

07

## Кулоновская блокада и перенос заряда в микрозернах антимонида индия

© Е.Г. Глуховской, Н.Д. Жуков

Саратовский Государственный университет им. Н.Г. Чернышевского  
E-mail: ndzhukov@rambler.ru

Поступило в Редакцию 29 января 2015 г.

С помощью туннельного микроскопа в режиме автоэмиссии исследованы вольт-амперные характеристики и спектры плотности состояний зерен нано- и микро размеров антимонида индия с проводимостью, близкой к собственной и электронной. Интерпретация полученных зависимостей позволяет считать, что наблюдаются эффекты ограничения тока, подобного кулоновской блокаде в квантовых точках. Результаты объясняются в модели многоэлектронной перезарядки наноконденсатора, образованного в приповерхностном слое микрозерна, в котором заряд локализован из-за кулоновского взаимодействия „сверхлегких“ электронов в объеме и на неровной поверхности микрозерна.

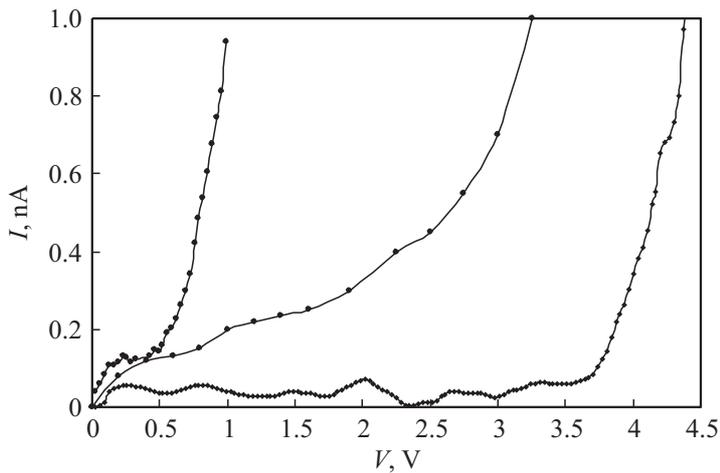
Определяющими процессами переноса заряда в квантовых точках (КТ) являются туннелирование электронов и его ограничение локализованным зарядом (кулоновская блокада). В литературе подробно рассмотрены случаи поэлектронного туннелирования в малоэлектронной квантово-размерной системе металл–диэлектрик–металл [1], металлический квантовый островок между двумя туннельными контактами [2], туннелирование через кремниевую квантовую точку в виде зубца [3], туннелирование через подвешенную арсенид-галлиевую квантовую точку [4]. Во всех этих рассмотрениях использована модель одноэлектронной перезарядки наноконденсатора. Из теоретического рассмотрения транспорта электронов в такой системе сформулированы условия, при которых проявляется кулоновская блокада [1,2]: энергия минимальной величины заряда в КТ  $E_Q = e^2(2C)^{-1} \gg kT$ , проводимость туннельного транспорта  $G \ll 4e^2(h)^{-1} = 2 \cdot 10^{-4} \Omega^{-1}$ , (критическое) напряжение кулоновской блокады  $V_Q = e(2C)^{-1}$ , где  $e$  — заряд электрона,  $h$  — постоянная Планка,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура,  $C$  — электрическая емкость КТ-наноконденсатора. Определяющей в этой модели является величина  $C$ , которая для реальных условий эксперимента

должна быть меньше  $10^{-18}$  F. Для КТ в виде шара диаметром  $d = 1$  nm:  $C \approx 5 \cdot 10^{-19}$  F,  $E_Q = 0.16$  eV,  $V_Q = 0.16$  eV,  $G \approx 10^{-7} \rho^{-1} \cdot \Omega^{-1}$  ( $\rho$  — удельное сопротивление материала КТ,  $\Omega \cdot \text{cm}$ ). При этом величины  $d \sim 1$  nm соответствуют величинам длины волны де Бройля  $\lambda$  для электрона:  $\lambda = h(2mE)^{-1/2}$  ( $m$  и  $E$  — масса и энергия электрона). Приведенные величины на пределе того, что необходимо для наблюдения эффектов в нормальных условиях, что ведет к определенным практическим осложнениям.

В данной работе обнаружено и исследовано ограничение транспорта электронов, подобное кулоновской блокаде, в относительно простой структуре: вольфрамовый микрозонд с наноразмерным заострением — нанозазор ( $l \sim 10$  nm) — микрозерно ( $d \sim 1$   $\mu\text{m}$ ) поверхности полупроводника. Исследование проводилось на образцах антимонида индия (InSb), для которого  $\lambda$  имеет самые большие значения благодаря экстремально малым величинам эффективной массы  $m$  и энергии  $E$  электронов ( $m < 0.02m_0$ ,  $E < 0.2$  eV). Длина волны де Бройля для электрона  $\lambda$  при этом более 25 nm, и эффекты размерного квантования и локализации заряда должны наблюдаться в частицах и на дистанциях, в десятки раз больших, чем для всех других материалов.

В работе исследованы образцы InSb в виде пластин с зернистой поверхностью двух типов проводимости: 1 типа — близкой к собственной (концентрация электронов  $5 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ) и 2 типа — электронной ( $10^{18} \text{cm}^{-3}$ ). Исследования проводились с помощью сканирующего зондового микроскопа СЗМ Наноздьюкатор-1. Методики измерений и анализа описаны в работе [5]. Контроль состояния поверхности микрозерен, в результате которого можно гарантировать, что измерения выполнены на поверхности действительно полупроводника, а не другого материала, называемого обычно „грязью“, проводился по топограммам силовой и туннельно-токовой микроскопии и характеристикам спектров плотности состояний по общепринятым методикам [6,7].

Измерения вольт-амперных характеристик (ВАХ) проводились в автоматическом режиме по 10–15 ВАХ на точку в нескольких точках на поверхности образца. По воспроизводимости результатов измерений отбирались точки устойчивого контакта. Для исключения систематических ошибок проводились усреднения ВАХ. Анализ результатов проводился с помощью программного обеспечения Gwyddion. Сопоставительный анализ проводился с учетом результатов теории автоэмиссии электронов, применимость которой специально доказывалась [5]. Специ-



**Рис. 1.** Типичные ВАХ для образцов типа 1: кривая справа — „тм“, темновая; слева — „св“, с засветкой; в середине — „ск“, на сколе.

ально исследовался вопрос достоверности измерений ВАХ в интервалах малых величин тока ( $10^{-10}$ – $10^{-11}$  А). При этом проводились измерения на образцах разных полупроводников (InSb, InAs, GaAs), что позволило исключить ошибки, обусловленные аппаратной схемой питания.

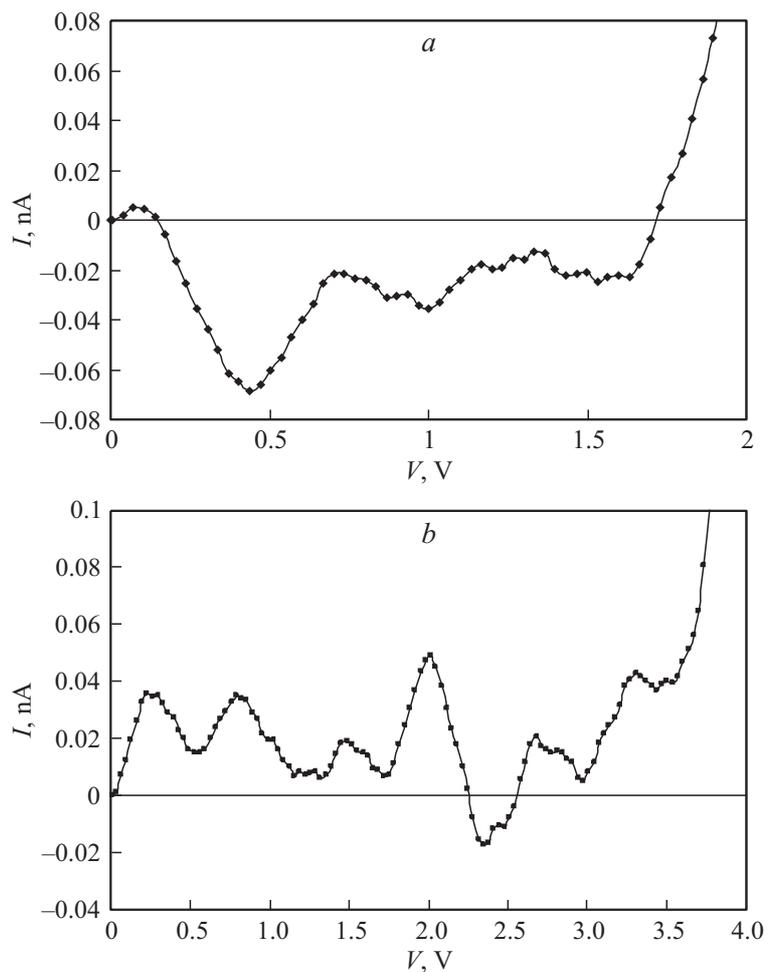
Характерные экспериментальные ВАХ для образцов типа 1 (полярность — „минус“ на полупроводнике) приведены на рис. 1, на котором обозначены: „тм“ — темновая (кривая справа), „св“ — световая (кривая слева), „ск“ — на сколе (идеально гладкой поверхности). Для образцов типа 2 характер кривой наблюдался примерно таким же, как для — типа 1 „св“. ВАХ для интервалов, не имеющих особенностей, всех исследованных образцов удовлетворительно соответствовали формулам теории автоэмиссии [5]. По ним оценивались значения форм-фактора усиления поля в зонде, поправки Нордгейма для автоэмиссии из полупроводника, радиуса круга растекания тока на зонде  $r_Z$  и полупроводнике  $r_S$ . Было найдено, что для образца в случае рис. 1 „тм“  $r_Z \approx 15$  nm,  $r_S \approx 80$  nm.

Общий характер кривой „тм“ рис. 1 — экстремально малые токи и „искаженная синусоида“, отчасти напоминающая кулоновскую

лестницу, в широком интервале величин напряжения с переходом к ВАХ автоэмиссии — позволяют полагать, что можно ожидать искомым проявлений. На рис. 2 приведены ВАХ для образца типа 1 в двух полярностях напряжения.

При полярности „минус“ на зонде (рис. 2, *a*) из него происходит эмиссия электронов, которые пролетают зазор и попадают на поверхность микрозерна. Емкость наноконденсатора зазора (величина зазора  $l = 10$  nm, радиус сферы растекания тока на зонде  $r_z = 15$  nm)  $C_z = \varepsilon(\pi r_z^2/l) = 5 \cdot 10^{-19}$  F ( $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость среды). Конденсатор такой емкости зарядится одним электроном при  $V_0 = e/C_z = 0.3$  V. При этом электрон путем эмиссии из зонда и пролета зазора попадает на поверхность микрозерна, зарядив ее и понизив потенциал на  $V_1 = e(\varepsilon l)^{-1} = 1.7$  V. Это значение является критическим для окончания процесса одноэлектронной перезарядки. При приложении напряжения ( $-V_z$ ) электрон, вылетев из зонда, практически мгновенно достигает поверхности микрозерна, понизив ее потенциал на напряжение инверсии  $V_1 = 1.7$  V, вынужденно возвращается на зонд, создавая некий ток обратного для ( $-V_z$ ) направления. Зарядка наноконденсатора одним электроном произойдет при  $V_{z0} = e/C_z = 0.3$  V. При этом ток перезарядки растет с ростом напряжения. При дальнейшем росте  $V_z$  разница ( $V_1 - V_z$ ) уменьшается, и ток в связи с этим тоже уменьшается, пока не начнет действовать второй электрон, приводя к аналогичному процессу, который будет отличаться несколько меньшими значениями ( $V_1 - V_z$ ) и периода перезарядки. В итоге ВАХ будет иметь вид кулоновской лестницы рис. 2, *a*. Такая характеристика и точное совпадение параметров  $V_{z0}$  и  $V_K$  позволяют говорить о правильности использованной модели.

Физический смысл процесса состоит в том, что эмиссия электронов из зонда и их пролет в зазоре безынерционны (время пролета оценочно  $10^{-13} - 10^{-14}$  s), а обратная эмиссия с поверхности полупроводника относительно инерционна. Зарядка наноконденсатора — мгновенна, а разрядка — медленна, поэтому измеряется ток разряда, который имеет обратное к норме направление (рис. 2, *a*). Для значений тока 0.02 nA (рис. 2, *a*) темп выброса электронов из зонда (зарядка)  $10^8$  1/s. С учетом времени пролета  $10^{-13} - 10^{-14}$  s и условия непрерывности тока равновесное время жизни электронов на поверхности полупроводника  $\tau_L = (10^{-5} - 10^{-6})$  s. Это значение на 2–3 порядка больше величин времени жизни электронов в антимониде индия [8]. Этот результат



**Рис. 2.** ВАХ при полярностях „минус“ на зонде (*a*) и „минус“ на полупроводнике (*b*).

свидетельствует о том, как это принято для полупроводников, что на поверхности имеются состояния локализации электронов.

При полярности „минус“ на полупроводнике (рис. 2, *b*) перезарядка наноконденсатора происходит с участием эмиссии электронов из

микрозерна. При обозначенных выше значениях  $\tau_L = 10^{-5} - 10^{-6}$  s и для величин тока  $\sim 0.03$  nA (рис. 2, b) соответствующее количество электронов порядка 1000 (заряд  $Q = 2 \cdot 10^{-16}$  C). Приняв величину напряжения полной зарядки  $V_K \approx 3.5$  V (рис. 2, b), можно получить примерное значение емкости наноконденсатора  $C = Q/V_K = 7 \cdot 10^{-17}$  F. Полагая, что заряд распределен в приповерхностной зоне полупроводника толщиной  $a$ , можно получить ее значение:  $a = \pi \epsilon r_s^2 C^{-1} = 28$  nm.

Исходя из этих данных, модель наноконденсатора основана на предположении о том, что приповерхностный слой микрозерна толщиной на уровне длины волны де Бройля для электрона  $\lambda$  имеет электроны проводимости, локализованные в состояниях кулоновского взаимодействия. Этот заряд создает энергетический барьер для туннелирующих сквозь него электронов проводимости. Энергия этого барьера, отсчитанная от уровня Ферми,  $[Q^2(2C)^{-1} - \text{eV}]$ . Заряд изменяется во времени порциями — осциллирует. Причина осцилляций в том, что зарядка и разрядка наноконденсатора происходят с разной скоростью: зарядка благодаря безынерционному процессу протекания электронов в зоне проводимости, разрядка — эмиссии электронов в зазор из связанных приповерхностных электронных состояний, имеющих время жизни  $\tau_L$ . Конкуренция процессов зарядки и разрядки наноконденсатора таким образом и определяет характер поведения ВАХ.

Исходя из такой модели наноконденсатора, можно рассчитать параметры его перезарядки и сравнить их с данными эксперимента.

Емкость наноконденсатора  $C = \pi \epsilon r_s^2 a^{-1} = 6.5 \cdot 10^{-17}$  F. Локализованный заряд  $Q = CV_K = 2.5 \cdot 10^{-16}$  C (в приповерхностной зоне микрозерна  $\sim 1500$  электронов). Концентрация локализованных электронов  $N = Q(\pi \epsilon r_s^2 a)^{-1} = 4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  примерно соответствует концентрации электронов кулоновского взаимодействия  $(\lambda)^{-3} = 2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Локализованный заряд на поверхности микрозерна  $Q_S = \pi \epsilon r_s^2 (N)^{2/3} = 1 \cdot 10^{-17}$  C ( $\sim 130$  электронов). Напряжение снятия блокады  $V_K = Q/C = 3.5$  V соответствует данным ВАХ (рис. 2, b). Период перезарядки  $\Delta V = 2Q_S/C = 0.6$  V соответствует данным рис. 2, b. Частота осцилляций тока  $f = I/Q_S \sim 10^6$  Hz, период  $1/f$  соотносится с  $\tau_L = 10^{-5} - 10^{-6}$ . Емкостное сопротивление  $R_C = R_C = (2\pi f C)^{-1} \sim 10^9 \Omega$ . Энергия минимальной порции заряда  $0.5Q_S^2/C = 0.2$  eV много больше  $kT = 0.025$  eV. Проводимость транспорта перезарядки  $4Q_S^2/h \sim 1\Omega^{-1}$  много больше  $R_C^{-1} = 10^{-9} \Omega^{-1}$ .

При каждом значении прикладываемого напряжения  $\Delta V$  устанавливается некая стационарная величина заряда, а его уменьшение от начального (при  $V = 0$ ) —  $\Delta Q = C\Delta V$ . При уменьшении заряда его энергетический барьер снижается, принимая значения:  $\{[Q^2 - (Q - \Delta Q)^2]C^{-1} - e\Delta V\} = [(\Delta Q/C)(Q - \Delta Q/2)] - e\Delta V$ . Барьер обнуляется при условии  $(Q - \Delta Q/2) = e\Delta V C/\Delta Q$ . Это означает, что зависимость проводимости наноконденсатора от напряжения будет в виде пиков с шириной  $\Delta V$ . Число этих пиков будет  $V_K/\Delta V = QC^{-1}\Delta V^{-1} \sim 6$ . Порцией заряда  $\Delta Q$  является эмитируемый с поверхности микрозерна заряд  $Q_S$ .

Таким образом, вычисленные и экспериментальные данные в части общего характера ВАХ и параметров  $V_K$  и  $\Delta V$  имеют хорошее соответствие. Зависимости же пиков по величинам тока являются сложными (рис. 2, *b*). Это связано с тем, что, на самом деле, все параметры процесса транспорта заряда ( $C$ ,  $Q_S$ ,  $\Delta V$ ,  $\tau_L$ ,  $\lambda$ ) зависят от свойств электронной системы микрозерна и величин напряжения. Наблюдаемый в интервале 2–2.5 В участок резкого падения величин тока вполне вероятен с учетом возможного значительного уменьшения величин  $\tau_L$  с ростом  $V$ . Все эти вопросы требуют продолжения исследований.

В отличие от одноэлектронной перезарядки наноконденсатора [1–4], в рассмотренном случае явно не проявляется эффект кулоновской лестницы, а искаженная синусоида выглядит как „полочка“. Это можно объяснить принципиальным различием перезарядки малоэлектронной пространственно замкнутой и многоэлектронной полуограниченной КТ. В малоэлектронной размерно-ограниченной КТ единственным источником изменений заряда наноконденсатора является питающая схема. Величина заряда  $Q$  (и соответственно ток на ВАХ) растет с ростом  $V$ . В рассматриваемом же случае источником заряда наноконденсатора являются питающая схема и объем микрозерна. Перезарядка происходит примерно равными порциями поверхностного заряда  $Q_S$ , который пополняется из объема, поэтому до определенных величин напряжения интегральный ток перезарядки не растет. Когда же подпитка из объема „истощается“ (при  $V \sim 2.5$  В, рис. 2, *b*), ток начинает расти, и ВАХ становится похожей на кулоновскую лестницу ( $V \sim 2.5$ –4 В, рис. 2, *b*), вслед за чем ВАХ имеет обычный вид эмиссионной характеристики.

Нами предложен следующий механизм локализации заряда в микрозерне. Электроны, переходя из валентной зоны в зону проводимости на некоторое время жизни  $\tau_0$ , имеют квантованные значения энер-

гии  $E$  и не взаимодействуют между собой. Однако в случае, когда расстояния между электронами становятся меньшими или равными  $\lambda$ , взаимодействие между электронами проявится как кулоновское расталкивание. Установится некоторое статистическое состояние электронов на квантованных энергетических уровнях, параметры которых будут определяться концентрацией электронов, энергией их кулоновского взаимодействия, величинами энергии  $E$ . Под локализацией электронов в данном случае можно понимать то, что электроны будут находиться на уровнях кулоновского взаимодействия некоторое время  $\tau_L$ , большее, чем время жизни  $\tau_0$ . Размерное квантование локализованного заряда в приповерхностной зоне зерна происходит за счет кривизны и неровности его поверхности. На „идеальной“ (сколотой) поверхности эффект не проявляется (рис. 1, кривая „ск“).

Условием проявления кулоновского взаимодействия электронов и локализации заряда являются сравнительно малые значения концентрации в зоне проводимости. Их увеличение в случаях для образцов типа 2 и 1 „св“ срывает эффект. За счет кулоновской блокады темновые токи имеют очень малые величины (менее  $10^{-10}$  А), а фототоки — резкий рост (рис. 1, „св“), что должно дать значительное повышение параметров фоточувствительности. Это свидетельствует о перспективности использования микроструктурного антимионида индия собственного типа проводимости в качестве фото-, автокатада.

Таким образом, в зернах микронного размера поверхности антимионида индия с проводимостью, близкой к собственной, наблюдается ограничение тока, подобное кулоновской блокаде и обусловленное локализацией заряда в приповерхностной зоне микрозерна, возникающего за счет кулоновского взаимодействия сверхлегких электронов. Полученные экспериментально зависимости хорошо объясняются в модели многоэлектронной перезарядки наноконденсатора.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ 14-07-00255.

## Список литературы

- [1] Аверин Д.В., Зорин А.Б., Лихарев К.К. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 2. С. 692.
- [2] Щелкачёв Н.М., Фоминов Я.В. Электрический ток в наноструктурах: кулоновская блокада и квантовые точечные контакты. М.: МФТИ, 2010. 39 с.

- [3] Баграев Н.Т., Буравлёв А.Д., Клячкин Л.Е. и др. // ФТП. 2005. Т. 39. В. 6. С. 716–728.
- [4] Погосов А.Г., Буданцев М.В., Шевырин А.А. и др. // Вестник НГУ. Сер. Физ. 2009. Т. 4. В. 2. С. 53–57.
- [5] Жуков Н.Д., Глуховской Е.Г. // Нанотехника. 2014. № 2(38). С. 127–131.
- [6] Рыков С.А. Сканирующая зондовая микроскопия полупроводниковых материалов и наноструктур. СПб.: Наука, 2001. 53 с.
- [7] Манцевич В.Н., Музыченко Д.А., Орешкин А.И. и др. // ПТЭ. 2006. № 6. С. 1–4.
- [8] Маделунг О. Физика полупроводниковых соединений элементов III и V групп. М.: Мир, 1967. 447 с.