

文章编号:1005-4642(2021)01-0022-05

椭偏法测量拓扑绝缘体的复折射率

陆 华^{1a}, 李扬武^{1a}, 岳增记², 曾 为^{1b}

(1. 西北工业大学 a. 物理科学与技术学院, 陕西 西安 710129; b. 材料学院, 陕西 西安 710072;
2. 伍伦贡大学 超导和电子材料研究所, 澳大利亚 伍伦贡 2500)

摘 要:采用椭偏法测量了拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 单晶的复折射率. 运用经典的德鲁德和托克-洛伦兹模型分别对拓扑绝缘体的表面态和体态进行拟合, 获得了其折射率和消光系数, 并且分析了色散曲线的变化规律. 实验结果表明: Bi_2Te_3 拓扑绝缘体的体态具有类半导体特性(含带隙), 折射率在近红外波段可达 7 以上; 表面态具有类金属特性, 厚度约为 2.52 nm.

关键词:椭偏法; 拓扑绝缘体; Bi_2Te_3 ; 复折射率; 消光系数

中图分类号: O482.3

文献标识码: A

DOI: 10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.01.004

折射率作为光学介质的基本常量, 对探索介质材料的光学特性与应用起着关键作用^[1]. 近年来, 新兴纳米材料因优异的电学、光学性能, 促进了光学与光电子学的发展^[2]. 为掌握材料的基本光学性质, 折射率的测量必不可少. 西北工业大学戴思清等利用数字全息术测量出单层石墨烯的复折射率^[3]. 都柏林圣三一大学 Yim 等利用椭偏法测量出 MoS_2 原子层的复折射率^[4]. 继石墨烯、 MoS_2 等纳米材料之后, 拓扑绝缘体因著名的量子自旋霍尔效应而受到研究人员的广泛关注^[5]. 不同于传统介质, 拓扑绝缘体拥有受拓扑保护的导体表面(或边界)态与绝缘体态, 为新颖的拓扑磁电效应、法拉第旋转及马约拉纳费米子等新奇物理现象的产生提供可能^[6]. 如今, 拓扑绝缘体表面态在一些三维材料中被发现, 如: Bi_2Se_3 , Sb_2Te_3 及 Bi_2Te_3 等^[7]. 材料折射率的测定将有助于人们更深入地了解拓扑绝缘体最基本的光学性质, 为探索拓扑绝缘体光学器件与应用奠定基础. 在大学物理实验中, 常见的折射率测量方法包括: 最小偏向角法、极限法、瑞利干涉法等^[8]. 上述方法对介质形态、形状、损耗等具有较高要求, 不适用于拓扑绝缘体材料复折射率的测量. 椭偏法是一种较先进的光学测量方法, 被广

泛用于块状、薄膜及多层结构材料复折射率的测量^[9-11], 成为近代物理实验的重要组成部分^[12]. 本文以 Bi_2Te_3 单晶为例, 探讨了利用椭偏仪测量拓扑绝缘体复折射率的方法, 运用德鲁德和托克-洛伦兹模型分别对 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体的表面态和体态进行拟合, 获得了 Bi_2Te_3 单晶表面态与体态的折射率与消光系数.

1 实验原理

椭偏法为实验用椭偏仪的基本原理, 具有无损伤、精度高、适用范围广等特点, 被用于测量光学材料的复介电常量(或复折射率)和薄膜厚度.

由菲涅耳公式可知: 当线性偏振光斜入射到样品时, 反射光偏振态将发生变化, 出现椭圆偏振态^[1]. 用 r_p 和 r_s 分别表示 p 和 s 偏振分量的菲涅耳反射系数, 椭偏基本方程可表示为

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi \exp(i\Delta), \quad (1)$$

其中, Ψ 和 Δ 为 2 个基本偏振参量, 代表偏振角及反射光 p 与 s 偏振分量的相位差, 可由椭偏仪测量. 由此, 所测材料的复介电常量可表示为

$$\tilde{\epsilon} = (n + ik)^2 = n_0^2 \sin^2 \theta \left[1 + \left(\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \tan^2 \theta \right], \quad (2)$$

收稿日期: 2020-10-02; 修改日期: 2020-11-15

基金项目: 国家自然科学基金项目(No. 11974283, 11774290, 61705186); 陕西省自然科学基金基础研究计划项目(No. 2020JM-130)

作者简介: 陆 华(1985—), 男, 湖北洪湖人, 西北工业大学物理科学与技术学院副教授, 博士, 研究方向为微纳光学. E-mail: hualu@nwpu.edu.cn



其中, θ 为入射角, n 与 k 分别为测试样品的折射率与消光系数, n_0 为环境折射率.

在实际测量中, 样品通常存在多层结构, 需设定各层介质模型, 进行数据拟合. 拓扑绝缘体具有特殊的表面态和体态, 可等效为双层结构^[10]. 由于表面态与体态分别具有导体和绝缘体特性, 可用经典的德鲁德和托克-洛伦兹模型进行拟合^[11]. 德鲁德模型可表示为

$$\tilde{\epsilon}_s = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (3)$$

其中, ω_p 为自由电子气等离子频率, γ 为电子碰撞频率; $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$ 为入射光角频率, 其中 λ 为入射光波长. 根据托克-洛伦兹模型, 可利用克莱默-克朗尼格关系设置体态介电常量关系式, 其虚部 ϵ_2 与实部 ϵ_1 可分别表示为

$$\epsilon_2(\hbar\omega) = \frac{AE_0C(\hbar\omega - E_g)^2}{[(\hbar\omega)^2 - E_0^2]^2 + C^2(\hbar\omega)^2} \cdot \frac{\Theta(\hbar\omega - E_g)}{\hbar\omega}, \quad (4)$$

$$\epsilon_1(\hbar\omega) = \epsilon_{\infty,b} + \frac{2}{\pi} P \int_{E_g}^{\infty} \frac{\xi \epsilon_2(\xi)}{\xi^2 - (\hbar\omega)^2} d\xi, \quad (5)$$

其中, \hbar 为约化普朗克常量, A 为吸收峰幅值; E_0 为联合态密度峰(跃迁能量), C 为展宽因子, E_g 为带隙能量, $\epsilon_{\infty,b}$ 为体态高频介电常量, P 为积分的柯西主值. $\Theta(\hbar\omega > E_g) = 1, \Theta(\hbar\omega \leq E_g) = 0$.

由于拓扑绝缘体表面态厚度 d 未知, 拟合时需将表面态厚度设为未知量. 根据上述模型, 拟合实验数据, 对结果进行评估. 评估结果由拟合优度 χ^2 判断, 其定义为

$$\chi^2 = \min \sum_{i=1}^N \left[\frac{(\Psi_i^t - \Psi_i^e)^2}{\Gamma_{\Psi,i}} + \frac{(\Delta_i^t - \Delta_i^e)^2}{\Gamma_{\Delta,i}} \right], \quad (6)$$

其中, N 为实验数据点的数量; Ψ_i^e 和 Δ_i^e 为实验测得偏振参量, Ψ_i^t 和 Δ_i^t 为拟合偏振参量; $\Gamma_{\Psi,i}$ 和 $\Gamma_{\Delta,i}$ 为数据点的标准偏差. χ^2 的值越小, 拟合结果越好.

2 实验测量

可利用熔融-慢冷却法生长 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体单晶. 首先将高纯度 Bi 和 Te 粉末按照 2 : 3 的原子比例进行配制, 密封到石英腔体. 晶体材料在垂直炉管中进行生长, 简要步骤如下: 首先将 Bi 和 Te 粉末加热到 $850\text{ }^\circ\text{C}$, 使其完全熔化. 将温度以 $60\text{ }^\circ\text{C/h}$ 的速度降至 $650\text{ }^\circ\text{C}$, 然后以 $2\text{ }^\circ\text{C/h}$

的速率缓慢下降到 $550\text{ }^\circ\text{C}$. 最后, 让混合物自然冷却到室温, 获得 Bi_2Te_3 单晶, 如图 1 所示.

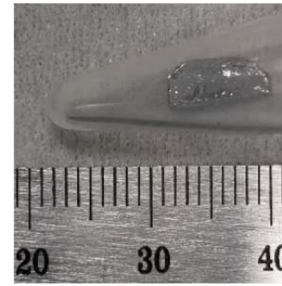


图 1 Bi_2Te_3 单晶

图 2 为 Bi_2Te_3 单晶的拉曼光谱, 在 $62, 102, 135\text{ cm}^{-1}$ 处出现明显的拉曼峰, 为 Bi_2Te_3 单晶的 A_{1g}^1, E_g^2 和 A_{1g}^2 峰, 与文献^[13]报道的 Bi_2Te_3 单晶结果一致.

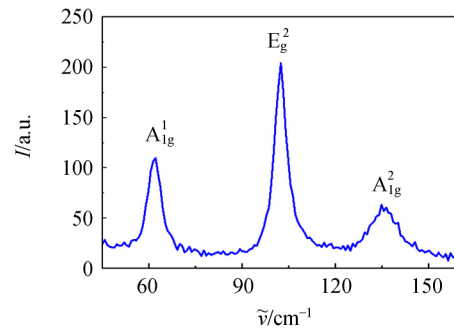


图 2 Bi_2Te_3 单晶的拉曼光谱

测试时可将生长的 Bi_2Te_3 单晶表面进行机械剥离, 对单晶平滑的新表面进行测试. 这样既可减少样品表面附着物的影响, 也可保证单晶表面具有较小的粗糙度, 确保测试结果的准确性. 原子力显微镜结果显示: 剥离后 Bi_2Te_3 单晶表面可达到亚纳米级粗糙度(图 3).

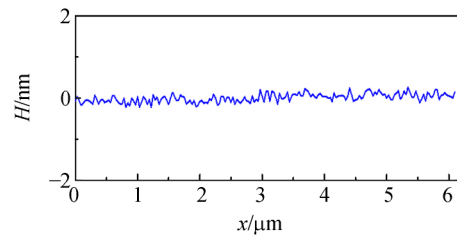


图 3 Bi_2Te_3 单晶表面的粗糙度

将 Bi_2Te_3 晶体置于椭圆仪样品台, 让光源入射到晶体光滑表面, 光斑设置在 $1\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ 或

以下,调整样品台,使反射光进入探测器。

使用 HORIBA 光谱型椭圆仪进行测量,测量范围为 $1\sim 6$ eV,取点数 $N=51$ 。入射角度 θ 设置为 70° 。椭圆仪系统的结构示意图如图 4 所示。

首先利用椭圆仪得到 Ψ 和 Δ 的实验数据,使用计算机软件处理数据,建立表面态-体态双层模型,分别使用德鲁德和托克-洛伦兹色散模型对

实验数据进行拟合,得到整体和各层的拟合数据,获得表面态和体态的折射率与消光系数。考虑表面态的模型对拓扑绝缘体光学现象(如表面等离子激元)的研究具有重要作用^[14]。由于 Bi_2Te_3 单晶剥离后表面粗糙度极小,数据拟合时不考虑表面粗糙的拟合。极小的表面粗糙度可避免粗糙表面对表面态信号的掩盖。

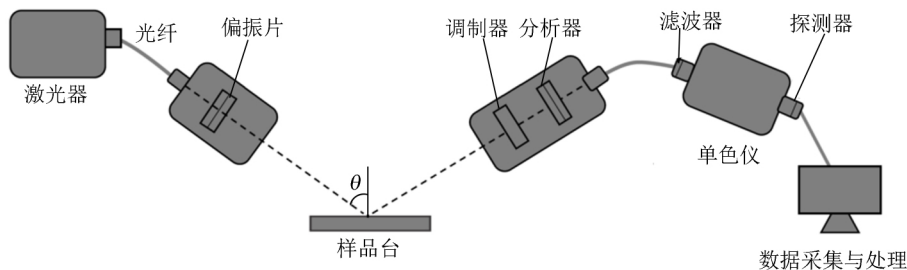


图 4 椭圆仪系统的结构示意图

3 实验结果与分析

图 5 为椭圆仪测得的 Bi_2Te_3 单晶的偏振角 Ψ 与相位差 Δ ,由此可获得 Bi_2Te_3 整体复折射率,包括折射率 n 和消光系数 k 。

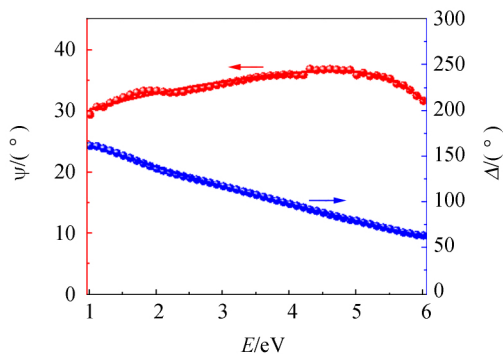


图 5 Bi_2Te_3 单晶的椭圆参数 Ψ 和 Δ

由图 6 可知,在高频(可见光)波段, Bi_2Te_3 的折射率较小。随着频率减小(波长增加),折射率逐渐变大,在近红外波段 1.05 eV (1181 nm)附近, n 达到 7 以上,高于传统 $\text{Si}(3.5)$ 、 $\text{Ge}(4.3)$ 等高折射率材料,为新型光学器件的实现提供了可能^[15]。在可见光波段,消光系数随频率减小而增加,在 1.6 eV (775 nm)附近达到最大值 5.3,在近红外波段消光系数随频率减小而降低。双层模型拟合结果与实验数据相符,拟合优度 χ^2 为

0.45,优于以往拟合结果^[10],这说明拟合结果准确度较高。

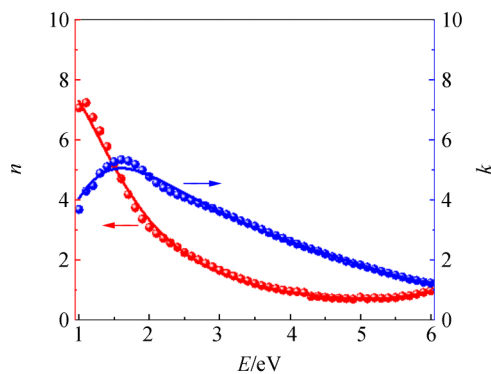


图 6 Bi_2Te_3 单晶的折射率 n 和消光系数 k

表 1 为 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体的表面态拟合参量,可见表面态可由椭圆信号表征,并呈现类金属特性,厚度约为 2.52 nm,与报道的同类拓扑绝缘体的表面态厚度相近^[10,16]。

表 1 表面态的拟合参量

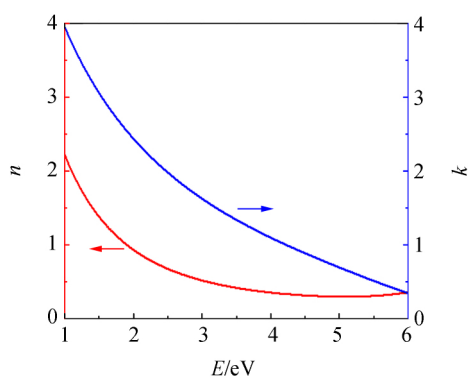
ω_p/eV	γ/eV	d/nm
6.16	1.51	2.52

表 2 为 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体的体态拟合参量,体态呈现半导体特性,带隙约为 0.17 eV^[17]。

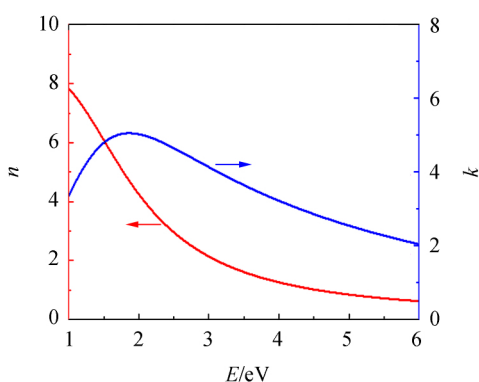
表 2 体态的拟合参数

A/eV	E_0/eV	C/eV	E_g/eV	$\epsilon_{\infty,b}$
160.52	1.60	2.29	0.17	1.73

图 7 为 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体表面态与体态的折射率与消光系数色散曲线. 在可见光及近红外波段,表面态消光系数大于折射率,与贵金属类似^[18]. 在 1.24 eV(1 000 nm)附近,体态折射率达 7 以上.



(a)表面态



(b)体态

图 7 Bi_2Te_3 拓扑绝缘体表面态和体态的折射率与消光系数

4 结 论

以 Bi_2Te_3 单晶为例,利用椭偏法测量了拓扑绝缘体的复折射率,通过双层模型拟合,获得拓扑绝缘体表面态与体态的折射率和消光系数色散曲线. 结果表明: Bi_2Te_3 拓扑绝缘体具有类金属表面态和类半导体体态,表面厚度约为 2.52 nm,体态折射率在近红外波段可达 7 以上. 类金属表面态为拓扑绝缘体表面等离激元的研究开辟了新途

径^[11,14-15]. 高折射率体态为超薄光功能器件的实现提供了可能^[19].

参考文献:

- [1] 赵建林. 高等光学[M]. 北京:高等教育出版社, 2006:35-117.
- [2] Xia F N, Wang H, Xiao D, et al. Two-dimensional material nanophotonics [J]. Nat. Photon., 2014,8(12):899-907.
- [3] Dai S P, Lu H, Zhang J W, et al. Complex refractive index measurement for atomic-layer materials via surface plasmon resonance holographic microscopy [J]. Opt. Lett., 2019,44(12):2982-2985.
- [4] Yim C, O'Brien M, McEvoy N, et al. Investigation of the optical properties of MoS_2 thin films using spectroscopic ellipsometry [J]. Appl. Phys. Lett., 2014,104:103114.
- [5] Bernevig B A, Hughes T L, Zhang S C. Quantum spin Hall effect and topological phase transition in HgTe quantum wells [J]. Science, 2006, 314(5806):1757-1761.
- [6] Qi X L, Zhang S C. Topological insulators and superconductors [J]. Rev. Mod. Phys., 2011, 83:1057-1110.
- [7] Zhang H J, Liu C X, Qi X L, et al. Topological insulators in Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 with a single Dirac cone on the surface [J]. Nat. Phys., 2009, 5:438-442.
- [8] 侯建平,庞述先,候全文. 大学物理实验[M]. 北京:国防工业出版社,2016:157-166.
- [9] 牛江伟,潘永强. 采用椭偏法结合分光光度法研究极薄银的光学常数[J]. 应用光学,2018,39(6):867-872.
- [10] Ou J Y, So J K, Adamo G, et al. Ultraviolet and visible range plasmonics in the topological insulator $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.8}\text{Se}_{1.2}$ [J]. Nat. Commun., 2014,5:5139.
- [11] Lu H, Dai S Q, Yue Z J, et al. Sb_2Te_3 topological insulator: surface plasmon resonance and application in refractive index monitoring [J]. Nanoscale, 2019,11(11):4759-4766.
- [12] 鲁长宏. 椭偏仪中 $E_s = E_p$ 的椭圆偏振光[J]. 大学物理,2005,24(1):39-40.
- [13] Ambrosi A, Sofer Z, Luxa J, et al. Exfoliation of layered topological insulators Bi_2Se_3 and Bi_2Te_3 via electrochemistry [J]. ACS Nano, 2016,10(12):11442.

- [14] Venuthurumilli P K, Wen X L, Iyer V, et al. Near-field imaging of surface plasmons from the bulk and surface state of topological insulator $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ [J]. ACS Photonics, 2019, 6: 2492-2498.
- [15] Yue Z J, Cai B Y, Wang L, et al. Intrinsically core-shell plasmonic dielectric nanostructures with ultrahigh refractive index [J]. Sci. Adv., 2016, 2(3): e1501536.
- [16] Xia B, Ren P, Sulaev A, et al. Indications of surface-dominated transport in single crystalline nanoflake devices of topological insulator $\text{Bi}_{1.5}\text{Sb}_{0.5}\text{Te}_{1.8}\text{Se}_{1.2}$ [J]. Phys. Rev. B, 2013, 87(8): 085442.
- [17] Chen Y L, Analytis J G, Chu J H, et al. Experimental realization of a three-dimensional topological insulator, Bi_2Te_3 [J]. Science, 2009, 325(5937): 178-181.
- [18] Johnson P B, Christy R W. Optical constants of the noble metals [J]. Phys. Rev. B, 1972, 6(12): 4370-4379.
- [19] Yue Z J, Xue G L, Liu J, et al. Nanometric holograms based on a topological insulator material [J]. Nat. Commun., 2017, 8: 15354.

Measuring the complex refractive index of topological insulators based on spectroscopic ellipsometry

LU Hua^{1a}, LI Yang-wu^{1a}, YUE Zeng-ji², ZENG Wei^{1b}

(1a, School of Physical Science and Technology, Northwestern Polytechnical University,

Xi'an 710129, China; 1b, School of Materials Science and Engineering,

Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China;

2. Institute for Superconducting & Electronic Materials, University of Wollongong, Wollongong 2500, Australia)

Abstract: The spectroscopic ellipsometer was used to measure the complex refractive index of topological insulators (e. g. Bi_2Te_3 single crystal). The surface and bulk states of Bi_2Te_3 were fitted with the Drude and the Tauc-Lorentz models. The refractive indices and extinction coefficients of surface and bulk states of Bi_2Te_3 topological insulator were achieved. The properties of the dispersion curves for surface and bulk were analyzed. The results demonstrated that the bulk state possessed semiconductor-like properties with a band gap, whose refractive index could exceed 7 at near-infrared wavelengths. The surface state presented metal-like properties with a thickness of 2.52 nm.

Key words: spectroscopic ellipsometer; topological insulator; Bi_2Te_3 ; complex refractive index; extinction coefficient

[责任编辑:任德香]