物理学报 Acta Phys. Sin. Vol. 62, No. 16 (2013) 167401

Bi₂Te₃ 拓扑绝缘体表面颗粒化铅膜 诱导的超导邻近效应*

丁玥 沈洁 庞远 刘广同 樊洁 姬忠庆 杨昌黎 吕力[†]

(中国科学院物理研究所,北京凝聚态物理国家实验室,北京 100190)(2013年4月23日收到;2013年5月9日收到修改稿)

拓扑绝缘体的出现为寻找拓扑超导体和 Majorana 费米子提供了一种可能的途径. 在拓扑绝缘体 Bi₂Te₃ 表面沉 积极薄的不连续铅膜, 试图通过邻近效应感应出大片的超导区, 为下一步研究拓扑超导电性创造条件. 借助四引线 电输运测量实验, 在 0.25 K 的低温下看到了超流现象, 表明沉积在 Bi₂Te₃ 表面的厚度小于 20 nm 的颗粒化铅膜能 够诱导邻近效应, 并且使大片 Bi₂Te₃ 超导.

关键词:超导邻近效应,S-N-S结,拓扑绝缘体 PACS:74.45.+c,73.40.-c,74.50.+r,85.25.Cp

1 引 言

当超导体 (S) 与正常金属 (N) 接触时, 在 S-N 界面上会发生超导邻近效应^[1].在过去的几十年 间, 超导邻近效应一直是人们感兴趣的研究课题. 由于邻近效应, 当两端电压为零时, 超导体与正常 金属组成的三明治结 (S-N-S 结) 中可以存在一定 大小的超导电流^[2,3].在以往人们探索过的不同正 常金属与超导体组成的众多 S-N-S 结中, 当正常金 属是 InAs/AlSb 异质结中的二维电子气时, 两个超 导电极的间距可以达到微米量级^[4]; 而当正常金属 是单分子层的石墨烯^[5]、单晶金属纳米线^[6]和铁 磁纳米线^[7]时, 超导电极的间距也可以达到几百 纳米.

拓扑绝缘体^[8-10] 是凝聚态物理中一种新奇的量子物质态.由于存在很强的自旋轨道耦合效应,Bi₂Se₃,Bi₂Te₃等材料被理论预言^[11]和实验证实^[12,13]为拓扑绝缘体.拓扑绝缘体的表面态具有很多特殊的性质.理论上预言,当拓扑绝缘体的表面态与 s 波超导体接触时,由于超导邻近效应,在

DOI: 10.7498/aps.62.167401

两者的界面上会产生一种新的超导态 —— 拓扑超导态,这种超导态的性质类似于一个无自旋的 p_x+ip_y 超导体.同时,它的磁通芯 (vortex)中可能存 在 Majorana 束缚态^[14–17].因此,研究拓扑绝缘体 中的超导邻近效应成为在此体系中寻找 Majorana 费米子的第一步,而这一领域也取得了一系列的成 果^[18].

与此相关的最早的研究发表于拓扑绝缘体概 念出现之前的 1996年,这项工作使用 Nb 作为超导 体, BiSb 作为正常电阻制备三明治结,在沟道长度 为 1.2 μm 的 Nb-BiSb-Nb 结中观察到了很强的超 电流^[19].拓扑绝缘体的概念诞生以后,日内瓦大学 的 Morpurgo 组^[20]率先在 Al-Bi₂Te₃-Al 器件中成 功地观察到了超电流. 宾州州立大学的 Samarth 小 组^[21]用钨作超导电极,在 Bi₂Se₃ 纳米线中看到了 超电流. 2011年,王健等^[22]在利用分子束外延技 术 (MBE) 生长的 5 nm 左右厚度的 Bi₂Se₃ 拓扑绝 缘体与铟、钨、铝等超导材料制备的器件中观测 到了与超导和自旋极化相关的反常电阻信号. 2012 年,荷兰屯特大学的 Brinkman 小组^[23]和斯坦福的 Goldhaber-Gordon 小组^[24]在拓扑绝缘体上观察到

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2009CB929101, 2011CB921702)、国家自然科学基金(批准号: 91221203, 11174340, 11174357)和中国科学院知识创新工程项目资助的课题.

© 2013 中国物理学会 Chinese Physical Society

[†]通讯作者. E-mail: lilu@iphy.ac.cn

了关于拓扑绝缘体表面态的异常信号. 而最近的一项基于 Pb-Bi₂Te₃-Pb 结 (如图 1(a) 所示) 的工作更 是在 3.5 μm 的尺度上实现了超导邻近效应^[25], 说 明拓扑绝缘体和 s 波超导体之间存在着非常强的 超导邻近效应.





然而目前已有的实验数据均显示,这种邻近效 应感应出来的超导电性是 s 波超导,而不是类似 p_x+ip_y的超导.究其原因,可能是连续超导膜的 s 波 特征掩盖了其下拓扑绝缘体中被感应出来的非 s 波超导特征.本文探究了能否用离散 s 波超导体的 颗粒在拓扑绝缘体中诱导出大片超导区的问题.在 这一思路中,离散的铅颗粒一方面感应出大片的超 导电性,另一方面又不至于把整片超导区的相位锁 定在 s 波超导体的单一值上.如果这种思路可行, 就有可能设计出凸现 p_x+ip_y 超导的器件.

我们发现, 在使用磁控溅射沉积铅膜时, 当铅膜的名义厚度减小到 20 nm 以下时, 铅膜将呈现出 互不联通的颗粒状结构. 颗粒之间的拓扑绝缘体在 低温下会受到邻近效应的诱导而超导. 借助这种方 法, 本实验在相距 9.5 μm 的两个正常厚度 (200 nm) 的连续铅膜电极之间, 通过铅膜颗粒群诱导出了超 导电性, 器件如图 1(b) 所示.

2 实验方法与结果

实验使用 Bridgman 方法生长的 Bi₂Te₃ 单晶样品,将单晶样品解理成薄片,并将这些薄片转移到

镀有 300 nm SiO₂ 的高掺杂 Si 衬底上. 用金相显 微镜挑选出厚度大约为 100 nm, 大小在 10—20 μm 之间, 表面光洁、没有明显分层的适合制备器件的 Bi₂Te₃ 薄片.

利用标准的微加工技术制备实验所需的 Josephson结,如图 2(a)所示.器件制备的流程 如下.

第一步,利用电子束光刻技术,用磁控溅射在 选定的 Bi₂Te₃ 薄片上沉积两个厚度约为 200 nm 的铅电极,电极间距为 9.5 μm. 每个铅电极分别 向外部延伸并分成两路,以便四引线测量. 在用 磁控溅射沉积铅膜时,先将腔体真空抽到 2×10⁻⁴ Pa 以下,再通 Ar 气进行溅射. 溅射时, Ar 气压强 约 0.7 Pa, 溅射功率为 100 W.

第二步, 进行第二次曝光, 在第一步制备的间 距为 9.5 μm 的两个电极之间镀一块矩形的、宽 度为 3.7 μm 的不连续铅膜. 镀这层不连续铅膜 时, 腔体真空需抽到 1.2—1.5×10⁻⁴ Pa, 溅射功率 为 80 W, 溅射 8.5—10 s. 不连续铅膜的电子显微 (SEM) 图像如图 2(b) 所示, 由均匀分布的颗粒状和 条状铅组成, 尺度为百纳米级别, 间距约在 20—30 nm 之间.





图 2 器件图 (a)器件的光学照片; (b)溅射在 Bi₂Te₃薄片 上的不连续铅膜的 SEM 照片,颗粒为百纳米级别,间距约在 20—30 nm 之间



图 3 (a) 0.25 K 温度下, 磁场在 -0.6—0.6 T 之间, 器件的磁阻曲线, 电阻在 ±0.005 T 以内和 ±0.22 T 附近分别有两次转变; (b) 0.25 K 温度下, 磁场在 -0.015—0.015 T 之间, 器件的磁阻曲线, 实线是在一定范围内对数据进行平均的结果; (c) 0.25 K 温度下, 在零磁场位置长时间测量器件电阻的结果, 实线是数据的平均值

测量使用的是标准的锁相放大技术,使用的锁相放大器为 NF 公司的 LI5640,测量在 Oxford 公司 生产的插杆式 3He 恒温器中进行.使用四引线法测 量器件的电阻,所用的交流激励电流为 10 nA,频率 为 30.9 Hz,选择这个频率是为了避开 50 Hz 交流电 的干扰.该器件的测量结果如图 3 和图 4 所示.由 于磁场存在磁滞效应,测量所得的磁场与实际磁场 会有一定偏差,本文所展示的测量结果均已根据扫 场图形的对称性校准过磁场零点.

除变温实验外,实验均在 0.25 K 的温度下进 行测量. 使用上面所述的方法, 测量磁场在 -0.6---0.6 T之间,零偏压电阻随磁场的变化关系如图 3(a) 所示. 从图 3(a) 可以看到, 电阻随磁场大致呈线性 变化,源于 Bi2Te3 本身的磁阻效应^[26]. 随磁场降 低, 电阻有两次转变, 第一次发生在±0.22 T 附近, 与我们之前测得厚度约为 200 nm 的连续铅膜的超 导转变磁场符合; 第二次发生在小于 ±0.005 T 的 磁场范围内,电阻逐渐下降,到接近零磁场时完全 降到零. 图 3(b) 则用更慢的扫场速度测量磁场在 -0.015-0.015 T 之间, 零偏压电阻随磁场的变化 关系,试图精确判断零场附近电阻是否降到零.为 了进一步确认样品的零电阻,将磁场稳定在零磁场 位置,随时间测量一千余个点,结果如图 3(c) 所示, 这些点平均地分布在零电阻上下,可知零磁场附近 器件电阻确实降到了零.数据中的噪声对应于几十

纳伏的电压,与锁相放大器的噪声水平符合.

另外,当超导体的尺度变小时,由于磁场穿透 所需的抗磁能变小,有效临界磁场会显著增大^[27]. 因此可以预测,颗粒状铅膜的临界磁场将大于 0.22 T. 但在电阻随磁场的变化关系图 3(a)中,在 大于 0.22 T 磁场范围并没有明显的电阻转变,这有 可能是有效临界场有明显展宽,甚至超出测量磁场 范围,同时大的测量噪音也导致了分辨困难.

图 4(a), (b) 分别是器件的电阻 - 温度曲线和微 分电阻 - 直流电流曲线, 均在零磁场条件下进行测 量. 从图 4(a) 可以看到, 随温度降低电阻有三次转 变, 第一次发生在 7.2—7.4 K, 与连续铅膜的临界温 度符合; 第二次发生在 2.5—3.6 K, 应该对应于颗粒 状铅膜的超导临界温度, 这是由于颗粒状铅膜的颗 粒尺度与 Pb 的相干长度 $\xi_{Pb} \sim 80$ nm 可比, 导致超 导临界温度相对连续铅膜的临界温度有明显下降; 第三次发生在小于 1.9 K 位置, 电阻逐渐下降, 到 0.6 K 以下完全降到零, 应该对应于邻近效应超导 的 Bi₂Te₃. 从图 4(b) 可以看到, 器件的临界电流约 为 3.6 μ A, 正常电阻 R_n 约为 17 Ω .

接下来我们需要回答的问题是: Bi₂Te₃ 的邻近 效应超导是由两块相距 9.5 μm 的连续铅膜所感生 的, 还是由许多铅颗粒联合感生的? 这个问题可从 下面的分析得到答案.

人们常用正常态电阻与超导态临界电流的乘

积 $R_n I_c$ 作为特征值来表征超导邻近效应结, 而 $R_n I_c$ 的理论计算模型由 De Gennes 在 1964 年提出 ^[28]. 对于一般的 S-N-S 结, De Gennes 的计算得到:

$$R_{\rm n}I_{\rm c} \approx \frac{\pi}{2e} \frac{\Delta^2}{kT_{\rm c}} \frac{d}{\xi_{\rm n}} {\rm e}^{-d/\xi_{\rm n}}, \qquad (1)$$

其中 Δ 和 T_c 分别为超导体的能隙和临界温度, ξ_n 为邻近效应区 Cooper 对的相干长度. 假如邻近效应 超导是由相距 $d = 9.5 \mu m$ 的连续铅膜所感生的, 那 么不妨让 (1) 式中的 Δ 和 T_c 取铅的值, $\Delta = 1$ meV, $T_c = 7.2$ K. 由此可以得到 $R_n I_c 与 d/\xi_n$ 的关系, 如图 5 所示.



图 4 (a) 零磁场下,器件的电阻 - 温度曲线,电阻在 7.2—7.4 K, 2.5—3.6 K 和小于 1.9 K 位置分别有三次转变; (b) 测量温度 0.25 K,零磁场条件下器件的 dV/dI-I_{DC} 曲线,临界电流约为 3.6 μA

从图 4(b) 的微分电导曲线有: $R_n I_c = 61.2 \mu V$. 根据图 5, 这大致对应 $d/\xi_n \approx 5.4$ 的情况.另一 方面,在 De Gennes 的模型中,若 S-N-S 结满足 $l_n \ll \xi_s$ (l_n 是正常金属的电子平均自由程, ξ_s 是超 导体的相干长度),有 $\xi_n = \sqrt{\hbar v_n l_n / 6 \pi k T}$;若 $l_n \gg \xi_s$, 则 $\xi_n = \hbar v_n / 2 \pi k T$.在这个实验中, $l_{\text{Bi}_2 \text{Te}_3}$ 约为 100 nm^[23], ξ_{Pb} 约为 80 nm,介于两个极限之 间,因此 ξ_n 也将介于两种情况之间.将 Bi₂Te₃ 的电子平均自由程 (约为 100 nm) 与费米速 度 (约为 1×10⁵ m/s)^[23] 代入, T = 0.25 K 时有 0.12 µm < $\xi_n < 0.46$ µm. 根据 $d/\xi_n \approx 5.4$,两个超 导电极的间距应满足 0.65 µm < d < 2.5 µm. 也 就是说相距 9.5 µm 的连续铅膜在 0.25 K 的温 度下不足以在 Bi₂Te₃ 样品上诱导出邻近效应超 导,零电阻只可能在更低的温度下出现. 而将 d = 9.5 µm 与 0.12 µm < $\xi_n < 0.46$ µm 代入 (1) 式, 有 8×10⁻³⁰ µV < $R_nI_c < 5.6 \times 10^{-5}$ µV,远小于实 验结果中的 61.2 µV. 同时,上面的理论分析也较好 地解释了另一工作中的实验结果 ^[25],即当 Bi₂Te₃ 样品上两个铅电极相距 3.5 µm 时,在温度低于 0.18 K时才出现零电阻态.



图 5 基于 De Gennes 的模型, 理论计算的 $R_n I_c - d/\xi_n$ 曲线

既然这一实验观察到的零电阻态不能完全由 相距 9.5 µm 的连续铅膜的邻近效应所诱导, 那 么必然需要借助颗粒化铅膜诱导.器件中的颗粒 化铅膜相当于许多 d = 20-30 nm 的 S-N-S 结的 串并联;对于这样的 S-N-S 结, R_nI_c 同样可以用 (1) 式计算, 由 $\frac{\pi}{2e} \frac{\Delta^2}{kT_c}$ 和 $\frac{d}{\xi_n} e^{-d/\xi_n}$ 两部分的乘积 决定. 对于颗粒间距 d = 20—30 nm 的 S-N-S 结, T = 0.25 K时有 0.0412 μ m < $\frac{d}{\mu} e^{-d/\xi_n} < 0.195 \mu$ m, 如果仍采用正常铅膜的能隙和超导转变温度, 104.4 μV < R_nI_c < 493.6 μV, 大于实验结果中的 61.2 μV. 然而对于名义厚度小于 20 nm 的颗粒铅 膜,能隙和超导转变温度相对于正常铅膜会明显降 低,因此诱导超导邻近效应的能力也会相应降低, 导致 RnIc 小于前面的计算结果. 如果近似认为 Tc 降到约2K(图4(a)),为原来的2/7倍,能隙也降为 原来的 2/7 倍,则 30 µV < R_nI_c < 141 µV, 与实验观 察能够符合.因此将实验测得的邻近效应归因于颗 粒状铅膜的诱导作用是合理的.

需要说明的是,外部的连续铅膜对超流的产生

也有一定的贡献, 但这一贡献只限于其近邻周边. 如前所述在 9.5 μ m 距离上单独诱导超导的效果很 小 (8×10⁻³⁰ μ V < R_nI_c < 5.6×10⁻⁵ μ V). 因此, 测 到的整体超流主要来源于颗粒状铅膜的诱导作用.

至此可以得出结论, 沉积在 Bi₂Te₃ 表面的名义 厚度约为 20 nm, 间距约为 20—30 nm 的颗粒化铅 膜能够诱导邻近效应, 并且使 Bi₂Te₃ 超导.

实现颗粒化铅膜诱导拓扑绝缘体超导有着重要的意义.为了寻找 Majorana 费米子,我们需要通过干涉实验看到 p 波超导的行为. 然而如前所述, 拓扑绝缘体上制备超导量子干涉器件 (SQUID)^[25] 所观测到的超导量子干涉和衍射信号全是传统的 s 波超导的行为,并没有发现 p 波配对的迹象. 这 可能是由于铅膜的 s 波超导电极较强,掩盖了其下 拓扑绝缘体超导的 p 波信号. 而颗粒化铅膜诱导的 邻近效应则利于凸显颗粒之间可能出现的表面态 p 波超导, 利用这种超导态的 SQUID 有希望揭示 p 波配对超导的迹象和产生 Majorana 费米子.

3 结论

本文在拓扑绝缘体 Bi₂Te₃ 表面溅射极薄 (名义 厚度约为 20 nm) 的铅膜, 这种铅膜呈互不联通的颗 粒状和条状, 间距约为 20—30 nm, 形成大量均匀分 布的 Pb-Bi₂Te₃-Pb 结区. 在 0.25 K 的低温下对这样 一种器件进行四引线测量, 看到超流现象. 实验结 果表明, 沉积在 Bi₂Te₃ 表面的颗粒化铅膜能够通过 邻近效应在 Bi₂Te₃ 上诱导出超导电性.

- [1] Meissner H 1960 Phys. Rev. 117 672
- [2] Pannetier B, Courtois H 2000 J. Low Temp. Phys. 118 599
- [3] Golubov A A, Kupriyanov M Y, Il'ichev E 2004 Rev. Mod. Phys. 76 411
- [4] Nguyen C, Werking J, Kroemer H, Hu E L 1990 Appl. Phys. Lett. 57 87
- [5] Heersche H B, Jarillo-Herrero P, Oostinga J B, Vandersypen L M K, Morpurgo A F 2007 Nature 446 56
- [6] Wang J, Shi C T, Tian M L, Zhang Q, Kumar N, Jain J K, Mallouk T E, Chan M H W 2009 Phys. Rev. Lett. 102 247003
- [7] Wang J, Singh M, Tian M L, Kumar N, Liu B Z, Shi C T, Jain J K, Samarth N, Mallouk T E, Chan M H W 2010 Nat. Phys. 6 389
- [8] Moore J E 2010 Nature 464 194
- [9] Qi X L, Zhang S C 2011 Rev. Mod. Phys. 83 1057
- [10] Hasan M Z, Kane C L 2010 Rev. Mod. Phys. 82 3045
- [11] Zhang H J, Liu C X, Qi X L, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2009 Nat. Phys. 5 438
- [12] Xia Y, Qian D, Hsieh D, Wray L, Pal A, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2009 Nat. Phys. 5 398
- [13] Chen Y L, Analytis J G, Chu J H, Liu Z K, Mo S K, Qi X L, Zhang H J, Lu D H, Dai X, Fang Z, Zhang S C, Fisher I R, Hussain Z, Shen Z X 2009 Science 325 178
- [14] Fu L and Kane C L 2008 Phys. Rev. Lett. 100 096407
- [15] Fu L and Kane C L 2009 Phys. Rev. Lett. 102 216403
- [16] Tanaka Y, Yokoyama T, Nagaosa N 2009 Phys. Rev. Lett. 103 107002

- [17] Law K T, Lee P A, Ng T K 2009 Phys. Rev. Lett. 103 237001
- [18] Ou Y X, Singh M, Wang J 2012 Sci. China-Phys. Mech. Astron. 55 2226
- [19] Kasumov A Y, Kononenko O V, Matveev V N, Borsenko T B, Tulin V A, Vdovin E E, Khodos I I 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3029
- [20] Sacépé B, Oostinga J B, Li J, Ubaldini A, Couto N J G, Giannini E, Morpurgo A F 2011 Nat. Commun. 2 575
- [21] Zhang D, Wang J, DaSilva A M, Lee J S, Gutierrez H R, Chan M H W, Jain J, Samarth N 2011 *Phys. Rev.* B 84 165120
- [22] Wang J, Chang C Z, Li H D, He K, Zhang D, Singh M, Ma X C, Samarth N, Xie M H, Xue Q K, Chan M H W 2012 Phys. Rev. B 85 045415
- [23] Veldhorst M, Snelder M, Hoek M, Gang T, Guduru V K, Wang X L, Zeitler U, Wiel W G V D, Golubov A A, Hilgenkamp H 2012 Nat. Mat. 11 417
- [24] Williams J R, Bestwick A J, Gallagher P, Hong S S, Cui Y, Bleich A S, Analytis J G, Fisher I R, Goldhaber-Gordon D 2012 Phys. Rev. Lett. 109 056803
- [25] Qu F M, Yang F, Shen J, Ding Y, Chen J, Ji Z Q, Liu G T, Fan J, Jing X N, Yang C L, Lu L 2012 Sci. Rep. 2 339
- [26] He H T, Li B K, Liu H C, Guo X, Wang Z Y, Xie M H, Wang J N 2012 Appl. Phys. Lett. 100 032105
- [27] Tinkham M 1996 Introduction to Superconductivity (New York: McGraw-Hill, Inc.) p131
- [28] De Gennes P G 1964 Rev. Mod. Phys. 36 225

Proximity-effect-induced superconductivity by granular Pb film on the surface of Bi₂Te₃ topological insulator*

Ding Yue Shen Jie Pang Yuan Liu Guang-Tong Fan Jie Ji Zhong-Qing Yang Chang-Li Lü Li[†]

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Acadeny of Sciences, Beijing 100190, China) (Received 23 April 2013; revised manuscript received 9 May 2013)

Abstract

The appearance of topological insulators provides us with a chance of finding topological superconductors and Majorana fermions. To pursue these findings one might need to induce large areas of proximity superconductivity on the surface of Bi_2Te_3 by depositing granular and discrete Pb film. In this experiment, a superconducting state over a distance of 9.5 μ m is observed below 0.25 K on a Bi_2Te_3 crystal whose surface is deposited with Pb grains with a thickness of less than 20 nm and separated at a distance of 20–30 nm.

Keywords: proximity effect, S-N-S junction, topological insulator

PACS: 74.45.+c, 73.40.-c, 74.50.+r, 85.25.Cp

DOI: 10.7498/aps.62.167401

^{*} Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2009CB929101, 2011CB921702), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 91221203, 11174340, 11174357), and the Main Direction Program of Knowledge Innovation of Chinese Academy of Sciences.

[†] Corresponding author. E-mail: lilu@iphy.ac.cn