Низкочастотный шум в монодисперсных наноструктурах платины вблизи порога протекания

© С.Л. Румянцев^{*,**}, М.Е. Левинштейн^{*}, С.А. Гуревич^{*}, В.М. Кожевин^{*}, Д.А. Явсин^{*}, М.S. Shur^{**}, N. Pala^{**,***}, А. Khanna^{**}

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

** Department of Electrical, Computer, and Systems Engineering, Rensselaer Polytechnic Institute,

12180-3590 Troy, USA

*** Sensor Electronic Technology, Inc.,

SC 29209 Columbia, USA

E-mail: vmk@pltec.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 2 февраля 2006 г.)

Установлено значение порога протекания $p_0 \approx 0.6$ для монодисперсных наноструктур платины (Pt) с размером металлических частиц 1.8 nm, нанесенных в виде монослоя на диэлектрическую подложку методом лазерного электродиспергирования. Показано, что в "металлическом" состоянии (при $p > p_0$) как величина шума, так и его температурная зависимость близки к аналогичным параметрам чисто металлических слоев Pt. Частотная зависимость относительной спектральной плотности шума описывается зависимостью $S_I/I^2 \sim 1/f^{\gamma}$ с величиной γ , близкой к единице. При плотностях тока $j \ge 10^7 - 10^8$ A/cm² спектральная плотность шума S_I возрастает с дальнейшим ростом тока быстрее, чем I^2 , за счет генерации током избыточных дефектов.

При $p < p_0$ в широком температурном диапазоне зависимость проводимости σ от температуры хорошо описывается известным законом $\sigma \sim \exp[-(T_0/T)^{1/2}]$. Относительная спектральная плотность шума S_I/I^2 на много порядков превышает соответствующее значение для квазиметаллической структуры. Спектральная плотность шума S_I приблизительно пропорциональна квадрату тока только при очень малых токах, а затем резко возрастает с дальнейшим ростом тока.

В Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 05-02-1774, 05-02-1772), Федеральной целевой НТП программой "Физика твердотельных наноструктур", программой Президиума РАН "Низкоразмерные квантовые структуры", программой фундаментальных исследований ОФН РАН "Новые материалы и структуры", грантом CRDF 2681. В Rensselaer Polytechnic Institute работа поддержана National Science Foundation (Project Monitor Dr. James Mink).

PACS: 61.46.Df, 73.63.-b, 73.50.Td

1. Введение

Исследование транспортных свойств гранулированных наноструктур в настоящее время является одним из интенсивно разрабатываемых направлений в физике твердого тела [1,2]. Такие структуры представляют интерес в качестве одного из возможных ключевых элементов при создании наноэлектронных и одноэлектронных приборов [3,4]. Одной из наиболее перспективных технологий изготовления гранулированных наноструктур является метод лазерного электродиспергирования [5]. Этот метод позволяет получить сферические металлические наночастицы с чрезвычайно малой дисперсией радиуса частиц. Разброс в диаметрах сферических наночастиц Pt и Ni, например, не превосходит одного атомного слоя. В зависимости от длительности нанесения плотность частиц, осажденных на диэлектрическую подложку, может варьироваться от одного частично заполненного слоя до нескольких плотноупакованных слоев. При нахождении на воздухе некоторая доля частиц окисляется, что приводит к возникновению системы проводящих сферических металлических наночастиц, разделенных туннельно-прозрачными слоями окисла. Важно отметить, что зарядовая энергия (для невзаимодействующих частиц) $E_c = e^2/2C$, где C — емкость частиц, при диаметре частиц порядка нескольких нанометров заметно превышает энергию теплового шума при комнатной температуре. Это обстоятельство позволяет рассматривать такого рода структуры в качестве возможной основы для создания приборов наноэлектроники, способных работать при комнатной температуре.

Исследования низкочастотного шума в такого рода системах могут дать важную информацию о характере протекания тока. Кроме того, уровень и характер низкочастотного шума часто являются определяющими факторами при решении вопроса о возможном практическом применении тех или иных активных элементов в современной электронике (см., например, [6]). До настоящего времени, однако, низкочастотный шум в монодисперсных наноструктурах металлов, насколько нам известно, не исследовался.

В настоящей работе впервые исследован низкочастотный шум в монодисперсных пленках платины (Pt) как с

"металлической", так и с "диэлектрической" стороны от порога протекания.

2. Условия эксперимента

Методом лазерного электродиспергирования на Si-подложку, покрытую слоем SiO₂ толщиной 5 μ m, наносились платиновые наночастицы (сферы) диаметром d = 1.8 nm. Было изготовлено два набора образцов, A и B, каждый из которых состоял из нескольких десятков образцов, изготовленных в одном процессе на одной и той же подложке. Расстояние между массивными токовыми золотыми контактами L для различных образцов лежало в пределах от 5 до 200 μ m. Ширина контактов W составляла 400 μ m для всех образцов.

Время нанесения частиц было выбрано таким, чтобы для образцов типа A поверхностная плотность частиц N_A равнялась $3 \cdot 10^{13}$ cm⁻², а для образцов типа B поверхностная плотность частиц N_B составляла $2 \cdot 10^{13}$ cm⁻². Как будет показано далее, такой выбор значений N обеспечивает получение образцов в состоянии, близком к порогу протекания с "металлической" стороны (образцы типа A) и с "диэлектрической" стороны (образцы типа B).

На рис. 1 показана микрофотография нанесенной на подложку платиновой наноструктуры, поверхностная плотность частиц которой оценивается как $N \approx 10^{13} \, {\rm cm}^{-2}$. Из вида микрофотографии можно заключить, что платиновые частицы имеют тенденцию к образованию вытянутых ансамблей, состоящих из нескольких наночастиц.

Все измерения производились через 2 месяца после изготовления образцов, после того как процесс частичного окисления практически заканчивался и свойства образца стабилизировались. Температурные измерения производились в криостате замкнутого цикла LTS-22. Низкочастотный шум измерялся в диапазоне 1 Hz-50 kHz с помощью малошумящего усилителя Signal Recovery (модель 5184) и анализатора спектра SR 770.



Рис. 1. Микрофотография нанесенных на подложку платиновых наночастиц, $N = 10^{13}$ сm⁻². Темные пятна — платина.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Вольт-амперные характеристики. Вольтамперные характеристики были практически линейны во всем исследованном диапазоне температур и напряжений V от нуля до 4V. При этом для различных обарзцов типа A при $L = 5 \,\mu$ m измеренные значения сопротивления R находились в пределах 50–200 Ω . Для образцов типа B при тех же значениях L величина R составляла $(0.6-2) \cdot 10^7 \Omega$.

Заметим, что при $L = 5 \,\mu m$ и $W = 400 \,\mu m$ сопротивление сплошного слоя платины толщиной $t = 1.8 \,\mathrm{nm}$ составило бы $R = \rho L/Wt \approx 1.2 \,\Omega$. (Здесь $\rho = 1.8 \cdot 10^{-5} \,\Omega \cdot \mathrm{cm}$ — удельное сопротивление достаточно толстых отожженных слоев платины). Между тем доля площади, занятая металлом в образцах типа A, составляет $\theta_A = N_A \cdot \pi (d/2)^2 \sim 0.76$. В образцах типа В доля площади, занятая металлом, $\theta_B \approx N_B \cdot \pi (d/2)^2 \sim 0.51$. При уменьшении θ от единицы до 0.76 сопротивление образцов возрастает приблизительно на 2 порядка; при дальнейшем уменьшении θ от 0.76 до 0.51 сопротивление образцов возрастает на 5 порядков. Таким образом, очевидно, что оба типа образцов соответстуют состоянию, близкому к порогу протекания с "металлической" стороны (образцы типа А) и с "диэлектрической" стороны (образцы типа *B*) [8]. В качестве оценки порога протекания θ_0 может быть принято значение $\theta_0 \approx 0.6$.

Заметим также, что при токе через образец I = 40 mA $(V = 4 \text{ V}, R = 100 \Omega)$ в сплошном слое платины толщиной t = 1.8 nm плотность тока j = I/Wt составила бы $\sim 5 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$. Вблизи порога протекания ток в образцах типа A течет лишь по нескольким проводящим "нитям" бесконечного кластера, поэтому реальная плотность тока существенно выше. В самом грубом приближении можно принять, что эффективное поперечное сечение в образце вблизи порога протекания во столько же раз меньше поперечное сечения сплошного образца, во сколько сопротивление образца превосходит сопротивление сплошного металлического слоя ($\sim 10^2$). Таким образом, реальная плотность тока в образцах типа A, по-видимому, может превосходить 10^8 A/cm^2 .

Тем не менее никакого заметного отклонения от линейности на вольт-амперных характеристиках не наблюдается, что можно было бы интерпретировать как отсутствие генерации током избыточных структурных дефектов [9]. Однако, как будет показано далее, низкочастотный шум, являющийся более чувствительным индикатором структурных дефектов, чем вольт-амперные характеристики [10], свидетельствует о том, что при плотностях тока $j \sim 10^7 - 10^8$ A/cm² избыточные дефекты все же возникают.

3.2. Низкочастотный шум в "металлических" образцах (типа A). Частотная зависимость спектральной плотности шума S_I при комнатной температуре показана на рис. 2 для образца типа A



Рис. 2. Частотная зависимость спектральной плотности шума для образца типа *A* при различных значениях протекающего тока *I*. $L = 5 \,\mu$ m. I(A): $I - 2.5 \cdot 10^{-4}$, $2 - 5.1 \cdot 10^{-4}$, $3 - 1.0 \cdot 10^{-3}$, $4 - 2.0 \cdot 10^{-3}$, $5 - 4.0 \cdot 10^{-3}$, $6 - 8.1 \cdot 10^{-3}$, $7 - 1.62 \cdot 10^{-2}$. Штриховая кривая показывает наклон, соответствующий зависимости $S \sim 1/f$. T = 300 К.

длиной $L = 5 \,\mu$ m. Видно, что во всем диапазоне токов наблюдающаяся зависимость хорошо описывается законом $S_I \sim 1/f^{\gamma}$, где величина γ близка к единице (1/f-like шум). Такая ситуация весьма характерна для металлических пленок [11], в том числе и для платиновых [7,12–14].

Уровень 1/f (и 1/f like) шума для различных материалов принято оценивать величиной безразмерной постоянной Хоуге α [15]

$$\alpha = \frac{S_I}{I^2} fN,\tag{1}$$

где S_I/I^2 — относительная спектральная плотность шума на частоте анализа f; N — полное число носителей, участвующих в проводимости.

При полном заполнении образца Pt сферами диаметра *d* число таких сфер $N_1 \approx WL/d^2$, суммарный объем этих сфер $V_1 \approx \pi WLd/6$ и полное число электронов в сферах $N_1 \approx \pi WLdN_{Pt}/6$, $\approx 1.3 \cdot 10^{11}$, где $N_{Pt} \approx 6.6 \cdot 10^{22}$ — число атомов (электронов) Pt в 1 сm³. Принимая в самом грубом приближении, что в проводимости участвует во столько же раз меньше электронов, во сколько сопротивление образца превосходит сопротивление сплошного металлического слоя ($\sim 10^2$), из выражения (1) и данных, приведенных на рис. 2, получаем значение $\alpha \sim 3 \cdot 10^{-2}$.

Полученное значение α несколько выше, чем характерные значения α для относительно толстых структурно совершенных сплошных слоев металлической платины, для которой типичные значения α составляют $10^{-4}-3 \cdot 10^{-3}$ [13]. Оно, однако, существенно меньше, чем величина α для очень тонких (толщиной ~ 0.3 nm) пленок платины, исследованных в работе [15] ($\alpha \sim 10$). Относительно малое значение α в исследованных образцах позволяет предположить, что наблюдающийся шум обусловлен флуктуациями подвижности в металлических наночастицах, и тонкие туннельно-прозрачные диэлектрические межчастичные зазоры, по-видимому, присутствующие и на "металлической" от порога протекания стороне (вблизи порога), не оказывают существенного влияния на низкочастотный шум.

Температурная зависимость шума также свидетельствует в пользу этого предположения. На рис. 3 показана температурная зависимость относительной спектральной плотности шума S_I/I^2 , измеренная в диапазоне $9-300 \,\mathrm{K}$ на нескольких образцах длиной $L = 5 \,\mu\mathrm{m}$ при относительно малых смещениях, когда $S_I \sim I^2$. На вставке к рис. 3 приведены температурные зависимости относительной постоянной Хоуге α для различных металлов, отнесенные к значению α при комнатной температуре в диапазоне 60-300 К. Сплошная линия 1 на вставке соответствует усредненным результатам, предсталенным на рис. 3, I — экспериментальнае результаты, полученные в работе [7] для относительно толстых (1500 Å) пленок платины, осаждавшихся на сапфировую подложку одновременно с Al₂O₃. Все точки соответствуют различным объемным процентам платины θ_{Pt} , обеспечивавшим "металлический характер протекания" (в диапазоне от $\theta_{\rm Pt} = 59$ до 83%). Зависимости для Au и Ag взяты



Рис. 3. Типичная температурная зависимость относительной спектральной плотности шума для исследуемых образцов. На вставке показаны температурная зависимость постоянной Хоуге α , отнесенная к величине α при 300 K для различных металлов и сплавов с разной степенью структурного совершенства. 1 — данные настоящей работы для аморфной Pt в виде наносфер; 2 и 3 — сплошные пленки Au и Ag соответственно толщиной 700 Å [11]; 4, 5 — сплав Au₆₀Pd₄₀ при различных температурных обработках [14]; I — экспериментальные результаты, полученные в работе [7] для пленок платины толщиной 1500 Å, осаждавшихся на сапфировую подложку одновременно с Al₂O₃ при значениях θ , соответствующих металлическому характеру проводимости.

из обзора [11]. Наконец, зависимости для сплава AuPd (кривые 4 и 5) взяты из работы [14].

Отметим прежде всего, что характер температурных зависимостей $\alpha(T)$ качественно одинаков для всех приведенных на рис. З металлов и сплавов. Природа такого рода температурной зависимости обсуждалась в обзорах [11,16].

Заметим далее, что характер температурной обработки, определяющей уровень структурного совершенства материала, существенно влияет на ход температурной зависимости α . Так, значение $\alpha(300)$ в образце, результаты для которого представлены кривой 4 (AuPd), составляло $\sim 1.5 \cdot 10^{-2}$. На кривой 5 показаны результаты для того же образца после эффективного температурного отжига. В результате такого отжига значение $\alpha(300)$ снизилось более чем на порядок ($\alpha(300) \approx 6 \cdot 10^{-4}$), а температурный коэффициент α существенно уменьшился. Таким образом, характер и уровень структурных дефектов влияют не только на величину α , но и на ход зависимости $\alpha(T)$.

Наконец, отметим, что зависимости $\alpha(T)$ для исследуемых образцов и для образцов, исследованных в работе [7], хорошо совпадают в диапазоне 60–300 К, причем ход зависимости $\alpha(T)$ для образцов, исследованных в [7], практически одинаков для всех значений θ_{Pt} . Между тем в работе [7] предложена качественно иная интерпретация температурной зависимости шума. Предполагается, что весь наблюдающийся шум связан только с флуктуациями проводимости туннельных контактов между металлическими частями пленки. Шум самого металла предполагается пренебрежимо малым.

Такая интерпретация, однако, вызывает возражения. Прежде всего для случая сплошной металлической пленки ($\theta = 1$, или $\rho = 100\%$ в обозначениях работы [7]); из приведенных в [7] (рис. 2) данных легко вычислить значение постоянной Хоуге; $\alpha \approx 1.3 \cdot 10^{-5}$. Это значение близко к значению α , наблюдавшемуся для платины в работе [17] ($\alpha \approx 2 \cdot 10^{-5}$). Далее легко убедиться, что с уменьшением ρ в пределах 59 < ρ < 100% шум возрастает приблизительно пропорционально сопротивлению. Данный факт в первом приближении свидетельствует о том, что значение α сохраняется постоянным во всем диапазоне ρ , соответствующем "металлической проводимости". В свою очередь это свидетельствует о неизменности природы низкочастотных флуктуаций. Напротив, при переходе порога протекания, т.е. при изменении ρ от 59 до 50% (точка $\rho = 50\%$ соответствует в [7] ситуации "диэлектрической проводимости", наиболее близкой к порогу протекания), сопротивление возрастает в ~ 14 раз, в то время как уровень шума в 500 раз, что, очевидно, свидетельствует об изменении природы шума.

Таким образом, можно сделать вывод, что и в работе [7], и в настоящей работе наблюдающийся шум при $\theta > p_0$ обусловлен флуктуациями подвижности в металле, и тонкие туннельно-прозрачные диэлектрические



Рис. 4. Зависимости спектральной плотности шума от тока для образцов различной длины. *L*, μ m: *I* — 5, *2* — 10, *3* — 24, *4* — 50. Штриховая линия — зависимость *S*_{*I*} \propto *I*². *T* = 300 K. Частота анализа *f* = 10 Hz.

промежутки между металлическими нитями бесконечного кластера не оказывают существенного влияния на низкочастотный шум. Заметим также, что эти туннельпрозрачные диэлектрические промежутки не вносят, повидимому, заметного вклада и в сопротивление образца с "металлической" стороны от порога протекания.

На рис. 4 показаны зависимости спектральной плотности шума от тока для образцов различной длины. Точки 1 соответствуют зависимостям для нескольких образцов длиной $L = 5 \,\mu m$. Видно, что, несмотря на значительный разброс в уровнях шума в образцах одной и той же длины, естественный вблизи порога протекания, тенденция к зависимости $S_I \propto 1/L$, вытекающая из формулы (1), прослеживается достаточно ясно. При небольших токах наблюдающиеся зависимости близки к классической зависимости $S_I \propto I^2$, свидетельствующей о том, что флуктуирует не зависящее от тока сопротивление образца, а ток лишь проявляет флуктуации сопротивления [18]. Однако при токах I ≥ 10 mA, соответствующих реальной плотности тока 10⁷-10⁸ A/cm², шум растет быстрее, чем $S_I \sim I^2$, что демонстрирует генерацию током избыточных неравновесных структурных дефектов [9].

3.3. Низкочастотный шум в "диэлектрических" образцах (типа *B*). Как отмечалось выше, при уменьшении значения θ от ≈ 0.76 до ≈ 0.51 сопротивление образцов возрастает на 5 порядков. При этом температурная зависимость проводимости пленок для $\theta = 0.51$ с "диэлектрической стороны" от порога протекания имеет вид, показанный на рис. 5. Как видно из рисунка, в области относительно высоких температур ($T \ge 20$ K) температурная зависимость проводимости $\sigma = 1/R$ хорошо описывается законом $\sigma \propto \exp(-T_0/T)^{-0.5}$ (закон Эфроса-Шкловского). Воз-



Рис. 5. Температурная зависимость проводимости 1/R для образцов типа *В* (θ =0.51, "диэлектрическая сторона" от порога протекания).



Рис. 6. Зависимости спектральной плотности шума от тока для образцов типа *B*. $L = 5 \,\mu$ m. I — типичная зависимость, 2 — зависимость для образца с наибольшим уровнем шума. Штриховыми линиями показаны зависимости $S_I \propto I^2$. T = 300 K. Частота анализа f = 10 Hz.

можная природа такой зависимости для монодисперсных гранулированных структур подробно обсуждалась в работе [8].

На рис. 6 показаны зависимости спектральной плотности шума от тока для образцов длиной $L = 5 \,\mu$ m. Кривая I демонстрирует типичный уровень шума в образцах типа B. Кривая 2 показывает результаты измерений для образца с наибольшим уровнем шума. Даже для типичного образца (кривая 1) относительная спектральная плотность шума $S_I/I^2 \sim 3 \cdot 10^{-9}$ на три порядка превосходит соответствующую величину для "металлических" образцов (рис. 4). В образце с наибольшим уровнем шума величина $S_I/I^2 \sim 3 \cdot 10^{-7}$ (при малых уровнях тока) превосходит соответствующую величину

для "металлических" образцов на 5 порядков. Этот факт непосредственно указывает на смену механизма низкочастотного шума при переходе через порог протекания.

Отклонения от закона $S_I \propto I^2$ наступают для диэлектрических образцов при токах, на 5–6 порядков меньших, чем для "металлических" образцов. Можно предположить, что вблизи порога протекания с "диэлектрической стороны" приложенное к образцу напряжение падает на нескольких туннельных переходах между "металлическими" нитями, и даже при относительно небольших напряжениях, приложенных к образцу, поле в районе этих переходов оказывается весьма большим.

Список литературы

- S. Rusponi, N. Weiss, T. Cren, M. Epple, H. Brune. Appl. Phys. Lett. 87, 162 514 (2005).
- [2] A. Bose, S. Basu, S. Banerjee, D. Chakravorty. J. Appl. Phys. 98, 074 307 (2005).
- [3] S.V. Vyshenski. Phys. Low-Dim. Structures 11/12, 9 (1994).
- [4] R.H. Chen, K.K. Likharev. Appl. Phys. Lett. 72, 61 (1998).
- [5] V.M. Kozhevin, D.A. Yavsin, V.M. Kouznetsov, V.M. Busov, V.M. Mikushkin, S.Yu. Nikonov, A.V. Kolobov, S.A. Gurevich. JVST B 18, 1402 (2000).
- [6] M.E. Levinshtein, A.A. Balandin, S.L. Rumyantsev, M.S. Shur. In: Noise and Fluctuations Control in Electronic Devices / Ed. A. Balandin. American Scientific Publishers (2002).
- [7] J.V. Mantese, W.W. Webb. Phys. Rev. Lett. 55, 2212 (1985).
- [8] В.И. Козуб, В.М. Кожевин, Д.А. Явсин, С.А. Гуревич. Письма в ЖЭТФ 81, 287 (2005).
- [9] Г.П. Жигальский. УФН 173, 466 (2003).
- [10] М.Е. Левинштейн, С.Л. Румянцев. ФТП 24, 1807 (1990).
- [11] P. Dutta, P.M. Horn. Rev. Mod. Phys. 53, 497 (1981).
- [12] D.M. Fleetwood, J.T. Masden, N. Giordano. Phys. Rev. Lett. 50, 450 (1983).
- [13] D.M. Fleetwood, N. Giordano. Phys. Rev. B 27, 667 (1983).
- [14] D.M. Fleetwood, N. Giordano. Phys. Rev. B 31, 1157 (1985).
- [15] I. Oštádal. Int. J. Electronics 73, 923 (1992).
- [16] Yu.M. Galperin, V.G. Karpov, V.I. Kozub. Adv. Phys. 38, 669 (1989).
- [17] H. Scotfield, J.V. Mantese, W.W. Webb. Phys. Rev. B 32, 736 (1985).
- [18] Sh. Hogan. Electronics noise and fluctuations in solids. Cambridge Univ. Press (1996). 353 p.