конденсат без магнитного поля и при относительно высоких по сравнению с полупроводниковыми системами температурах значительно упрощает исследования этого многочастичного эффекта, а также дает потенциальную возможность его использования в новых электронных устройствах.

В заключение отметим, что несмотря на краткость данного обзора, его авторы надеются, что сумели внятно осветить наиболее интересные результаты физики туннельной спектроскопии вандерваальсовых гетероструктур и он может оказаться полезен для первого ознакомления с данной проблематикой как специалистам близких областей, так и широкому кругу исследователей.

Авторы выражают благодарность М.В. Григорьеву, И.А. Ларкину и С.В. Морозову за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 17-12-01393).

1. E. L. Wolf, *Principles of Electron Tunneling Spectroscopy*, Oxford University Press, N.Y. (1985).
2. R. K. Hayden, D. K. Maude, L. Eaves, E. C. Valadares, M. Henini, F. W. Sheard, O. H. Hughes, J. C. Portal, and L. Cury, Phys. Rev. Lett. **66**, 1749 (1991).
3. J. Smoliner, W. Demmerle, G. Berthold, E. Gornik, G. Weimann, and W. Schlapp, Phys. Rev. Lett. **63**, 2116 (1989).
4. J. Wang, P. H. Beton, N. Mori, L. Eaves, H. Buhmann, L. Mansouri, P. C. Main, T. J. Foster, and M. Henini, Phys. Rev. Lett. **73**, 1146 (1994).
5. E. E. Vdovin, A. Levin, A. Patan, L. Eaves, P. C. Main, Y. N. Khanin, Y. V. Dubrovskii, M. Henini, and G. Hill, Science **290**, 122 (2000).
6. A. K. Geim, P. C. Main, N. La Scala Jr., L. Eaves, T. J. Foster, P. H. Beton, J. W. Sakai, F. W. Sheard, M. Henini, G. Hill, and M. A. Pate, Phys. Rev. Lett. **72**, 2061 (1994).

7. P.C. Main, A.S.G. Thornton, R.J.A. Hill, S.T. Stoddart, T. Ihn, L. Eaves, K.A. Benedict, and M. Henini, Phys. Rev. Lett. **84**, 729 (2000).
8. A.H. Castro Neto, F. Guinea, N.M. Peres, K.S. Novoselov, and A.K. Geim, Rev. Mod. Phys. **81**(1), 109 (2009).
9. L. Britnell, R.V. Gorbachev, R. Jalil, B.D. Belle, F. Schedin, A. Mishchenko, T. Georgiou, M.I. Katsnelson, L. Eaves, S.V. Morozov, N.M. Peres, J. Leist, A.K. Geim, K.S. Novoselov, and L.A. Ponomarenko, Science **335**, 947 (2012).
10. A. Mishchenko, J.S. Tu, Y. Cao et al. (Collaboration), Nature Nanotech. **9**, 808 (2014).
11. M. Zhu, D. Ghazaryan, S.-K. Son, C.R. Woods, A. Misra, L. He, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Novoselov, Y. Cao, and A. Mishchenko, *Stacking transition in bilayer graphene caused by thermally activated rotation*, 2D Materials. **4**, 011013 (2017).
12. E.E. Vdovin, A. Mishchenko, M.T. Greenaway et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **116**, 186603 (2016).
13. U. Chandni, K. Watanabe, T. Taniguchi, and J.P. Eisenstein, Nano Lett. **15**(11), 7329 (2015).
14. U. Chandni, K. Watanabe, T. Taniguchi, and J.P. Eisenstein, Nano Lett. **16**(12), 7982 (2016).
15. R.M. Feenstra, D. Jena, and G. Gu, J. Appl. Phys. **111**, 043711 (2012).
16. R.M. Feenstra, S.C. de la Barrera, J. Li, Y. Nie, and K. Cho, J. Phys.: Condens. Matter **30**, 055703 (2018).
17. K. Kim, M. Yankowitz, B. Fallahazad, S. Kang, H.C.P. Movva, Sh. Huang, S. Larentis, Ch.M. Corbet, T. Taniguchi, K. Watanabe, S.K. Banerjee, B.J. LeRoy, and E. Tutuc, Nano Lett. **16**, 1989 (2016).
18. L. Britnell, R.V. Gorbachev, A.K. Geim, L.A. Ponomarenko, A. Mishchenko, M.T. Greenaway, T.M. Fromhold, K.S. Novoselov, and L. Eaves, Nat. Commun. **4**, 1794 (2013).
19. L. Brey, Phys. Rev. Appl. **2**, 014003 (2014).
20. J.R. Wallbank, D. Ghazaryan, A. Misra et all. (Collaboration), Science **353**(6299), 575 (2016).
21. J.P. Eisenstein, T.J. Gramila, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Phys. Rev. B **44**, 6511 (1991).
22. L. Pratley and U. Zülicke, Phys. Rev. B **88**, 245412 (2013).
23. K. Kim, N. Prasad, H.C.P. Movva, G.W. Burg, Y. Wang, S. Larentis, T. Taniguchi, K. Watanabe, L.F. Register, and E. Tutuc, Nano Lett. **18**, 5967 (2018).
24. M.T. Greenaway, E.E. Vdovin, A. Mishchenko, O. Makarovsky, A. Patane, J.R. Wallbank, Y. Cao, A.V. Kretinin, M.J. Zhu, S.V. Morozov, V.I. Fal'ko, K.S. Novoselov, A.K. Geim, T.M. Fromhold, and L. Eaves, Nat. Phys. **11**(12), 1057 (2015).
25. J.P. Eisenshtein, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Phys. Rev. Lett. **69**, 3804 (1992).
26. N. Turner, J.T. Nicholls, E.H. Linfield, K.M. Brown, G.A. Jones, and D.A. Ritchie, Phys. Rev. B **54**, 10614 (1996).
27. Ю.Н. Ханин, Е.Е. Вдовин, А. Мищенко, Ж.С. Ту, А. Козиков, Р.В. Горбачев, К.С. Новоселов, Письма в ЖЭТФ **104**(5), 342 (2016).
28. Ю.Н. Ханин, Е.Е. Вдовин, И.А. Ларкин, О. Макаровский, Ю.А. Склюева, А. Мищенко, Ю.Б. Ванг, А. Козиков, Р.В. Горбачев, К.С. Новоселов, Письма в ЖЭТФ **107**, 242 (2018).
29. P.D. Ye, L.W. Engel, D.C. Tsui, R.M. Lewis, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Phys. Rev. Lett. **89**, 176802 (2002).
30. R. Cote and A.H. MacDonald, Phys. Rev. Lett. **65**, 2662 (1990).
31. Y. Hatsugai, P.-A. Bares, and X.G. Wen, Phys. Rev. Lett. **71**, 424 (1993).
32. S. He, P.M. Platzman, and B.I. Halperin, Phys. Rev. Lett. **71**, 777 (1993).
33. A.L. Efros and F.G. Pikus, Phys. Rev. B **48**, 14694 (1993).
34. В.Т. Долгополов, УФН **187**(7), 785 (2017).
35. H.P. Dahal, Y.N. Joglekar, K.S. Bedell, and A.V. Balatsky, Phys. Rev. B **74**, 233405 (2006).
36. C.-H. Zhang and Y.N. Joglekar, Phys. Rev. B **75**, 245414 (2007).
37. I.B. Spielman, J.P. Eisenstein, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Phys. Rev. Lett. **84**, 5808 (2000).
38. J.P. Eisenstein and A.H. MacDonald, Nature **432**, 691 (2004).
39. I.B. Spielman, J.P. Eisenstein, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Phys. Rev. Lett. **87**, 036803 (2001).
40. Ю.Н. Ханин, Е.Е. Вдовин, Ю.В. Дубровский, М. Хенини, Письма в ЖЭТФ **84**(4), 243 (2006).
41. А.И. Безуглый, ФНТ **31**, 1153 (2005).
42. G.W. Burg, N. Prasad, K. Kim, T. Taniguchi, K. Watanabe, A.H. MacDonald, L.F. Register, and E. Tutuc, Phys. Rev. Lett. **120**, 177702 (2018).
43. G.W. Burg, N. Prasad, B. Fallahazad, A. Valsaraj, K. Kim, T. Taniguchi, K. Watanabe, Q. Wang, M.J. Kim, L.F. Register, and E. Tutuc, Nano Lett. **17**, 3919 (2017).