Вариации электрического потенциала металлической наночастицы на диэлектрике

© А.В. Анкудинов[1], А.С. Власов[1], М.С. Дунаевский[1], В.Ю. Аксенов[1], И.В. Илькив[2], А.В. Малевская[1], В.Д. Родин[1], А.С. Щенин[1], А.М. Минтаиров[1]

[1] Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
[2] Санкт-Петербургский государственный университет,
199034 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: alex_ank@mail.ru, alexander.ankudinov@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 5 ноября 2025 г.
В окончательной редакции 2 декабря 2025 г.
Принята к публикации 8 декабря 2025 г.

Используя сканирующую Кельвин-зонд микроскопию в комнатных условиях, исследованы мерцания сигнала поверхностного потенциала над одиночными, 20−70 нанометровыми, Au-частицами в микроотверстиях перфорированного Au-контакта плоского конденсатора со структурой GaIn−pSi−SiO_2−Au. Обнаружено, что амплитуда мерцаний растет с уменьшением размера частицы, а также расстояния зонд−образец. Проанализирована связь мерцаний с тепловыми флуктуациями потенциала частицы и другими возможными источниками. Калибровка сигнала поверхностного потенциала на наноразмерном источнике мерцаний потенциала позволяла выявлять в экспериментальных данных отклик на элементарные скачки заряда.

Ключевые слова: сканирующая зондовая микроскопия, металлические наночастицы, элементарный электрический заряд, тепловой шум.

DOI: 10.61011/FTP.2025.10.62410.8749

1. Введение

При комнатной температуре у металлической частицы размером 100 нм среднеквадратичная амплитуда тепловых шумов заряда становится меньше, чем $e = 1.602 \cdot 10^{-19}$ Кл. Квант электрического заряда e определил почти с современной точностью Милликен, управляя с помощью вертикального электрического поля скоростью движения микронных капелек масла в гравитационном поле [1]. Квантование заряда — это эмпирический закон, и в прошлом веке обсуждалась возможность обнаружения дробного (по отношению к электрону) заряда свободного кварка [2]. Проводились также и эксперименты [3]: исследовались подвешенные в магнитном поле субмиллиметровые диамагнитные частицы, которые, как было обнаружено, занимали при включении электрического поля дискретные положения равновесия, соответствующие элементарным скачкам заряда на них. Исследовать флуктуации заряда металлических наночастиц можно, измеряя их потенциал с помощью, сканирующей Кельвин-зонд микроскопии (СКЗМ) [4]. Цель таких исследований — не только тестирование закона квантования заряда, но и поиск калиброванных источников потенциала нанометровых размеров для поверки СКЗМ.

Для измерений электрического потенциала Au-наночастиц мы применяли СКЗМ в режиме амплитудной модуляции (АМ) [5]. Коллоидные частицы (см. рис. 1) наносились на специальный образец. Он представлял собой плоский конденсатор на основе кремния с толстым, $d \approx 1.4$ мкм, термическим оксидом и перфорированным верхним электродом (рис. 2, a). Временны́е флуктуации потенциала Au-частицы, находящейся на диэлектрической поверхности внутри микроотверстия в электроде, измерялись в нулевом краевом поле конденсатора либо, разворачивая напряжение на обкладках конденсатора, чтобы с точностью доли заряда электрона менять поверхностный заряд микроотверстия. Представлены дан-

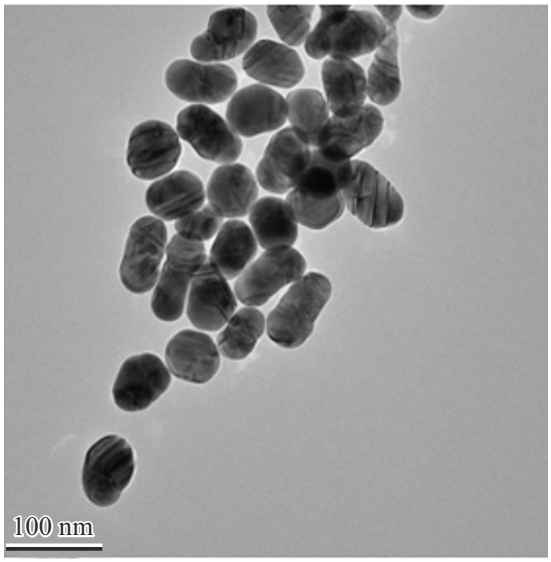


Рис. 1. Просвечивающая электронная микроскопия коллоидных Au-частиц, использованных в работе. Средняя по изображению ширина, длина, „эллиптичность“ частиц: 47 ± 7, 69 ± 10 нм, 0.69 ± 0.13.

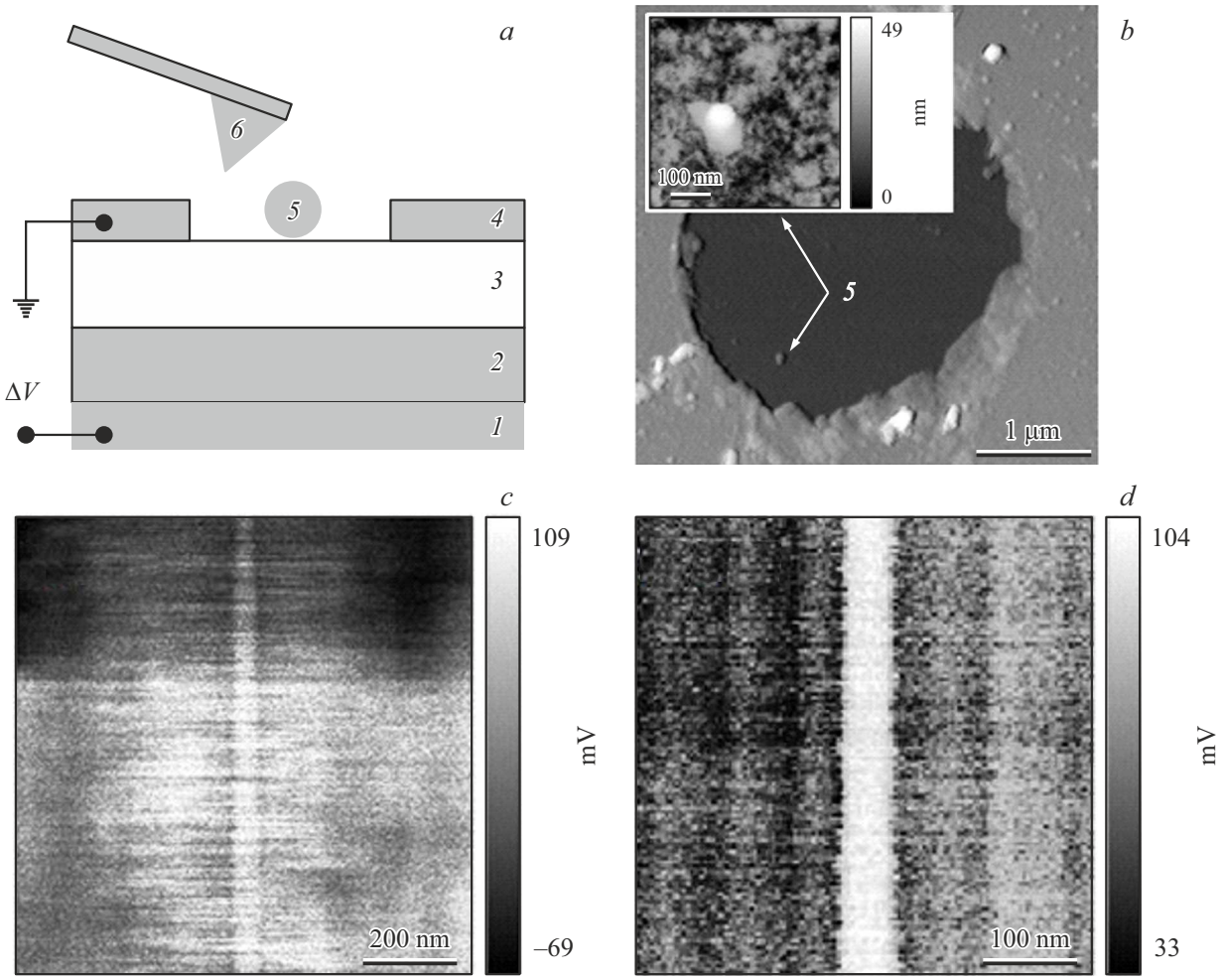


Рис. 2. *a* — схема эксперимента: сплошной GaIn-контакт (*1*), *p*-Si (*2*), термический оксид $d \approx 1.4$ мкм (*3*), перфорированный Au-контакт (*4*), частицы (*5*), кантилевер (*6*). *b* — АСМ-изображение области Au-контакта с одиночной Au-частицей в отверстии $D \approx 3$ мкм; на вставке — тоновое изображение с лучшим разрешением. SP-сигнал: *c* — 36-нанометровая частица в отверстии; *d* — 26-нанометровая частица на контакте. Параметры измерений: повторяющееся сканирование одной линии с частицей в середине, расстояние зонд–поверхность $h = 20$ нм; число строк в кадре и время сканирования, с: *c* — 201 и 473, *d* — 128 и 294; кантилевер 2 (см. таблицу).

ные по одиночным частицам с диаметром в диапазоне 20–70 нм, которые флуктуируют с амплитудой, пропорциональной скачкам потенциала частицы при изменении заряда на $1e$. Используя расчеты емкости частиц по модели „сфера на диэлектрике“, полученные результаты удается согласовать с тепловыми флуктуациями потенциала.

СКЗМ исследования зарядовых состояний наночастиц ведутся достаточно активно [6–9]. В отличие от наших измерений берутся на порядок меньшие по размерам частицы, с кулоновской энергией (электростатической энергией частицы с зарядом $1e$), существенно превышающей тепловую. При этом изучаются не одиночные частицы на изоляторе микронной толщины, а их массивы с характерной плотностью 10^3 мкм$^{-2}$, отделенные от проводящего контакта (подложки) туннельно-прозрачным [6–8] слоем диэлектрика.

Флуктуации заряда металлических островков активно изучались при помощи одноэлектронных транзисторов [10–13], являющихся сверхчувствительными электрометрами. Такие эксперименты требуют низких температур. Кроме того, в измеренных флуктуациях вклад шума со спектральной плотностью $\sim 1/f$ значительно превышает фоновый дробовой шум транзистора [11–13].

2. Подготовка образцов

Схема СКЗМ-исследований зарядовых состояний металлической наночастицы показана на рис. 2, *a*. Верхний, перфорированный электрод конденсаторной структуры имеет отверстия разных диаметров, $D = 1.5$, 2, 3 и 4 мкм. Когда на конденсатор (рис. 2, *a*) подается напряжение ΔV, отверстие получает заряд не боль-

Данные СКЗМ–измерений Au-частиц*

№ частицы	Кантилевер	R, нм	h, нм	σ_0, мВ	$\sigma_0(0)$, мВ
1	1. HAFM/W_2C; 6Н/м	11	20	6.3	17.8
	2. NSC36/Pt; 1.6Н/м		20	9.3	26.2
2	3. NSC36/Pt; 0.7Н/м	17	10	10.7	17.0
3	4. CSG30/Pt; 0.4Н/м	17	15	7.1**	13.4
4	5. CSG30/Pt; 0.5Н/м	18	20	3.0	6.3
	2. NSC36/Pt; 1.6Н/м		20	5.3	11.2
			20	9.1	18.2
	6. NSC36/Pt; 1.1Н/м		25	6.4	15.3
			20	7.2	15.2
			15	7.9	14.5
			5	12.9	16.5
5	3. NSC36/Pt; 0.7Н/м	24	8	9.4	12.5
6	7. NSC36/Pt; 1.1Н/м	34	30	4.8	9.0

Примечание. * Радиус частицы, R; расстояние зонд-образец при регистрации сигнала поверхностного потенциала, h; СКВ сигнала на высоте h над частицей в нулевом краевом поле конденсатора, σ_0; расчет $\sigma_0(0) = \sigma_0(R+h)/R$. ** Среднее значение, $(\sigma_- + \sigma_+)/2$.

ший, чем $\Delta Q = \varepsilon\varepsilon_0\pi D^2\Delta V/4d$ (для SiO_2 $\varepsilon = 4$). Например, $\Delta V = 1$ мВ создает в названных отверстиях $\Delta Q \approx 0.3$, 0.5, 1.1 и $2.0\,e$. Благодаря этому можно плавно воздействовать на заряд металлической частицы в отверстии. Оптимальным для измерений представляется попадание в микроотверстие единственной частицы.

Использовались золотые наночастицы фирмы BBI Solutions с малым разбросом размеров. Концентрация частиц в водных коллоидах, стабилизированных цитратионами, выбиралась в зависимости от их характерного размера и, например, составляла $9 \cdot 10^{10}$ ед./мл для 40-нанометровых и в 8 раз меньшее значение для 80-нанометровых частиц. На поверхность перфорированного электрода высаживалась капля коллоида (80 мкл) на период от 30 с и дольше, которая затем удалялась струей сжатого азота.

Визуализация рельефа поверхности образцов в растровом электронном и атомно–силовом микроскопах (РЭМ и АСМ) после нанесения коллоидных растворов показала, что вероятность осаждения Au-частиц на поверхность SiO_2 в отверстиях контакта существенно ниже, чем на его металлизированную поверхность. Для осаждения частиц в отверстия время выдержки капли коллоида на образце приходилось увеличивать, вплоть до момента полного высыхания.

Поиск на образце микроотверстий с одиночными частицами занимал продолжительное время. Удачный результат, с единственной Au-частицей высотой 36 нм (в дальнейшем измеренную в АСМ высоту частицы мы полагаем равной ее диаметру) в отверстии верхнего контакта площадью ~ 7 мкм^2, показан на рис. 2, *b* и на вставке. В правом верхнем углу кадра, на контакте, видны аналогичные частицы, поверхностная плотность которых на 2 порядка выше.

Были предприняты попытки оптимизировать технологию осаждения. Перед нанесением коллоида образцы обрабатывались в установке IntlVac Nanoquest II с использованием источника ионов Кауфмана–Робинсона. Для нейтрализации заряженного пучка ионов использовался перпендикулярно направленный пучок электронов. Процедура производилась в течение 60 с после достижения в рабочей камере вакуума не меньше 10^{-7} Торр. Поток аргона ионной пушки составлял 26 стандартных см^3/мин при ускоряющем напряжении 200 В. Обработка способствовала увеличению числа отверстий с одиночной частицей, но формировала на поверхности диэлектрика долгоживущий проводящий канал, снимающий заряд с частиц. Такой канал полностью экранировал внутреннее поле конденсатора, что выявлялось по нечувствительности СКЗМ-сигнала поверхностного потенциала (surface potential, SP) в области отверстия к вариациям напряжения на нижней обкладке конденсатора (рис. 2, *a*) при заземленной верхней обкладке.

3. Результаты измерений и расчетов

На рис. 2, *c* и *d* представлены результаты исследования электрического потенциала одиночных частиц: 36-нанометровой частицы на изолирующей поверхности внутри трехмикронного отверстия верхнего электрода конденсаторной структуры и 26-нанометровой частицы на проводящей поверхности снаружи отверстия. Применялся двухпроходный СКЗМ-режим. Сначала измерялся сигнал высоты рельефа, а потом на заданном расстоянии h от образца, вдоль измеренной траектории записывался сигнал SP. Была задействована только X-развертка сканера, высоты кадров отвечают за время, потраченное на такое сканирование: 473 и 294 с. Оба контакта образца заземлены, в конденсаторе нулевое поле.

В изображении SP-сигнала на рис. 2, *c* наблюдается полоса нестабильности, мерцаний потенциала с узкой ~ 50 нм светлой полоской контраста в середине, отражающей рост сигнала над 36-нанометровой частицей. Так как мерцания потенциала затухают слева и справа от частицы, она — их источник. Ширина полосы мерцаний характеризует SP-отклик на пик потенциала над частицей, а именно сечение аппаратной функции зонда (АФЗ) в АМ СКЗМ-режиме [5,14] плоскостью поперек кантилевера. Основной вклад в наблюдаемое уширение дает электростатическое взаимодействие частицы с гранями пирамидального зонда. Используя только Y-развертку сканера, можно изучать сечение АФЗ плоскостью вдоль кантилевера.

В изображении SP-сигнала на рис. 2, *d* наблюдается только узкая вертикальная светлая полоска контраста сигнала над 26-нанометровой частицей. В отличие от рис. 2, *c* мерцания потенциала не регистрируются по

крайне мере в диапазоне времен от 2–294 с (частота строчной развертки ≈ 0.5 Гц).

Проведенные исследования показали также, что потенциал Au-частицы не „мерцает“, если это: частица в составе агломерата; одиночная частица в микроотверстии образца, обработанного перед нанесением коллоида ионами аргона; одиночная частица на поверхности GaAs и Si; одиночная частица на поверхности толстого, $d \approx 1.4$ мкм, термического оксида кремния в отсутствие перфорированного верхнего контакта. Как и для 26-нанометровой частицы, в первых трех случаях причина в проводящем окружении, быстро снимающем заряд с частицы. В последнем же случае, отсутствие мерцаний, по всей видимости, свидетельствует о том, что процесс изготовления верхнего контакта может снижать изолирующие свойства поверхности термического оксида.

Профили SP-сигнала (зависимости от времени) над 36-нанометровой частицей и 26-нанометровой частицей (рис. 2, *c* и *d*) после вычитания кривой 3-го порядка выведены на рис. 3, *c* и *a*. При нулевом поле конденсатора у частицы на контакте среднеквадратичная вариация (СКВ) потенциала $\sigma_0 = 2.4$ мВ, а у частицы в отверстии $\sigma_0 = 9.1$ мВ (№ 4, см. таблицу). Первое значение характеризует уровень инструментального шума SP-сигнала. Мерцания потенциала на 36-нанометровой частице в 4 раза больше шумов.

На рис. 3, *b* и *d* показаны профили SP-сигнала над одиночными 22-нанометровыми и 68-нанометровыми частицами на поверхности SiO_2 в отверстиях контакта. Для них $\sigma_0 = 9.3$ и 4.8 мВ (№ 1 и 6, см. таблицу).

По амплитуде мерцания частиц на поверхности SiO_2 (рис. 3, *b*–*d*) в разы превосходят шумы над частицей на Au-контакте (рис. 3, *a*). Если мерцания отражают активационный процесс скачка заряда частицы, то реже должны мерцать самые маленькие частицы, с большей энергией захвата одного электрона.

Это наблюдается на рис. 3, *b*–*d*, а также в спектрах плотности мощности сигнала (рис. 3, *f*–*h*) (фурье-преобразования сырых данных профилей SP-сигнала, без вычитания кривой 3-го порядка). В частности, спектры 22-, 36- и 68-нанометровых частиц имеют в среднем тангенс угла наклона: -1.2, -0.8 и -0.6 соответственно. Наклон спектра, однако, могут искажать низкочастотные аппаратные дрейфы.

Проявление такого дрейфа можно видеть на рис. 2, *c*. В верхней части кадра скачком происходит смена контраста как над частицей, так и вдали от нее. Поскольку измерения велись не в сверхвысоковакуумных условиях, адсорбция-десорбция загрязнений на зонд и образец могут менять контактную разность потенциала. Кроме того, свет от 650-нанометрового лазера, использованного в системе оптической регистрации отклонений кантилевера, поглощается в кремнии, что может менять электрическое поле на интерфейсе $Si-SiO_2$.

Оценим амплитуду тепловых флуктуаций потенциала проводящей частицы на изоляторе. Для простоты, мы, как, например, в работе [7], будем считать их сферами с радиусом R.

По данным просвечивающей электронной микроскопии (рис. 1), использованные Au-частицы по форме ближе к эллипсоидам со средней эллиптичностью $k \approx 0.7$. Емкость эллипсоида вращения с короткой осью R: $4\pi\varepsilon_0 R \times [k^{-2}-1]^{1/2}/\ln(k^{-1}+[k^{-2}-1]^{1/2})$ [15]. Отличие от емкости сферы $4\pi\varepsilon_0 R$ в 1.14 раза, что дает меру близости выбранного приближения к реальности.

Сфера с зарядом Q, лежащая на диэлектрике (SiO_2, $\varepsilon = 4$), создает над диэлектриком, $z \geq -R$, потенциал (см. [16–18] и *Приложение*, ф. (П.9):

$$\varphi = \frac{(\varepsilon-1)}{4\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 \ln[(\varepsilon+1)/2]} Q \times \left(\frac{1}{|r|} + \sum_{n=2}^{\infty} \frac{K^{n-1}}{|n\mathbf{r} + (n-1)R\mathbf{e}_Z|} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{K^n}{|n\mathbf{r} + (n+1)R\mathbf{e}_Z|} \right), \quad (1)$$

где $K = (\varepsilon-1)/(\varepsilon+1)$.

В эксперименте измеряется потенциал на высоте h над поверхностью образца. Сфера с зарядом $1e$ создает на высоте h над собой потенциал:

$$\varphi_e(h) = \frac{(\varepsilon-1)}{4\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 \ln[(\varepsilon+1)/2]} e \times \left(\frac{1}{R+h} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{K^n h}{[(2n+1)R+nh][(2n+1)R+(n+1)h]} \right). \quad (2)$$

Соответствующая кулоновская энергия следующая:

$$\Phi_e = \frac{e\varphi_e(0)}{2} = \frac{e^2}{2C} = \frac{(\varepsilon-1)e^2}{8\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 R \ln[(\varepsilon+1)/2]}. \quad (3)$$

У исследованных частиц (см. таблицу) Φ_e/e лежит в диапазоне 10–50 мВ.

Флуктуации потенциала проводящей частицы на диэлектрике могут определяться не только вариацией ее заряда (собственный шум), но и поведением внешних зарядов в диэлектрике (наведенный шум).

Внешние заряды в диэлектрике, захваченные на ловушки на расстояниях от частицы $\gg R$, создают дальнее поле E_1, которое экранируется в металле наведенным зарядом — диполем. Соответствующая добавка к потенциалу частицы $\sim E_1 R$. Заряд Q_2 на одиночной ловушке вблизи частицы действует ближним полем E_2. Экранирование E_2 наводит на частице разность потенциалов $\sim Q_2/R$.

Для снижения паразитного вклада внешних зарядов в потенциал частицы нужен диэлектрик с низкой плотностью ловушек, т. е. малым объемным зарядом и, как следствие, E_1. Если ловушки глубокие, с энергией, существенно большей тепловой и энергии захвата заряда на саму частицу, то сократится и роль E_2.

Оценим изменение потенциала частицы $\Delta\varphi$ из-за ее поляризации краевым полем конденсатора $\mathbf{E}$. Про-

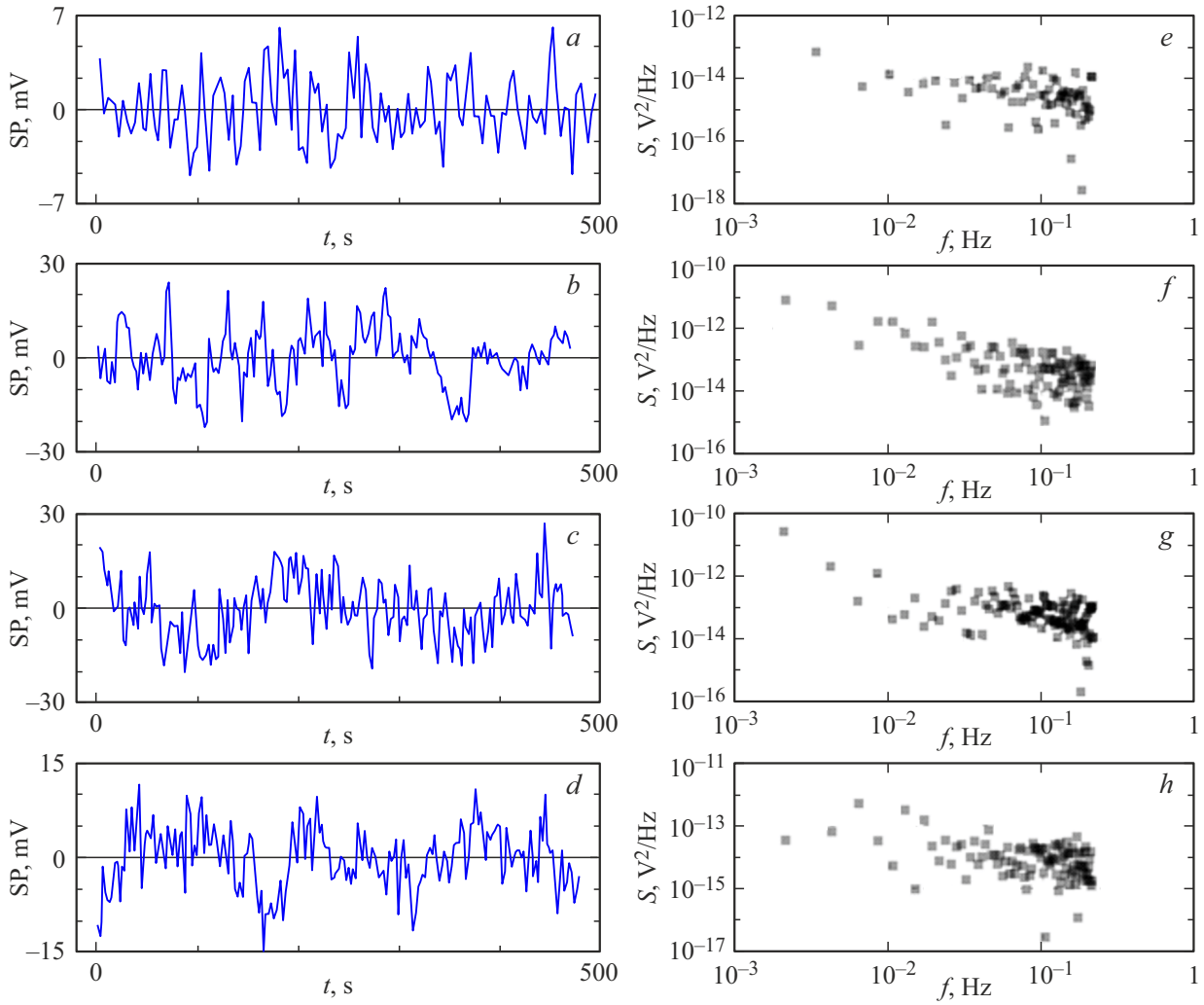


Рис. 3. Временны́е флуктуации SP-сигнала над частицами разных размеров на проводнике и изоляторе и соответствующие им спектры в нулевом поле: 26 нм на Au (*a* и *e*); 22 нм на SiO_2 (*b* и *f*), 36 нм на SiO_2 (*c* и *g*), 68 нм на SiO_2 (*d* и *h*) (частицы № 1, 4 и 6 в таблице). Кантилеверы: *a*–*c* — 2, *d* — 7 (см. таблицу). Профиль *a* и спектр *e* характеризуют собственные шумы СКЗМ.

водящая сфера, внесенная в поле **E**, в точке **r** создаст потенциал $\varphi_d = (\mathbf{E}, \mathbf{r})(R/r)^3$ [18]. На высоте h над ней $|\Delta\varphi| = |E|h(3R^2 + 3Rh + h^2)/(R+h)^2$. На краю конденсатора поле меньше, чем внутри: $|E| < |\Delta V|/d$. Поэтому, например, $R = h = 20$ нм: $|\Delta\varphi| < |\Delta V|/40$. Таким образом, $\Delta\varphi$ не превышает нескольких мВ, если $\Delta V \approx 100$ мВ.

У проводящей частицы с равномерно распределенным по поверхности зарядом $Q = ne$ электростатическая энергия Φ_n:

$$\Phi_n = n^2\Phi_e. \tag{4}$$

Считая $\langle n \rangle = 0$, частица в среднем нейтральна, ее энергию $\langle \Phi \rangle$, равную тепловой [19], запишем:

$$\langle \Phi \rangle = \langle n^2 \rangle \Phi_e = \sigma_{nC}^2 \Phi_e = \frac{k_\mathrm{B}T}{2}. \tag{5}$$

Используя (5) и общее соотношение для СКВ потенциала на высоте h

$$\sigma_\varphi = \sigma_n \varphi_e(h), \tag{6}$$

получим для СКВ потенциала $\sigma_{\varphi C}$ без учета дискретности уровней:

$$\sigma_{\varphi C} = \varphi_e(h)\sqrt{\frac{k_\mathrm{B}T}{e\varphi_e(0)}}. \tag{7}$$

Учитывая дискретность с помощью распределения Гиббса [19], определим СКВ числа электронов на частице, σ_{nQ}, и связанную ней $\sigma_{\varphi Q}$:

$$\sigma_{\varphi Q} = \sigma_{nQ}\varphi_e(h),$$

$$\sigma_{nQ} = \sqrt{\sum_{-\infty}^{+\infty} n^2 \exp\left(-n^2 \frac{\Phi_e}{k_\mathrm{B}T}\right) \Big/ \sum_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-n^2 \frac{\Phi_e}{k_\mathrm{B}T}\right)}. \tag{8}$$

Поскольку $\Phi_e/k_\mathrm{B}T \approx 1$, оба ряда под корнем очень быстро сходятся.

На рис. 4 сплошная и пунктирная, C и Q, кривые показывают зависимости $\sigma_{\varphi C}$ (7) и $\sigma_{\varphi Q}$ (8) от радиуса R

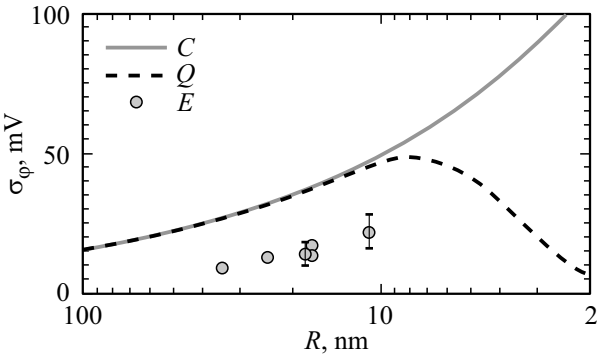


Рис. 4. Расчетные значения без учета, C, и с учетом дискретности уровней энергии, Q, тепловых флуктуаций потенциала как функции радиуса R металлической сферы, лежащей на изоляторе с $\varepsilon = 4$; результаты измерений в нулевом краевом поле конденсатора, E.

частицы, рассчитанные для $h = 0$ и $\varepsilon = 4$. У крупных частиц, $R > 15$ нм ($\Phi_e < k_B T$), кривые совпадают. С уменьшением R C-зависимость монотонно возрастает, а Q-зависимость проходит через максимум при $R \approx 8$ нм ($\Phi_e \approx 2.35 k_B T$), после которого быстро убывает до нуля.

На рис. 4 кружки показывают результаты измерений. По каждой из шести частиц выведены средние значения $\sigma_0(0)$ в правом столбце таблицы. Величина $\sigma_0(0)$ рассчитывалась по измеренной σ_0 в приближении обратной зависимости потенциала от расстояния до центра частицы. Приближение оправдано. Ряд в зависимости (2) быстро сходится, так как $K = 0.6$. Обратная зависимость наблюдалась в эксперименте (см. таблицу, частица № 4, кантилевер 6).

На рис. 4 показания измерений и расчетов растут с уменьшением R. Согласие с теорией — качественное, АМ СКЗМ недооценивает флуктуации: в ~ 3 раза на самой крупной частице (№ 6) и в ~ 2 раза на самой маленькой (№ 1). Статистическая значимость данных этих крайних точек — низкая. Проблема в том, что многократное сканирование, как правило, приводило к захвату на зонд слабо связанной с подложкой частицы. Стоит, однако, подчеркнуть, что емкостная связь кончика зонда с крупной частицей сильнее, и в равных условиях недооценка потенциала над ней должна быть меньше. Условия измерений не были равными — использовались разные кантилеверы: у 6 h на 10 нм больше, чем у 1 (см. таблицу).

Мерцания SP-сигнала могут вызвать не только тепловые флуктуации потенциала частицы. При измерениях высоты рельефа на первом проходе в резонансном режиме прерывистого контакта зонд малую долю периода касается частицы и может разряжать ее. Исключить такое касание можно, зафиксировав зонд точно над частицей, измеряя SP-сигнал. Для времен измерений сотни секунд потребуется минимизировать дрейф в системе зонд–образец. Например, вертикальный дрейф, как представляется, должен быть < 0.01 нм/с.

Заряды диэлектрической подложки, как обсуждалось, создают дальнее флуктуирующее поле E_{SiO_2} Наведенные флуктуации потенциала $\sim E_{SiO_2} R$, т. е. должны расти с размером частицы. Однако в эксперименте мерцания потенциала уменьшаются. Более того, шум сигнала над диэлектриком (SP $\approx E_{SiO_2} h$, расстояние зонд–образец $h \approx R$) в разы меньше мерцаний потенциала на частице (см. профили на рис. 5, c).

Точечный заряд Q может оказаться на ловушке вблизи проводящей частицы, на зазоре — δ от нее. Потенциал вблизи такой нейтральной частицы имеет два вклада: основной от заряда Q в центре сферы (модели частицы) и от диполя $p = 2Q\delta$ [18]. Дипольный вклад меняется при переходе заряда на другие ловушки, но мал по сравнению с основным: на расстоянии r от ловушки они соотносятся как δ/r.

Паразитные источники мерцаний SP-сигнала от проводящей частицы на диэлектрике осложняют калибровку СКЗМ-сигнала по амплитуде тепловых флуктуаций потенциала частицы. Определить АФЗ в СКЗМ-режиме, однако, можно разными способами [5,14,20–22]. Их использование позволит глубже изучить природу мерцаний.

На рис. 5, c (профиль „нулевого поля“ частицы № 1, $\sigma_0 = 6.3$ мВ) SP-сигнал осциллирует с периодом ~ 100 с и перепадом ~ 10 мВ. Расчет по (8) СКВ числа электронов для № 1 дает $\sigma_{nQ} = 0.538$. Используя этот результат, получаем отклик на 1e-скачок заряда $\Delta SP_{1e} = \sigma_0/\sigma_{nQ} \approx 12$ мВ. Аналогично получены значения ΔSP_{1e} для частиц № 1, 4 и 6 (рис. 3, b–d): 18, 13 и 5 мВ.

По сравнению с рис. 5, c профили *1* и *2* на рис. 5, d растут в среднем на ~ 30 мВ. Это отражает изменения краевого поля конденсатора при росте ΔV на нижнем контакте в течение 473 с сканирования (снизу–вверх на рис. 5, a и b) от -100 мВ до $+100$ мВ со скоростью 0.42 мВ/с (отрицательный ток $\leq 0.5\,e$/с; электроны заряжают отверстие с частицей). В сравнении с нулевым полем мерцания на профиле *2* на рис. 5, d гаснут: $\sigma_- = 4.5$ мВ, $\sigma_- 0/\sigma_0 \approx 0.7$.

На частице № 4 ток ≤ 0.3 e/с приводил к $\sigma_-/\sigma_0 \approx 1.4$ и 1.2 (два разных кантилевера); у № 6 $\sigma_-/\sigma_0 \approx 1.5$, ток $\leq 0.8\,e$/с. У № 3 токи $\leq 0.7\,e$/с (разных знаков), $\sigma_- = 8.2$ мВ и $\sigma_+ = 6.0$ мВ. В итоге отрицательный ток усиливает мерцания потенциала трех частиц, и только у самой маленькой — гасит.

Затухание мерцаний похоже на подавление тепловых вибраций механического осциллятора нагрузкой, увеличивающей его жесткость. Действительно, тепловые флуктуации потенциала могут уменьшаться (усиливаться), если при зарядке отверстия увеличивается (уменьшается) емкость частица–подложка. В среднем при отрицательном токе она падает. Согласно (3) и (П.7), эта емкость мала при малых ε. Обычно на подложке тонкий слой атмосферной влаги, $\varepsilon_{H_2O} = 81$. У такой композитной подложки эффективная $\varepsilon > \varepsilon_{SiO_2} = 4$. Поэтому

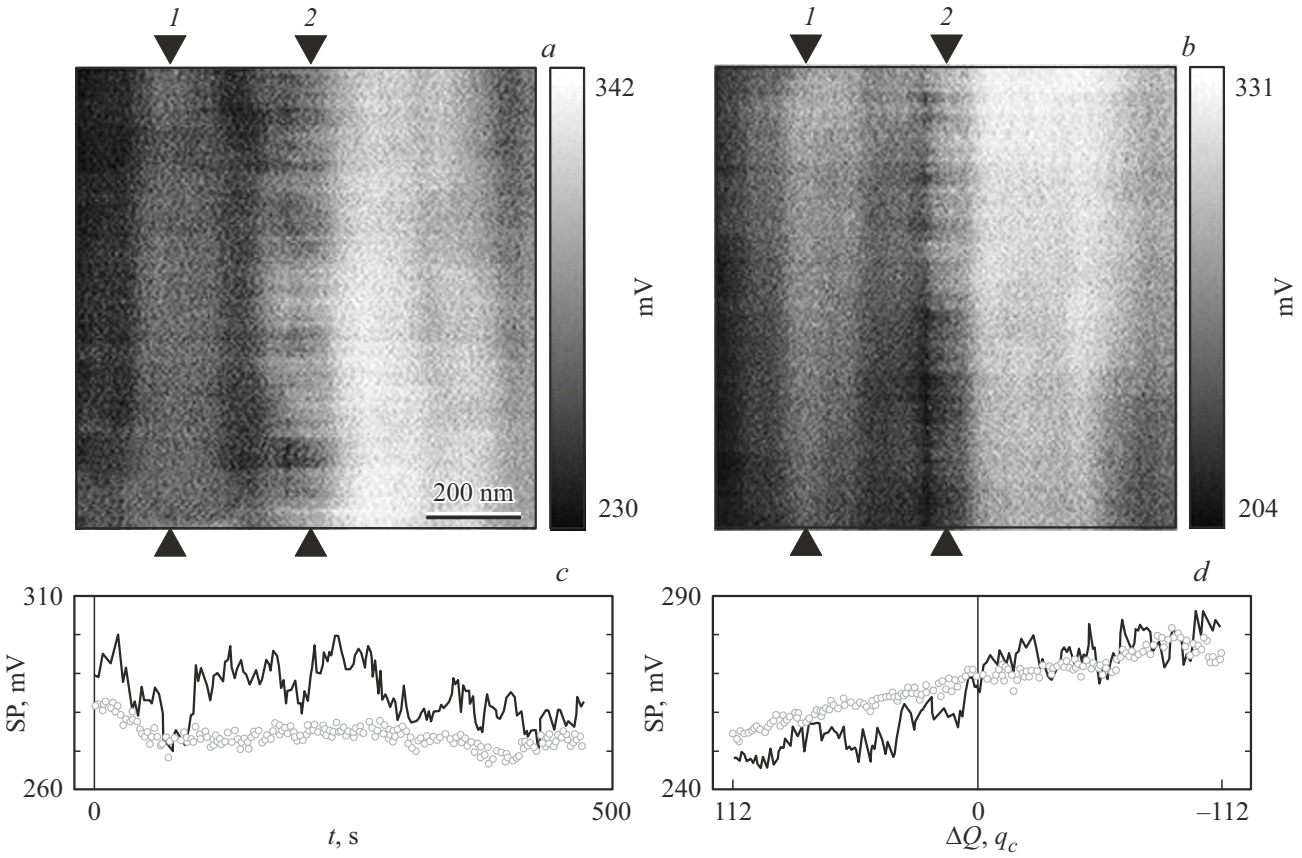


Рис. 5. Повторяющиеся измерения SP-сигнала вдоль одной линии через 22-нанометровую частицу (№ 1, кантилевер 1, см. таблицу). *a* — $\Delta V = 0$; *b* — $d(\Delta V)/dt = 0.42$ мВ/с (отверстие заряжалось током смещения ~ 0.5 е/с в течение 473 с). Профили SP-сигнала (зависимости от времени) над частицей сплошной *2*, на 300 нм левее ее кружки *1*: *c* — в нулевом поле; *d* — при развертке.

падение (рост) емкости может отражать десорбцию (адсорбцию) воды. Соответственно, мерцания потенциала частиц будут усиливаться (затухать) на сухой (влажной) поверхности, что интересно проверить в эксперименте.

4. Заключение

Методом сканирующей Кельвин-зонд микроскопии в режиме амплитудной модуляции исследованы временны́е флуктуации электрического потенциала Au-частиц на поверхности перфорированного контакта конденсаторной структуры в основе *p*-Si с термическим оксидом толщиной 1.4 мкм. У одиночных частиц высотой 20–70 нм, расположенных на диэлектрической поверхности внутри микроотверстий контакта, наблюдались мерцания потенциала со среднеквадратичной амплитудой ~ 10 мВ и частотой в диапазоне 0.01–0.1 Гц. Определены зависимости амплитуды мерцаний от размера частицы и от расстояния зонд–частица.

В приближении проводящей сферы на диэлектрике проведены расчеты тепловых флуктуаций потенциала металлической частицы. Получено качественное согласие измерений с расчетами. Рассмотрены особенности калибровки СКЗМ-сигнала поверхностного потенциала на нанометровом источнике тепловых шумов потенциала.

Остается подчеркнуть следующее. Измеренная величина флуктуаций может быть сильно меньше предсказываемого статистической механикой значения, так как пропорциональна $(\tau/\Delta t)^{1/2}$, где $(2\pi\tau)^{-1}$ определяет ширину плоского спектра тепловых флуктуаций, Δt — это значение постоянной времени прибора [23]. Мы считаем, что в нашем случае такого уменьшения нет, поскольку наблюдаются изменения сигнала, отражающие элементарные скачки заряда на частице. Действительно, промежутки τ между нестабильностями сигнала на рис. 2, 3 и 5 больше 10 с. В представленных данных между измерениями потенциала над частицей проходит существенно меньшее время $\Delta t \approx 2$ с (определяется частотой строчной развертки). Время жизни зарядового состояния Au-частицы, τ, связано с временем Максвелла релаксации заряда в среде: $\tau_{\mathrm{M}} = \varepsilon\varepsilon_0\rho$. Термический оксид кремния считается очень хорошим изолятором [24,25]. Если, например, $\rho_{\mathrm{SiO_2}} \approx 10^{11}-10^{12}$ Ом · м, то $\tau_{\mathrm{M}} \sim 10$ с. По порядку величины такие времена релаксации обна-

руживались в АСМ-исследованиях по инжекции заряда в образцы SiO_2-Si [26,27].

Благодарности

А.В. Анкудинов, А.М. Минтаиров, В.Д. Родин, А.С. Щенин поддержаны грантом РНФ СПбНФ № 24-22-20014.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

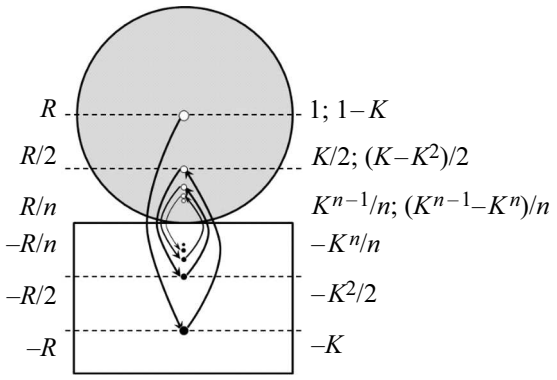
[1] Р. Милликен. *Электроны (+ и −), протоны, фотоны, нейтроны и космические лучи* (М.–Л., Гос. объединен. науч.-техн. изд-во НКТП СССР, 1939) гл. 5, с. 72.
[2] Я.Б. Зельдович. УФН, **89**, 647 (1966).
[3] В.Б. Брагинский. *Физические эксперименты с пробными телами* (М., Наука, 1970) гл. 2, с. 76.
[4] M. Nonnenmacher, M.P. O'Boyle, H.K. Wickramasinghe. Appl. Phys. Lett., **58**, 2921 (1991).
[5] H.O. Jacobs, H.F. Knapp, A. Stemmer. Rev. Sci. Instrum., **70**, 1756 (1999).
[6] A. Tekiel, Y. Miyahara, J.M. Topple, P. Grutter. ACS Nano, **7**, 4683 (2013).
[7] Y. Zhang, O. Pluchery, L. Caillard, A.-F. Lamic-Humblot, S. Casale, Y.J. Chabal, M. Salmeron. Nano Lett., **15**, 51 (2015).
[8] Y. Abbas, M. Rezeq, A. Nayfeh, I. Saadat. Appl. Phys. Lett., **119**, 162103 (2021).
[9] B. Chatelain, A.E. Barraj, C. Badie, L. Santinacci, C. Barth. New J. Phys., **23**, 123009 (2021).
[10] D.V. Averin, K.K. Likharev. J. Low Temp. Phys., **62**, 345 (1986).
[11] G. Zimmerli, T.M. Eiles, R.L. Kautz, J.M. Martinis. Appl. Phys. Lett., **61**, 237 (1992).
[12] S.M. Verbrugh, M.L. Benhamadi, E.H. Visscher, J.E. Mooij. J. Appl. Phys., **78**, 2830 (1995).
[13] V.A. Krupenin, D.E. Presnov, M.N. Savvateev, H. Scherer, A.B. Zorin, J. Niemeyer. J. Appl. Phys., **84**, 3212 (1998).
[14] К.С. Ладутенко, А.В. Анкудинов, В.П. Евтихиев. Письма ЖТФ, **36**, 71 (2010).
[15] А. Зоммерфельд. *Электродинамика* (М., Изд-во иностр. лит., 1958) гл. 2, с. 103.
[16] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Электродинамика сплошных сред* (М., Физматлит, 2005) гл. 1, с. 24.
[17] В. Смайт. *Электростатика и Электродинамика* (М., Изд-во ностр. лит. 1954) гл. 5, с. 208.
[18] Д.В. Сивухин. **Электричество** (М., Физматлит, Изд-во МФТИ, 2004) гл. 1, с. 86.
[19] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Статистическая физика* (М., Наука, 1976) ч. 1, гл. 12, с. 363.
[20] U. Zerweck, C. Loppacher, T. Otto, S. Grafström, L.M. Eng. Phys. Rev. B, **71**, 125424 (2005).
[21] J. Colchero, A. Gil, A.M. Baro. Phys. Rev. B, **64**, 245403 (2001).
[22] A. Gil, J. Colchero, J. Gomez-Herrero, A.M. Baro. Nanotechnology, **14**, 332 (2003).
[23] Д. Мак-Доналд. *Введение в физику шумов и флуктуаций* (М., Мир, 1964) гл. 1, с. 27.
[24] Р. Бургер, Р. Донован. *Основы технологии кремниевых интегральных схем* (М., Мир, 1969) т. 1, ч. 1, гл. 3, с. 116.
[25] J.K. Srivastava, M. Prasad, J.B. Wagner, jr. J. Electrochem. Soc., **132**, 955 (1985).
[26] G.H. Buh, H.J. Chung, Y. Kuk. Appl. Phys. Lett., **79**, 2010 (1999).
[27] M.S. Dunaevskiy, P.A. Alekseev, P. Girard, E. Lahderanta, A. Lashkul, A.N. Titkov. J. Appl. Phys., **110**, 8 (2011).

Редактор Г.А. Оганесян

Приложение

Потенциал заряженной проводящей сферы, лежащей на диэлектрике

Задача решается методом изображений. Поместим в центр сферы на высоте R заряд $Q_0 = 1$ (см. рисунок). Заряд $-K$, его изображение в диэлектрике на глубине $-R$, нарушит эквипотенциальность на поверхности сферы. Изображение заряда $-K$ внутри сферы, заряд $K/2$ на высоте $R/2$, восстановит ее. Учитывая следующие поколения изображений зарядов в диэлектрике и сфере, можно получить решение в виде бесконечного ряда.



Бесконечные системы точечных изображений зарядов в проводящей сфере радиуса R и в изоляторе с диэлектрической проницаемостью ε; $K = (\varepsilon-1)/(\varepsilon+1)$. Снаружи сферы, вне диэлектрика, потенциал создают системы зарядов K^{n-1}/n внутри сферы и $-K^n/n$ в диэлектрике; в диэлектрике — система $(K^{n-1}-K^n)/n$ внутри сферы.

Вычислим сумму всех зарядов внутри сферы, Q:

$$Q = Q_0\left(1 + K/2 \ldots + K^n/(n+1)\ldots\right) = Q_0 \sum_{n=0}^{\infty} K^n/(n+1). \tag{П.1}$$

Для этого заметим, что

$$K^{n+1}/(n+1) = \int_0^K x^n dx, \tag{П.2}$$

и, так как $K < 1$,

$$\sum_{n=0}^{\infty} x^n = 1/(1-x). \qquad (\text{П}.3)$$

Из (П.2) и (П.3) следует, что

$$K \sum_{n=0}^{\infty} K^n/(n+1) = \int_0^K dx/(1-x) = -\ln(1-K). \quad (\text{П}.4)$$

Комбинируя (П.1) и (П.4), получаем

$$Q = -Q_0 \frac{\ln(1-K)}{K} = Q_0 \frac{\varepsilon+1}{\varepsilon-1} \ln \frac{\varepsilon+1}{2}. \qquad (\text{П}.5)$$

Расположим центр системы координат в центре сферы рис. 6, ось Z направим наверх. При $n \geq 2$ заряды K^{n-1}/n внутри сферы и $-K^n/n$ в диэлектрике компенсируют потенциалы друг друга на поверхности сферы, и в потенциале остается вклад только от Q_0. С учетом (П.5) запишем

$$\varphi_{|r|=R} = \frac{Q_0}{4\pi\varepsilon_0 R} = \frac{(\varepsilon-1)Q}{4\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 R \ln[(\varepsilon+1)/2]}. \quad (\text{П}.6)$$

Откуда получаем выражения для емкости сферы на диэлектрике:

$$C = 4\pi \frac{\varepsilon+1}{\varepsilon-1} \varepsilon_0 R \ln \frac{\varepsilon+1}{2} \qquad (\text{П}.7)$$

и электростатической энергии Φ изолированной сферы с зарядом Q:

$$\Phi = \frac{Q^2}{2C} = \frac{Q\varphi_{|r|=R}}{2} = \frac{(\varepsilon-1)Q^2}{8\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 R \ln[(\varepsilon+1)/2]}. \qquad (\text{П}.8)$$

Введя $\mathbf{e}_Z$, единичный Z-вектор, запишем общие выражения для потенциала снаружи сферы с зарядом Q:

$$\varphi_{z \geq -R} = \frac{(\varepsilon-1)Q}{4\pi(\varepsilon+1)\varepsilon_0 \ln[(\varepsilon+1)/2]} \times \left(\frac{1}{|r|} + \sum_{n=2}^{\infty} \frac{K^{n-1}}{|n\mathbf{r}+(n-1)R\mathbf{e}_Z|} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{K^n}{|n\mathbf{r}+(n+1)R\mathbf{e}_Z|} \right),$$

$$\varphi_{z \leq -R} = \frac{(\varepsilon-1)Q}{2\pi(\varepsilon+1)^2\varepsilon_0 \ln[(\varepsilon+1)/2]} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{K^{n-1}}{|n\mathbf{r}+(n-1)R\mathbf{e}_Z|}. \qquad (\text{П}.9)$$

Variations in the electric potential of a metal nanoparticle on a dielectric

A.V. Ankudinov[1], A.S. Vlasov[1], M.S. Dunaevskiy[1], V.Yu. Axenov[1], I.V. Ilkiv[2], A.V. Malevskaya[1], V.D. Rodin[1], A.S. Tschenin[1], A.M. Mintairov[1]

[1] Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia
[2] St. Petersburg State University,
199034 St. Petersburg, Russia

Abstract Using scanning Kelvin probe microscopy under room conditions, flickering of the surface potential signal over single 20–70 nm Au particles in the microappertures of a perforated Au contact of a flat capacitor with the GaIn–pSi–SiO_2–Au structure was investigated. It was found that the flickering amplitude increases with decreasing particle size and probe-sample distance. The relationship between the flickering and thermal fluctuations of the particle potential, as well as other sources, was analyzed. Calibration of the surface potential signal on a nanoscale potential flicker source made it possible to identify the response to elementary charge jumps in the experimental data.