

Низкотемпературная проводимость системы туннельно-связанных квантовых точек в диэлектрических пленках YBaCuO и LaSrMnO

© В.Д. Окунев, Н.Н. Пафомов, В.А. Исаев, Т.А. Дьяченко, А. Klimov*, S.J. Lewandowski*

Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины,
83114 Донецк, Украина

* Instytut Fizyki PAN, 02-668 Warszawa, Poland

E-mail: okunev@host.dipt.donetsk.ua

(Поступила в Редакцию 19 марта 2001 г.)

Приведены новые экспериментальные данные, относящиеся к исследованию природы участков $\rho(T) \cong \text{const}$ при $T < T_{\text{crit}}$, для диэлектрических пленок YBaCuO и LaSrMnO, полученных методом импульсного лазерного осаждения и содержащих нанокристаллические кластеры с металлической проводимостью. В эпитаксиальных пленках YBaCuO с тетрагональной структурой зависимости $\rho = \rho(T) \cong \text{const}$ ($T_{\text{crit}} = 10$ K) наблюдаются после воздействия на образцы излучения эксимерного лазера (KrF), а в аморфных пленках LaSrMnO ($T_{\text{crit}} \cong 160$ K) — непосредственно после приготовления. Эффект $\rho(T) \cong \text{const}$ проявляется при наличии в оптических спектрах образцов областей поглощения свободными носителями заряда и связывается с туннельной проводимостью системы квантовых точек.

Работа частично поддержана грантом N PBZ-KBN-013/T08/19 правительства Польши.

В связи с интенсивным развитием наноэлектроники наблюдается усиление интереса исследователей к системам с неупорядоченной структурой различного типа, содержащим кристаллические или кристаллоподобные кластеры с размерами от нескольких nm до нескольких десятков nm [1–13], которые сложно создать в образцах с совершенным дальним порядком. Для возможных приложений одним из перспективных вариантов является случайно-неоднородная среда, представляющая собой диэлектрическую матрицу (в аморфном или кристаллическом состоянии) с кластерами, обладающими металлической проводимостью. В этом смысле металлооксиды (ВТСП и манганаты), где механизмы формирования неоднородностей связаны с самой природой этих соединений [14–20], оказываются вне конкуренции. Такую неоднородную среду иногда называют туманной или капельной фазой [17]. Если величины электропроводности областей сильно различаются, то в общем случае полная электропроводность системы будет лимитироваться двумя основными каналами: туннелированием электронов между соседними кластерами и туннелированием между отдельными локализованными состояниями, связанными с наличием атомов примеси или точечных дефектов в диэлектрике. В последнем случае при низких температурах, как правило, реализуется прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка, а температурные зависимости электропроводности образцов согласуются с законом Мотта.

$$\sigma \sim \exp[-(T_0/T)^{1/4}]. \quad (1)$$

И в том, и в другом случае туннелирование зависит от температуры и осуществляется с участием фононов. Если низкоомные включения не являются металлами, то первый механизм не отличается принципиально от второго, и мы получаем фактически два разных канала для прыжковой проводимости. При наличии кластеров

с металлической проводимостью пленки приобретают характерные признаки гранулированных металлов. Их электропроводность, как показывают интенсивные исследования, выполненные в течение последних десятилетий, изменяется с температурой по так называемому закону $1/2$ [1,11]

$$\sigma \sim \exp[-(T_1/T)^{1/2}], \quad (2)$$

что связано преимущественно с разбросом гранул по размерам [11].

Однако эксперименты, выполненные для трех систем (YBaCuO, LaSrMnO, PrCaMnO) с использованием планарной геометрии электродов, показали, что при наличии в диэлектрических пленках кластеров малых размеров с металлической проводимостью на температурных зависимостях сопротивления имеются участки $\rho(T) \cong \text{const}$ [18,21,22]. В случае аморфных пленок YBaCuO полученные результаты были подтверждены и для структур типа "сэндвич" (Ag-a-YBaCuO-Cr-стекло) [21]. Это важно, поскольку появились надежные доказательства того, что наблюдающееся явление не связано с поверхностными загрязнениями высокоомных пленок или же с какими-то ограничениями аппаратуры в процессе измерений. Во всех случаях речь шла о пленках, полученных методом импульсного лазерного осаждения, когда кластерообразование особенно ярко выражено.

Трактовка этой необычной особенности для систем с неупорядоченной структурой была дана в работе [21]: в случае предельно малых (порядка нескольких nm) размеров гранул последние превращаются в квантовые точки, и при анализе электропроводности такой системы необходимо учитывать эффекты размерного квантования. Как известно из квантовой механики, при туннелировании электрона между двумя дискретными уровнями может реализоваться зависимость $\rho(T) = \text{const}$.

Расстояние между уровнями размерного квантования Δ определяется размером кластера R и плотностью состояний на уровне Ферми $N(E_F)$, от которой зависит концентрация свободных носителей заряда p :

$$\Delta \approx [R^3 N(E_F)]^{-1} \cong [R^3 p / E_F]^{-1}. \quad (3)$$

Процесс туннелирования электронов между квантовыми точками будет определяться соотношением Δ , kT и зарядовой энергии,

$$U = q/c, \quad (4)$$

где $c = \chi R/2$ — емкость сферического кластера радиусом $R/2$. Главные проблемы здесь связаны с разбросом гранул по размерам и по концентрациям свободных носителей заряда. Кластерная плазма позволяет получать образцы с одинаковым размером гранул [13] (в этом случае возможны безактивационные туннельные переходы [11]), но мы считаем это маловероятным. Среди теоретических работ, в которых исследовалось туннелирование электронов между двумя квантовыми точками, необходимо выделить работу [23]. В ней показано, что, несмотря на кулоновскую блокаду, ограничивающую туннелирование электронов между гранулами, возможны колебания электронной плотности между квантовыми точками, при которых из одной точки в другую периодически перетекает заряд, равный заряду одного электрона. Для гранулированных систем решения такой задачи пока нет, но трудностей в использовании результатов [23] для этого случая, скорее всего, не будет, поскольку ее можно свести к задаче о сетке сопротивлений, образованных соседними гранулами.

В данной работе приводятся новые экспериментальные данные, относящиеся к проблеме $\rho(T) = \text{const}$ в пленках YBaCuO и LaSrMnO . Как и ранее [12,18,19], пленки были получены методом импульсного лазерного осаждения при использовании эксимерного лазера (KrF , $\tau \approx 25 \text{ ns}$, $\Phi \cong 1.5\text{--}2.5 \text{ J/cm}^2$ на мишени) на подложках из SrLaGaO_4 и $\text{Nd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$.

В первую очередь рассмотрим ситуацию с аморфными пленками, содержащими кристаллические кластеры, уже знакомую по работам [18,21]. На рис. 1 показаны температурные зависимости удельного сопротивления $\rho(T)$ аморфных пленок LaSrMnO , полученных распылением мишени $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_3$ при различных температурах подложек T_S из $\text{Nd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Участки $\rho(T) = \text{const}$ ($T_{\text{crit}} \cong 160 \text{ K}$) проявляются, если температура осаждения $T_S < 650^\circ\text{C}$. Далее наблюдается переход аморфное состояние — кристалл, и при $T_S \geq 650^\circ\text{C}$ температурные зависимости сопротивления $R(T)$ имеют характерный для этого состояния максимум вблизи температуры Кюри [15,22]. Электропроводность пленок при этом возрастает на 5–9 порядков. Свойственный металлам положительный температурный коэффициент сопротивления в зависимости $\rho = \rho(T)$ наблюдается при высоких ($\sim 1 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}$) значениях ρ , что является одним из

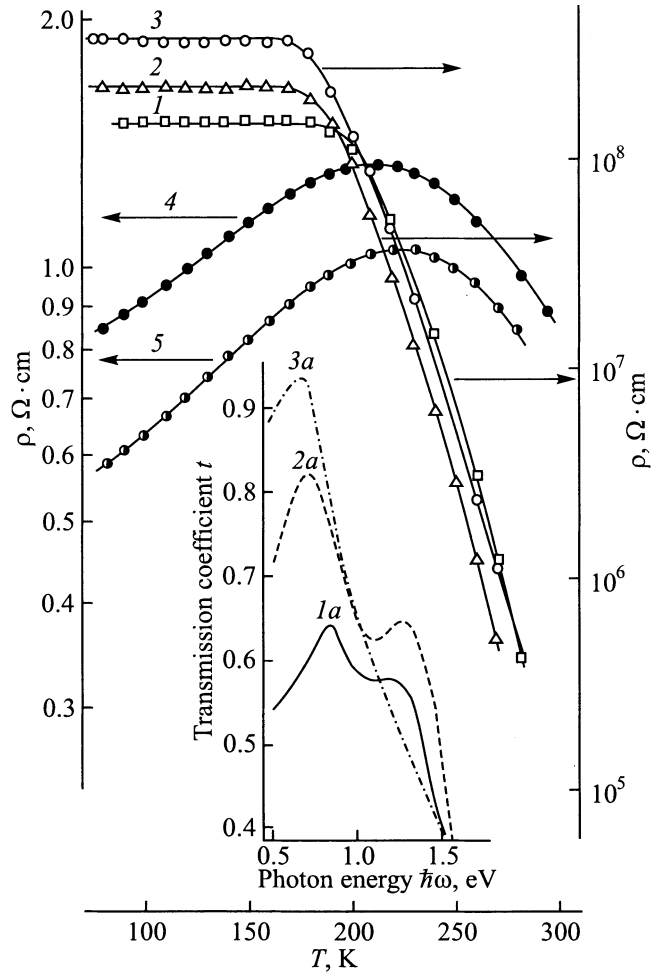


Рис. 1. Температурные зависимости удельного сопротивления аморфных (1–3) и кристаллических (4, 5) образцов $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_3$ с планарной геометрией электродов. Температура роста пленок T_S , $^\circ\text{C}$: 1 — 450, 2 — 550, 3 — 600, 4 — 650, 5 — 700. Толщина пленок $l = 1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$, расстояние между электродами 0.3 см. Напряженность постоянного электрического поля при измерениях сопротивления образцов составляет $1 \cdot 10^3$ (1–3) и 3.3 V/cm (4, 5). На вставке — спектры оптического пропускания ($T = 300 \text{ K}$) аморфных пленок. T_S , $^\circ\text{C}$: 1a — 450, 2a — 550, 3a — 600.

важных свидетельств наличия неоднородностей в образцах [17]. О существовании кластеров с металлической проводимостью можно судить по наличию в спектрах оптического пропускания участков при $\hbar\omega < 0.7\text{--}0.9 \text{ eV}$ (граничное значение $\hbar\omega$ уменьшается от 0.9 до 0.7 eV с ростом T_S от 450 до 600°C), обусловленных поглощением свободными дырками в кластерах при внутризонных оптических переходах [19]. Ранее подобные участки в спектрах нами наблюдались для аморфных пленок YBaCuO , содержащих нанокристаллические кластеры с металлической проводимостью [18]. Следует обратить внимание на то, что увеличение пропускания пленок (и, соответственно, уменьшение оптической проводимости) в этом интервале $\hbar\omega$ с ростом T_S , связанное с уменьше-

нием объема металлических кластеров, хорошо согласуется с возрастанием ρ образцов на участке $\rho(T) = \text{const}$. Анализ поведения функции $(1/t) \cdot \partial t / \partial(\hbar\omega)$, где t — коэффициент пропускания, в длинноволновой области спектра позволяет определить произведение концентрации металлической фазы C_m на концентрацию дырок p [12,18,19]

$$\frac{1}{t} \frac{\partial t}{\partial(\hbar\omega)} \approx C_m p. \quad (5)$$

Исследования спектров пропускания пленок LaSrMnO дали возможность не только получить данные о концентрации металлических кластеров, но и с помощью формулы

$$R^3 = \frac{135\pi^2 \xi (1+X)^{1/3}}{32m^2 e^2 E_F f(X)}, \quad (6)$$

взятой из работы [15], оценить их размер R . В (6) ξ — эффективная диэлектрическая проницаемость, $f(X) = [2X + 3 - 3 \cdot (1+X)^{2/3}]$, $X = V_A/V_F$ — соотношение объемов антиферромагнитной и ферромагнитной фаз; фактически можно записать $X \cong 1/C_m$. Для $C_m = 0.02-0.05$ получаем $R = 20-50 \text{ \AA}$, что соответствует размерам кластеров, образующихся в аморфных пленках при импульсном лазерном осаждении [18]. При концентрации дырок $p \sim 3 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ величина Δ находится в интервале $10^{-2}-10^{-1} \text{ eV}$, что объясняет величину $T_{\text{crit}} = 160 \text{ K}$.

При проведении экспериментов с эпитаксиальными пленками YBaCuO основные надежды на выявление участков $\rho(T) = \text{const}$ или же участков с близкими к нулю температурными коэффициентами сопротивления мы связывали с исследованием пленок с тетрагональной структурой, в которых мала концентрация кислорода и велика вероятность образования кластеров с металлической проводимостью. Типичный спектр оптического пропускания таких образцов представлен кривой 1 на рис. 2. Не обсуждая особенности спектра в коротковолновой области, следует отметить отсутствие участка, связанного с поглощением свободными носителями заряда при $\hbar\omega < 1.2 \text{ eV}$, который непременно присутствует (кривая 5 на рис. 2) в сверхпроводящих эпитаксиальных слоях YBaCuO [19]. Из-за высоких значений сопротивления образцов электрические измерения при низких температурах оказались невозможными, и зависимость $\rho(T) \cong \text{const}$ обнаружить не удалось. Участок, обусловленный вкладом поглощения свободными носителями и свидетельствующий о наличии металлических кластеров, появляется после лазерного облучения импульсами высоких энергий (кривая 2 на рис. 2), способствующего формированию неоднородностей [12]. Однако, к сожалению, из-за еще более высоких значений сопротивления (при $T \cong 300 \text{ K}$ оно увеличивается в 5–10 раз) было невозможно осуществить корректные измерения при низких температурах. Величина C_m даже после лазерного облучения пленки составляла менее 2%.

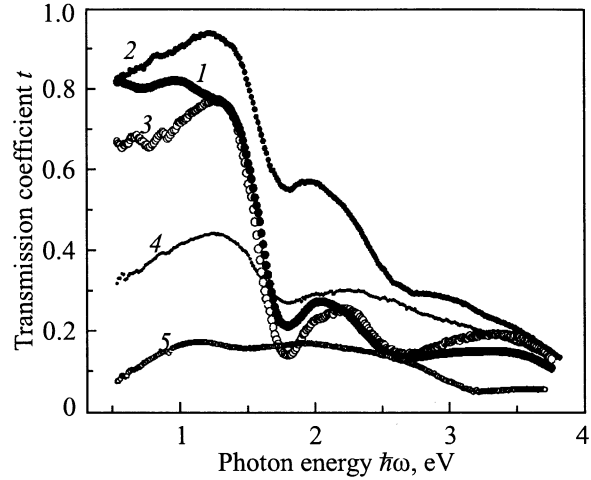


Рис. 2. Спектры оптического пропускания кристаллических пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$: 1 — с тетрагональной структурой ($\rho \cong 1.2 \cdot 10^4 \Omega \cdot \text{cm}$ при $T = 300 \text{ K}$), 2 — после облучения образца, представленного кривой 1 (20 импульсов, $\tau \cong 25 \text{ ns}$, $J = 0.1 \text{ J/cm}^2$), 3 — с тетрагональной структурой и повышенной концентрацией кислорода ($\rho \cong 3 \cdot 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ при $T = 300 \text{ K}$), 4 — после лазерного облучения образца, представленного кривой 3 (10 импульсов, $\tau \cong 25 \text{ ns}$, $J = 0.1 \text{ J/cm}^2$). Кривая 5 — спектр оптического пропускания эпитаксиальной сверхпроводящей пленки с $T_{c0} = 90.3 \text{ K}$.

Успеха удалось добиться, повысив содержание кислорода в пленках с тетрагональной структурой и уменьшив (примерно на порядок при $T = 300 \text{ K}$) сопротивление образцов. Снижение сопротивления благоприятным образом сказалось на технике измерений и дало возможность использовать для измерений при низких температурах самую обычную аппаратуру. Никаких признаков наличия сверхпроводящего перехода в образцах при $T \geq 4.2 \text{ K}$ не наблюдалось. В то же время участки поглощения свободными носителями имеются уже в исходных образцах (кривая 3 на рис. 2).

Температурные зависимости сопротивления образцов (кривая 3 на рис. 3) качественно отличаются и от закона Мотта (1), и от зависимости типа (2). При низких температурах значения локальной энергии активации $\delta\epsilon$, определяемой как $\delta\epsilon = \partial \ln \rho / \partial(kT)^{-1}$ [10], близки к нулю. Величина $\delta\epsilon$ быстро уменьшается с понижением T : $\delta\epsilon = 1.65 \cdot 10^{-4} \text{ eV}$ при $T = 10 \text{ K}$, что приблизительно в 5 раз меньше kT , но условие $\rho(T) = \text{const}$ все же не выполняется. Практически точного равенства $\rho(T) = \text{const}$ (для $T < 10 \text{ K}$) удалось добиться при лазерном облучении образцов (кривая 4 на рис. 3). В интервале $100 < T < 300 \text{ K}$ их сопротивление возрастает в 1.5–5 раз, в то время как при низких температурах ($T < 20 \text{ K}$), когда основную роль начинает играть проводимость с участием системы туннельно-связанных квантовых точек, оно понижается на 1–2 порядка (на рис. 3 приблизительно в 40 раз) по сравнению с исходными образцами. Усиление неоднородности

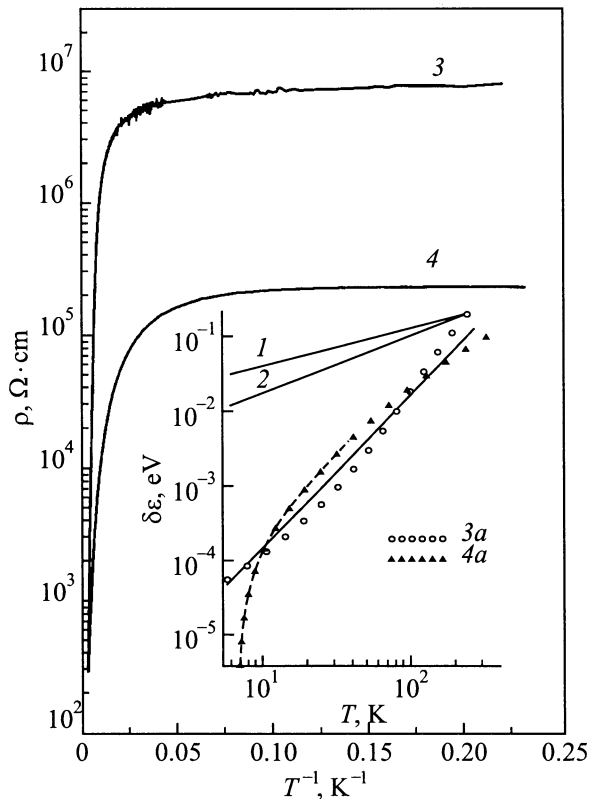


Рис. 3. Температурные зависимости удельного сопротивления пленки с тетрагональной структурой и повышенной концентрацией кислорода до (3) и после (4) лазерного облучения. Толщина пленки $l = 1 \cdot 10^{-5}$ см, расстояние между электродами (плоская геометрия) $L = 3 \cdot 10^{-3}$ см, напряженность постоянного электрического поля при измерениях сопротивления образцов $F = 3.5 \cdot 10^4$ В/см. Номера кривых соответствуют номерам на рис. 2. На вставке — температурные зависимости локальных энергий активации $\delta\varepsilon = \partial \ln \rho / \partial (kT)^{-1}$: 3a — экспериментальные точки для исходного образца, 4a — после лазерного облучения, 1 — расчетная зависимость $\delta\varepsilon \sim T^{3/4}$, соответствующая закону Мотта (1), 2 — расчетная зависимость $\delta\varepsilon \sim T^{1/2}$, соответствующая зависимости (2).

образцов при облучении видно по характеру изменения их спектров пропускания на рис. 2: в коротковолновой области наблюдается существенное просветление, в то время как в длинноволновой области спектра, на участках, связанных с поглощением свободными носителями заряда, пропускание уменьшается, что обусловлено увеличением количества кластеров с металлической проводимостью. Если считать, что концентрация дырок в кластерах с металлической проводимостью соответствует концентрации носителей в эпитаксиальных слоях с $T_C = 90\text{--}91$ К (это состояние представлено кривой 5 на рис. 2), то в исходных пленках величина C_m не превышает 2–3%, а после облучения увеличивается до $\sim 5\text{--}7\%$. С учетом тенденции к уменьшению размера кластеров и концентрации дырок в них получается, что при лазерном облучении образцов количество кластеров

с металлической проводимостью в объеме пленок может увеличиваться в 4–5 раз. При оценках учитывалось влияние диэлектрической фазы на параметры эпитаксиальных слоев [19]. Для нас наиболее существенными являются уменьшение расстояния между металлическими кластерами при лазерном облучении пленок и соответственно экспоненциальный рост вероятности туннельных переходов электронов.

Пока неясно, допустимо ли использование формулы (6) для нахождения размера кластеров, заведомо не являющихся ферромагнитными, в пленках YBaCuO. Если все же проделать эту процедуру, то в соответствии с экспериментальными результатами размер кластеров будет несколько больше, а T_{crit} — ниже: чем в аморфных образцах LaSrMnO. Однако ситуация здесь еще осложняется особенностями взаимодействия лазерного излучения с веществом [12]: наряду с уменьшением размера кластеров и концентрации дырок в них происходит генерация новых кластеров, так что уменьшение размеров неоднородностей не обязательно будет сопровождаться снижением C_m , и тогда способ определения размеров кластеров, предложенный в [15], в этом случае применять нельзя.

Температурная зависимость локальной энергии активации при связи ρ с T вида (2) определяется $\delta\varepsilon = \partial \ln \rho / \partial (kT)^{-1} = (1/2) \cdot kT_1^{1/2} T^{1/2}$ (прямая 2 на вставке к рис. 3). Для закона Мотта (1) эта зависимость сильнее: $\delta\varepsilon = (1/4) \cdot kT_0^{1/4} T^{3/4}$ (прямая 1 на вставке). Там же приведены экспериментальные точки. Если связь $\delta\varepsilon$ с T также аппроксимировать степенной функцией $\delta\varepsilon \sim T^n$, то $n = 2.1$, что втрое выше значения $n = 3/4$, свойственного закону Мотта. После облучения образца зависимость $\delta\varepsilon$ от T идет резко вниз. При $T = 7$ К величина $kT = 6 \cdot 10^{-4}$ эВ более чем на два порядка превышает значение $\delta\varepsilon \cong 5 \cdot 10^{-6}$ эВ. При отсутствии теории столь малых $\delta\varepsilon$ представляется не очень ясной. Для установления того, насколько и по какому закону $\delta\varepsilon$ приближается к нулю, необходимо уменьшение погрешности измерений, что возможно при использовании более низкоомных образцов.

Список литературы

- [1] Ping Sheng, J. Klafter. Phys. Rev. **B27**, 4, 2583 (1983).
- [2] А.Г. Аронов, М.Е. Гершензон, Е.Ю. Журавлев. ЖЭТФ **87**, 3, 971 (1984).
- [3] А.Г. Забродский, К.Н. Зиновьева. ЖЭТФ **86**, 2, 727 (1984).
- [4] А.М. Глухов, Н.Я. Фогель, А.А. Шабло. ФТТ **28**, 4, 1043 (1986).
- [5] А.Н. Алешин, З.А. Гуц, А.Н. Ионов, И.С. Шлимак. ФТП **20**, 3, 490 (1986).
- [6] В.Д. Окунев, З.А. Самойленко. Письма в ЖЭТФ **43**, 1, 24 (1986).
- [7] В.Д. Окунев, З.А. Самойленко. Письма в ЖЭТФ **53**, 1, 42 (1991).
- [8] В.Ф. Гантмахер, В.Н. Зверев, В.М. Теплинский, О.И. Баркалов. ЖЭТФ **103**, 4, 1460 (1993).

- [9] Ю.Ф. Комник. ФНТ **8**, 2, 115 (1982).
- [10] В.Д. Окунев, Н.Н. Пафомов. ЖЭТФ **116**, 1, 276 (1999).
- [11] Е.З. Мейлихов. ЖЭТФ **115**, 4, 1484 (1999).
- [12] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, A. Abal'oshev, I. Abal'osheva, P. Gierlowski, A. Klimov, S.J. Lewandowski, V.N. Varukhin, S. Barbanera. Phys. Rev. **B62**, 1, 696 (2000).
- [13] Б.М. Смирнов. УФН **170**, 5, 495 (2000).
- [14] G. Yu, A.J. Heeger. Int. J. Mod. Phys. **B7**, 22, 3751 (1993).
- [15] Э.Л. Нагаев. ФТТ **40**, 11, 2069 (1998).
- [16] А.А. Абрикосов. УФН **168**, 6, 683 (1998).
- [17] Л.П. Горьков. УФН **168**, 6, 665 (1998).
- [18] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, V.M. Svistunov, A. Abal'oshev, E. Dynowska, P. Gierbowski, A. Klimov, S.J. Lewandowski. J. Appl. Phys. **85**, 10, 7282 (1999).
- [19] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, A. Abal'oshev, P. Gierlowski, A. Klimov, S.J. Lewandowski. Appl. Phys. Lett. **75**, 13, 1949 (1999).
- [20] М.А. Иванов, В.М. Локтев. ФНТ **25**, 12, 1325 (1999).
- [21] В.Д. Окунев, Н.Н. Пафомов, А. Абалешев, Х. Бельска-Левандовска, П. Герловски, А. Климов, С. Левандовски. Письма в ЖТФ **26**, 20, 20 (2000).
- [22] В.Г. Прохоров, Г.Г. Каминский, В.С. Флис, Янг Пак Ли. ФНТ **25**, 10, 1060 (1999).
- [23] В.А. Бурдов. Письма в ЖЭТФ **71**, 9, 570 (2000).