

12,13

Отрицательная емкость в островковых металлических пленках

© А.П. Болтаев, Ф.А. Пудонин, И.А. Шерстнев[†]

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Москва, Россия

[†] E-mail: shersntevia@lebedev.ru

Поступила в Редакцию 24 июня 2024 г.

В окончательной редакции 25 июня 2024 г.

Принята к публикации 26 июня 2024 г.

Проведены исследования электрических свойств островковых пленок. Измерены зависимости удельной дифференциальной проводимости пленок и зависимости удельной дифференциальной емкости пленок от температуры и частоты внешнего электрического поля. Исследования электрофизических свойств пленок позволили установить процессы, которые определяют возникновение отрицательной емкости в островковых пленках. Эти процессы с одной стороны определяются ростом концентрации избыточных носителей заряда в пленке под действием электрического поля, с другой стороны инерционностью изменения тока в пленке относительно внешнего переменного электрического поля. Инерционность изменения тока связана с темпами генерации и рекомбинации концентрации избыточных заряженных островков.

Ключевые слова: островковая пленка, тонкая пленка, отрицательная емкость, диэлектрическая проницаемость.

DOI: 10.61011/FTT.2024.09.58788.162

1. Введение

Эффект отрицательной емкости (ОЕ) может возникнуть в структурах, в которых наблюдается эффект запаздывания, когда накопление заряда в системе происходит медленнее, чем изменение приложенного напряжения. Таким образом, на переменном токе возникает сдвиг фаз между током и напряжением, соответствующий отрицательной диэлектрической проницаемости [1] или, так называемому индуктивному поведению динамических характеристик системы (отрицательной емкости).

Отрицательная емкость наблюдалась в диодах с барьером Шоттки, изготовленных из различных материалов ($\text{NiSi}-n\text{Si}$; $\text{WNi}-n\text{GaAs}$; $\text{Pd}-n\text{GaAs}$; $\text{Pd}-n\text{Si}$) [2–4] при прямых напряжениях смещения. В гетероструктуре $\text{Ni}-\text{TiO}_2-p\text{Si}$ эффект ОЕ наблюдали при обратном напряжении на барьере Шоттки $\text{Ni}-\text{TiO}_2$ [5]. Существует ряд работ [1,6,7], где ОЕ связывают с инерционностью изменения тока при приложении к образцу ступеньки постоянного или переменного напряжения.

В объемных металлах в переменном электрическом поле основную роль играет ток проводимости, который много больше токов смещения, возможность наблюдать накопление носителей заряда под воздействием переменного электрического поля практически отсутствует. Однако, в островковых металлических пленках, где ток проводимости и ток смещения отличаются по величине незначительно нами наблюдался эффект отрицательной емкости. Изучению особенностей поведения структуры островковой металлической пленки с электрическими контактами посвящена настоящая работа.

2. Эксперимент

В работе проведены измерения температурных зависимостей активной и реактивной проводимости островковых пленок из FeNi от частоты электрического поля. Тонкие пленки FeNi выращивались на диэлектрической подложке из ситалла (рутиловая фаза TiO_2 [8]) методом высокочастотного распыления в аргоне. Подробности метода получения пленок приведены в работе [9]. Толщина пленки выбиралась таким образом, чтобы получить островковые пленки с диэлектрическим характером проводимости при этом руководствовались результатами, представленными в работе [10]. В этой работе был определен перколяционный порог для пленок FeNi — d^* . Перколяционный порог определялся как толщина d при которой в пленке происходит переход металл-диэлектрик. Пленки толщиной $d < d^*$ являются островковыми. Для FeNi $d^* \approx 1.8$ nm.

Для измерения выбирались однослойные пленки FeNi различной эффективной толщины: $d = 0.7, 0.9$ и 1.1 nm. Каждая металлическая структура сверху запылялась защитным слоем Al_2O_3 с эффективной толщиной $d = 2.0$ nm. Эффективная толщина металлических и диэлектрических слоев определялась по времени напыления пленок (скорости осаждения металлических пленок и Al_2O_3 определялись заранее). Эффективная толщина пленки равнялась бы реальной толщине пленки, если бы пленка была сплошной. Из структур изготавливались прямоугольные образцы шириной $1.5-3$ mm и длиной $5-7$ mm. Контакты создавались путем нанесения узких полосок индия на поверхность металлической островко-

вой пленки вдоль противоположных сторон прямоугольника.

При изучении частотной зависимости активной и реактивной дифференциальной проводимости пленок к образцу прикладывалось переменное напряжение $U = U_1 \exp(-i\omega t)$. Амплитуда переменного напряжения равнялась $U_1 = 10^{-2}$ В. Измерение активной и реактивной дифференциальной проводимости осуществлялось в области частот от 0.5 до 100 кГц. Реактивная составляющая проводимости пленок определялась с помощью фазового детектирования. Установка позволяла измерять переменный ток от 10^{-8} А. Минимальная измеряемая емкость равнялась 1 пФ. Погрешность измерений не превышала 5%. Измерения проводились при температурах от 77 до 300 К.

Зависимости удельной дифференциальной проводимости пленок FeNi различной толщины от температуры представлены на рис. 1.

На рис. 2 приведена зависимость удельной дифференциальной емкости от температуры для пленок FeNi толщиной $d = 0.7$ нм и $d = 0.9$ нм (кривые 1 и 2

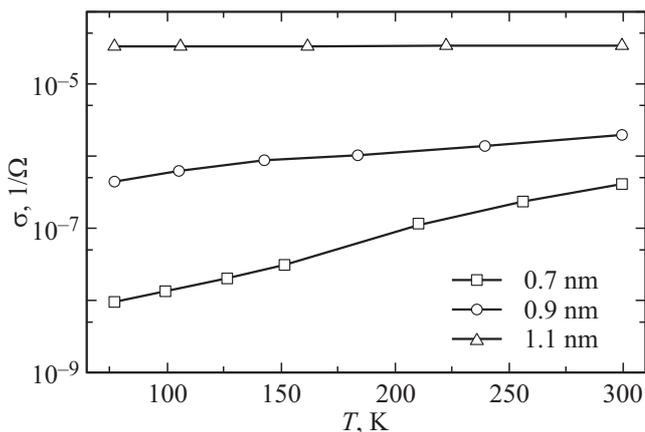


Рис. 1. Зависимость удельной дифференциальной проводимости пленок FeNi различной толщины.

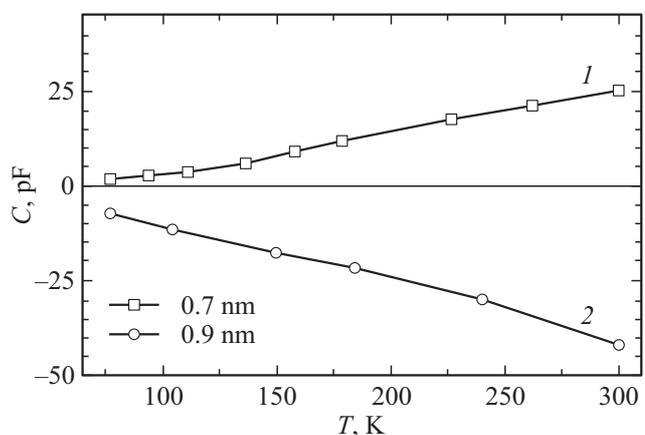


Рис. 2. Зависимость удельной дифференциальной емкости пленок FeNi различной толщины.

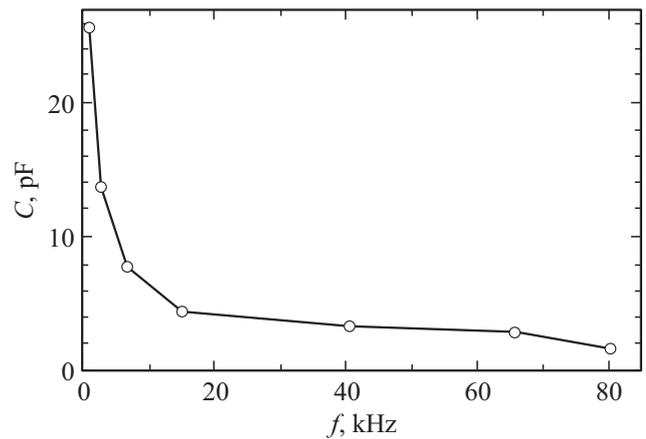


Рис. 3. Зависимость удельной дифференциальной емкости островковой пленки FeNi толщиной $d = 0.7$ нм от частоты.

соответственно). Попытки измерить величину емкости в пленке толщиной 1.1 нм с помощью фазового детектирования не привели к успеху из-за слабого и нестабильного сигнала от емкости по сравнению с сигналом от проводимости пленки. Но нужно отметить, что этот нестабильный сигнал демонстрировал отрицательный характер емкости во всем диапазоне измеряемых температур. На рис. 3 представлена зависимость дифференциальной емкости островковой пленки FeNi толщиной $d = 0.7$ нм от частоты электрического поля.

3. Обсуждение результатов

Из рис. 2 видно, что емкости образцов с толщинами пленок $d = 0.7$ нм и $d = 0.9$ нм качественно отличаются друг от друга. Емкость пленки с толщиной $d = 0.7$ нм во всем измеряемом диапазоне температур положительная. Емкость пленки толщиной $d = 0.9$ нм отрицательна. Общей особенностью является их зависимость от температуры, которая по абсолютной величине увеличивается с ростом температуры. Возрастание емкостей образцов по абсолютной величине от температуры практически аналогично температурной зависимости проводимости (рис. 1). Основная причина роста проводимости с ростом температуры связана с увеличением концентрации заряженных островков [11]. Очевидно, что величина емкости образцов также зависит от концентрации заряженных островков.

Проводимость островковых пленок FeNi с толщинами до $d = 1.1$ нм с ростом температуры увеличивается (рис. 1). В этих пленках наблюдается диэлектрический характер проводимости. Проводимость островковых пленок связана с туннелированием электронов между островками. При туннелировании электрона с одного нейтрального островка на другой нейтральный островок создаются два заряженных островка. Один с избыточным электроном — отрицательно заряженный

островок, другой — положительно заряженный островок. В работе [11] показано, что проводимость в островковой металлической пленке с диэлектрическим характером проводимости может быть представлена в виде зависимости:

$$\sigma = 2\beta N_S \exp(-L/\lambda - E_S/kT), \quad (1)$$

где E_S — приведенная суммарная величина энергии активации, примерно равная усредненной величине зарядовой энергии ($E_S \approx q^2/\epsilon D_S$, где q — заряд электрона, ϵ — диэлектрическая проницаемость диэлектрика между островами, D_S — средний размер заряженных островков [11]), k — постоянная Больцмана, T — температура пленки, L — длина прыжка, λ — длина спада волновой функции электрона в диэлектрике, который разделяет металлические островки ($\lambda = \hbar/(mW)^{0.5}$, где m — масса электрона, W — высота туннельного барьера, практически совпадающая с полушириной запрещенной зоны диэлектрика), N_S — концентрация островков, у которых зарядовая энергия $E_S \leq kT$, β — коэффициент пропорциональности.

Как видно из выражения (1) проводимость островковой пленки определяется двумя процессами. Один из них определяет концентрацию избыточных носителей заряда в островковой пленке и связан с туннелированием электрона из одного нейтрального островка на другой нейтральный островок с образованием положительно и отрицательно заряженных островков. Коэффициент „2“ в уравнении (1) указывает на тот факт, что при одном акте туннелирования электрона с одного нейтрального островка на другой создаются два заряженных островка (положительный и отрицательный). Данный процесс происходит с изменением энергии системы на величину E_S при этом концентрация, например, отрицательно заряженных островков равна:

$$n = N_S \exp(-E_S/kT). \quad (2)$$

Второй процесс определяет перенос носителей заряда под действием электрического поля и осуществляется за счет туннельных переходов между заряженными и нейтральными островками, которые характеризуются длиной прыжка (L).

Поскольку процесс туннелирования между нейтральными островками происходит с изменением энергии системы на величину E_S , внешнее электрическое поле (F) понижает потенциальный барьер в направлении противоположном электрическому полю на величину $U = -qFh$, где h — среднее расстояние между островками. Уменьшение этой энергии увеличивает вероятность термического возбуждения туннельных переходов между островками и способствует росту концентрации заряженных островков

$$\begin{aligned} n + \Delta n &= N_S \exp(-(E_S - U)/kT) \\ &= (1 + qhF/kT) N_S \exp(-E_S/kT), \\ \Delta n &= \frac{qhFN_S \exp(-E_S/kT)}{kT}. \end{aligned} \quad (3)$$

С учетом изменения концентрации заряженных островков и в соответствии с целями статьи рассмотрим влияние электрического поля на проводимость и емкость пленки. Поведение носителей заряда под действием внешнего электрического поля определяется уравнением для плотности тока и уравнением непрерывности. В одномерном случае для островковой пленки уравнение для плотности тока и уравнение непрерывности имеют вид:

$$J = (\sigma + \Delta\sigma)F, \quad (4)$$

$$\partial\Delta n/\partial t = G - \Delta n/\tau, \quad (5)$$

где $\Delta\sigma$ — изменение проводимости пленки во внешнем электрическом поле, F — напряженность внешнего электрического поля, G — темп генерации заряженных островков, $\Delta n/\tau$ — темп рекомбинации избыточной концентрации заряженных островков, τ — время жизни заряженных островков.

Положим $F = F_0 \exp(i\omega t)$, тогда темп генерации для положительно заряженных и отрицательно заряженных островков, учитывая (3), можно представить с помощью выражения:

$$G = \frac{qhF_0 \exp(i\omega t)}{\tau kT} N_S \exp(-E_S/kT). \quad (6)$$

В этом случае уравнение непрерывности будет иметь вид:

$$\frac{\partial\Delta n}{\partial t} + \frac{\Delta n}{\tau} = \frac{qhF_0 \exp(i\omega t) N_S \exp(-E_S/kT)}{\tau kT}. \quad (7)$$

Будем искать решение этого уравнения в виде:

$$\Delta n = \Delta n_0 \exp(i\omega t). \quad (8)$$

Подставляя Δn в уравнение (7), получим:

$$\Delta n_0 = \frac{qhF_0 N_S \exp(-E_S/kT)}{kT} \frac{1 - i\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2}. \quad (9)$$

Уравнение для плотности тока островковой пленки в переменном электрическом поле является суммой, состоящей из тока проводимости и максвелловского тока смещения, плотность которого, согласно уравнениям Максвелла, равно:

$$J_M = \frac{\epsilon}{4\pi} \frac{\partial F_0 \exp(i\omega t)}{\partial t},$$

где ϵ — макроскопическая диэлектрическая проницаемость пленки. Уравнение для полного тока имеет вид:

$$J = (\sigma + \Delta\sigma)F_0 \exp(i\omega t) + \frac{\epsilon}{4\pi} \frac{\partial F_0 \exp(i\omega t)}{\partial t}. \quad (10)$$

Изменение проводимости пленки во внешнем переменном электрическом поле ($\Delta\sigma$) с учетом уравнений (1), (3) и (9) равно:

$$\begin{aligned} \Delta\sigma &= [2\beta hqN_SF_0 \exp(i\omega t) \exp(-L/\lambda - E_S/kT)] \\ &\times \frac{1 - i\omega\tau}{kT(1 + \omega^2\tau^2)} = \sigma hqF_0 \exp(i\omega t) \frac{1 - i\omega\tau}{kT(1 + \omega^2\tau^2)}. \end{aligned} \quad (11)$$

Подставляя в уравнение для плотности тока островковой пленки (10) выражение для изменения проводимости (11) получим:

$$J = \left\{ \sigma \left[1 + \frac{hqF_0 \exp(i\omega t)}{kT(1 + \omega^2\tau^2)} \right] + i\omega \left[\frac{\varepsilon}{4\pi} - \sigma \frac{hqF_0 \exp(i\omega t)}{kT(1 + \omega^2\tau^2)} \right] \right\} F_0 \exp(i\omega t). \quad (12)$$

Проводимость (выражение в фигурных скобках) оказывается комплексной величиной. Это выражение напоминает уравнение проводимости для системы параллельно соединенных сопротивления, конденсатора и индуктивности.

$$Y = g + i(\omega C - 1/\omega L), \quad (13)$$

где Y — комплексная проводимость цепи; g — активная проводимость; $1/\omega L$ — индуктивная проводимость; ωC — емкостная проводимость. Комплексная проводимость пленки (12) состоит из двух членов:

$$\text{Im}(Y) = \omega \left[\frac{\varepsilon}{4\pi} - \sigma \frac{hqF_0 \exp(i\omega t)}{kT(1 + \omega^2\tau^2)} \right]. \quad (14)$$

Первый член, как и в (13) определяется как емкостная проводимость. Второй член отрицательный, имеет индуктивный характер проводимости. Как видно из (14) с ростом активной проводимости абсолютная величина индуктивного слагаемого проводимости увеличивается. Поскольку размерность у второго члена реактивной проводимости емкостная, то он характеризуется как отрицательная емкостная проводимость.

Измеренные емкости образцов с толщинами пленок $d = 0.7 \text{ nm}$ во всем измеряемом диапазоне температур положительные. Величина активной проводимости этой пленки незначительна (рис. 1) и, очевидно, второе слагаемое в (14) много меньше по сравнению с первым слагаемым. Положительная емкость пленки складывается из поляризации нейтральных островков и локализацией заряженных островков вблизи контактов под действием электрического поля. Отрицательно заряженные островки локализуются около положительного контакта, положительно заряженные островки локализуются около отрицательного контакта. С увеличением температуры растет концентрация заряженных островков. с ростом их концентрации увеличивается число заряженных островков вблизи контактов, следовательно, увеличивается положительная емкость пленки.

Эффект отрицательной емкости имеет место, если второе слагаемое в выражении (14) больше первого. Зависимость емкости от температуры для этого случая представлена на рис. 2 (кривая 2 — FeNi толщиной $d = 0.9 \text{ nm}$). Емкость пленки толщиной $d = 0.9 \text{ nm}$ во всем диапазоне измеряемых температур остается отрицательной. Как видно из выражения (14), появление отрицательной дифференциальной емкости связано со вторым членом в квадратных скобках, который имеет

размерность емкости, и видно, что величина емкости пленки связана с изменением проводимости. Изменение проводимости во внешнем электрическом поле обусловлено ростом избыточной концентрации заряженных островков. Следует подчеркнуть, что второй член в мнимой компоненте проводимости пленки — отрицательная величина, следовательно, ток через пленку, обусловленный только проводимостью, связанной с избыточными заряженными островками, отстает по фазе от напряжения, приложенного к пленке, и имеет индуктивный характер. Инерционность изменения тока определяется темпами рекомбинации и генерации концентрации избыточных заряженных островков, величина которой зависит от напряженности электрического поля.

При увеличении частоты внешнего электрического поля, возможно, что поглощаемая структурой электромагнитная энергия будет определяться проводимостью внутри металлических островков. Тогда структура будет проявлять металлическую проводимость, а емкость структуры может быть отрицательной величиной. Следовательно, для частотной зависимости емкости возможно будет существовать диапазон частот, в котором будет иметь место переход от низкочастотной положительной емкости к отрицательной емкости на более высоких частотах электрического поля. Представленная на рис. 3 измеренная зависимость дифференциальной емкости островковой пленки FeNi толщиной $d = 0.7 \text{ nm}$ во всем измеряемом диапазоне частот остается положительной. Отсюда можно сделать вывод, что вклад в формирование емкости пленок электронами внутри металлических островков незначителен по сравнению с вкладом проводимости, связанной с ростом избыточной концентрации заряженных островков во внешнем электрическом поле.

4. Выводы

Проведены исследования электрических свойств островковых пленок. Измерены зависимости удельной дифференциальной проводимости пленок и зависимости удельной дифференциальной емкости пленок от температуры и частоты внешнего электрического поля.

Емкости образцов с толщинами пленок 0.7 nm и 0.9 nm качественно отличаются. Емкость пленки толщиной 0.7 nm во всем измеряемом диапазоне температур имеет положительные значения. Емкость пленки толщиной 0.9 nm отрицательна. Общей особенностью является их зависимость от температуры, которая по абсолютной величине увеличивается с ее ростом.

Рост емкостей образцов по абсолютной величине от температуры практически не отличается от температурной зависимости проводимости. Основная причина роста проводимости с ростом температуры связана с увеличением концентрации заряженных островков. Величина емкости образцов также зависит от концентрации заряженных островков.

Возникновение отрицательной емкости во внешнем электрическом поле обусловлено ростом избыточной концентрации заряженных островков. Ток через пленку, который обусловлен только проводимостью, связанной с избыточными заряженными островками, отстает по фазе от напряжения, приложенного к пленке, и имеет индуктивный характер. Инерционность изменения тока определяется темпами генерации и рекомбинации концентрации избыточных заряженных островков, величина которой зависит от напряженности электрического поля.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Н. Ашкрофт, Н. Мериман. Физика твердого тела, том 1. Мир, М. (1979). С. 33.
- [2] J. Werner, A.F. Levi, R.T. Tung, M. Anzlowar, M. Pinto. *Rhys. Rev. Lett.* **60**, 53 (1988).
- [3] X. Wu, E.S. Yang, H.L. Evans. *J. Appl. Phys.* **68**, 2845 (1990).
- [4] K. Steiner, N. Uchitomi, N.J. Togoda. *Vac. Sci. Techn. B* **8**, 1113 (1990).
- [5] А.П. Болтаев, Т.М. Бурбаев, Г.А. Калюжная, В.А. Курбаев, Н.А. Пенин. *ФТП* **28**, 569 (1994).
- [6] M. Beale. *Phil. Mag.* В **65**, 65 (1992).
- [7] Ж.И. Алферов, О.А. Мезрин, М.А. Синицин, С.И. Трошков, Б.С. Явич. *ФТП* **21**, 494 (1987).
- [8] N.N. Kovaleva, D. Chvostova, A.V. Bagdinov, M.G. Petrova, E.I. Demikhov, F.A. Pudonin, A. Dejneka. *Appl. Phys. Lett.* **106**, 051907 (2015).
- [9] А.П. Болтаев, Н.А. Пенин, А.О. Погосов, Ф.А. Пудонин. *ЖЭТФ* **123**, 1067 (2003).
- [10] A.P. Boltaev, F.A. Pudonin, I.A. Sherstnev, D.A. Egorov. *J. Exp. Theor. Phys.* **125**, 465 (2017).
- [11] A.P. Boltaev, F.A. Pudonin, I.A. Sherstnev. *Solid State Commun.* **180**, 39 (2014).

Редактор К.В. Емцев