

金属-绝缘体-金属隧道发光结的 电子隧穿和负阻现象^{*}

俞建华 孙承休 王茂祥¹⁾ 张佑文 魏同立

(东南大学电子工程系, 南京 210096)

1)(东南大学物理系, 南京 210096)

(1997 年 6 月 2 日收到; 1997 年 6 月 28 日收到修改稿)

薄膜 $\text{Au-Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$ 隧道结(MIMTJ)在产生可见光发射的同时表现出了明显的负阻现象. 这种负阻现象的物理机制是由于结中产生了作为发光中介作用的表面等极化激元(SPP)对隧穿电子的阻挡作用. 通过 MIMTJ 的电子输运的电路模拟和 I - V 特性的数值计算, 揭示了 SPP 在 I - V 特性曲线中的负阻、隧道结发光中所起的关键作用.

PACC: 7340R

1 引 言

金属-绝缘体-金属隧道结(metal-insulator-metal tunnel junction, 缩写为 MIMTJ)的宽带光发射现象是由 Lambe 和 McCarthy 于 1976 年首先发现的^[1]. 由于它具有外加直流发光电压低(约为 5 V)、发光颜色可调、与半导体工艺兼容、成本低廉等特点, 可望在彩色平板显示、光电集成系统中得到广泛的应用; 利用它的逆效应可做成 10^{-12} 秒量级的光探测器. 另外, MIMTJ 的发光效应研究对于理解隧道电子的运动规律及其与固体中各种元激发(振荡量子)特别是表面元激发的耦合机制具有重要意义, 已经引起了广泛的兴趣^[2-7]. 近几年来利用金属-绝缘体(简称 M-I)超薄异质结构而研制具有高跨导和极高的工作速度的三端器件, 以及利用 M-I 界面非常大的导带跃变而产生的强电子波量子干涉效应的新颖微电子器件研究也有了很大的进展^[8,9].

MIMTJ 的发光机理存在着多种观点^[2,10-13], 但普遍公认的理论是两步过程^[14]: 即首先是隧穿电流激发 MIMTJ 中的表面等极化激元(surface plasmon polariton, 缩写为 SPP); 然后是 SPP 波与粗糙度耦合而发射光子. 结中 SPP 波的强度直接与发光强度相联系. 作为 MIMTJ 中电子输运的主要过程——电子隧穿与 SPP 波的产生、MIMTJ 的发光有着非常密切的联系. 同时, 实验显示在 MIMTJ 两端施加的直流偏压增加到某些值时, 会出现随着电压的增加电流增加却很少甚至下降, 形成 $dI/dV < 0$ 的区域, 称为负阻现象. 这里的负阻在机理上有别于金属/绝缘体/半导体(MIS)结构和 p-n 结隧道二极管的负阻现象.

^{*} 国家自然科学基金资助的课题.

因此,进一步研究 MIMTJ 的电子隧穿细节,如 M-I 界面特性、各层薄膜厚度和表面粗糙度、温度以及 SPP 波产生等因素对隧穿电子的影响,对于理解 MIMTJ 的发光机理、SPP 与负阻的联系和研制实用化光电子器件是非常重要的.本文给出了 MIMTJs 的 I-V 特性中的负阻现象的实验观察,通过实际 MIMTJ 中电子输运的电路模型和数值计算,显示了电子隧穿与负阻现象、负阻与 SPP 以及 SPP 与发光之间的联系.

2 实 验

2.1 样品制作

利用油扩散泵真空系统将 MIMTJ 制作在载玻片上的详细过程,文献[6]中已有报道.得到的结的零偏电阻具有工艺上的起伏性,结的面积也有多种尺寸,其结构示于图 1.

2.2 I-V 特性曲线和负阻

采用四端法测量得到典型的 I-V 特性曲线如图 2 至图 4 所示.其中图 2 和图 3 的负阻非常明显,图 4 中显示一些 MIMTJ 的负阻会随反复测量而变小,或者有些结未见明显的负阻.图 2 和图 3 中测量了偏压由小到大及再由大到小两种情形下的 I-V 曲线,两种情形的差异显示了结电容的影响.

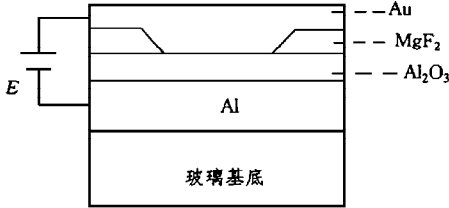


图 1 MIM 隧道结示意图

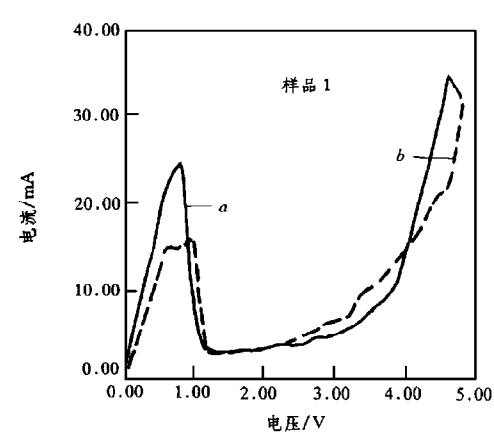


图 2 MIM 隧道结的电流-电压特性曲线 零偏电阻 $R_0=12.0\ \Omega$; 结面积 $S=2.5\ \text{mm}\times 3.5\ \text{mm}$; 曲线 a 和曲线 b 分别对应于室温下增加电压和降低电压的情形

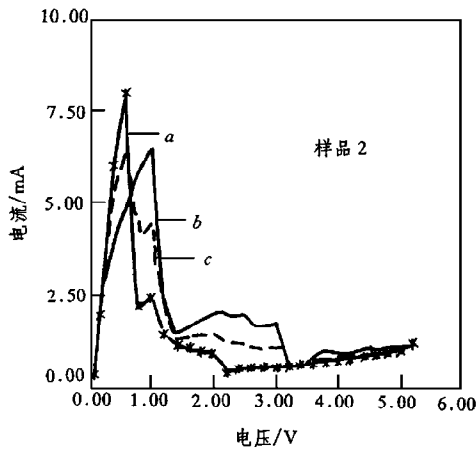


图 3 Al-Al₂O₃-Au 隧道结的电流-电压特性曲线 曲线 a 为外加偏压从 0.0 到 5.2 V 增加; 曲线 b 为外加偏压从 5.2 到 0.0 V 减小; 曲线 c 为对曲线 a 、曲线 b 两种电流的平均值; 零偏电阻 $R_0=30.0\ \Omega$; 面积 $S=3.0\ \text{mm}\times 3.5\ \text{mm}$; 均在室温下测量

另外,大量的样品显示,当 MIMTJ 具有负阻现象时,就一定能观察到较强的光发射,

没有负阻的结只有在更高的偏压下才发光或发光呈点状闪烁且重复性差.

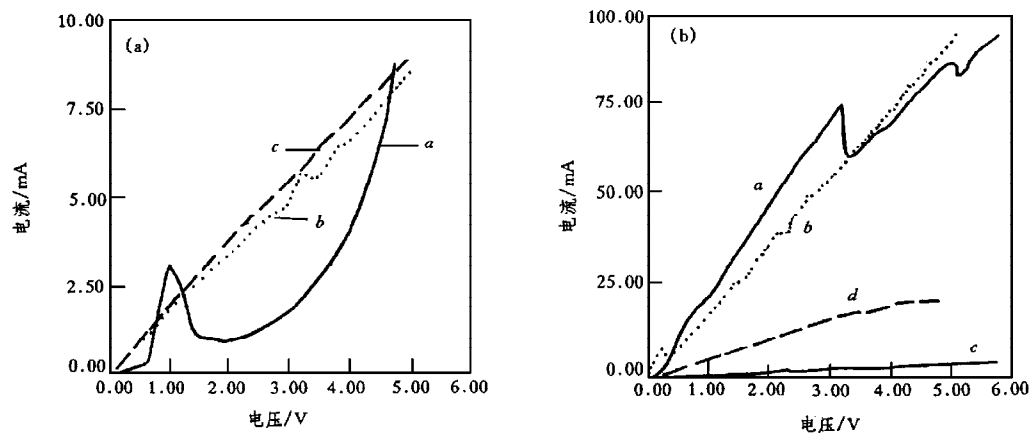


图 4 MIM 隧道结的电流-电压特性曲线 (a)为零偏电阻 $R_0=24.0\ \Omega$, 面积 $S=5.0\ \text{mm}\times 6.0\ \text{mm}$, 均在室温下测量, 曲线 a, b, c 分别表示对结反复施加电压后的第 5、第 30、第 60 次测量结果. (b)中的曲线 a 为 $R_0=24.0\ \Omega$, $S=5.0\ \text{mm}\times 6.0\ \text{mm}$; 曲线 b 为 $R_0=50.0\ \Omega$, $S=5.0\ \text{mm}\times 6.0\ \text{mm}$; 曲线 c 为 $R_0=2.2\ \text{k}\Omega$, $S=5.0\ \text{mm}\times 6.0\ \text{mm}$; 曲线 d 为 $R=400\ \Omega$, $S=2.0\ \text{mm}\times 2.0\ \text{mm}$, 均在室温下测量

2.3 发射光谱

利用双单色仪 (HRD Monochromater, Jobin Yvon Division, d' Instruments S. A., France)光子计数器 (Model1109, Princeton) 记录仪 (IF4000, Ifelec, France)测得 MIMTJs 的发射谱如图 5 所示, 光子计数器记录间隔为 1s, 记录纸每毫米对应于光波长间隔为 2 nm. 图 5 中曲线 a 和曲线 b 分别与图 2 和图 3 中的样品相对应.

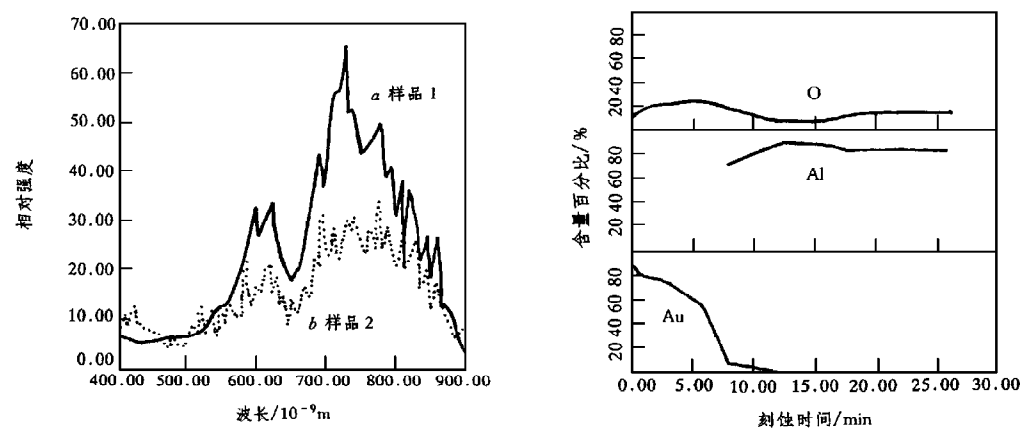


图 5 以玻璃为基底的 $\text{Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Au}$ 隧道结的发射光谱特性曲线 曲线 a 为 $R_0=12.0\ \Omega$, $S=2.5\ \text{mm}\times 3.5\ \text{mm}$, 偏压 $V=4.0\ \text{V}$, 电流 $I=15.6\ \text{mA}$; 曲线 b 为 $R_0=30.0\ \Omega$, $S=3.0\ \text{mm}\times 3.5\ \text{mm}$, $V=4.0\ \text{V}$, $I=1.2\ \text{mA}$

图 6 由 Auger 电子谱仪测量得到 MIM 隧道结的各元素含量随刻蚀时间变化曲线

2.4 元素深度分布

为了得到 MIMTJ 各界面的物理特性和估计各层膜的厚度,利用俄歇(Auger)谱仪分析了 MIMTJ 的结构,所得各元素组分与刻蚀时间的关系示于图 6. 测量时 Ar 离子束垂直样品表面的刻蚀速率为 2 nm/min,分辨率为 0.3%.

3 MIMTJ 的电路模拟

理想的 MIMTJ 可以用电子隧穿一个单势垒来描述.然而 MIMTJ 的重要特点是与极高的电场(10^8 — 10^9 V/m)相联系.由于绝缘(I)层非常薄(约为 3 nm),因此 I 层的体导电效应可以忽略,电流中占优势的机制是电子通过 I 层的直接隧穿.考虑到实际的 MIMTJ,总电流中必定含有泄漏电流、温度效应及金属膜本身的电阻、电子的平均有效隧穿距离和 I 层厚度的起伏等因素.真实的 MIMTJ 电路模拟示于图 7.

3.1 隧穿势垒

隧穿势垒是模型中的主要元件,电子在界面上的行为依赖于界面处原子尺度内的精确结构.

但由于电子的波动性(λ 为 0.4—1.0 nm)平均掉了 1—2 个界面原子的非均匀性,因此可以用平均隧穿距离 $b(V)$ 来描述 I 层势垒宽度.这里 $b(V)$ 与外加电压有关.这种变化主要是由于 MIMTJ 中 SPP 波的作用.在如图 1 所示的结构中, SPP 波分布于 Au-空气, Au- Al_2O_3 , Al- Al_2O_3 和 Al-玻璃基底各界面.由于 Al 层较厚(约为 100 nm), Al-玻璃基底界面的 SPP 对 MIMTJ 的 I-V 特性影响不大,同时 Au-空气界面的 SPP 对 I-V 特性的影响也可以忽略.由 SPP 的理论可知^[14,15],在 M-I 界面的 SPP 能量增加时, SPP 的快模式和慢模式的垂直和平行于界面的分量都向界面集中.由于 SPP 在界面的分布将导致 M-I 界面 M 侧相对于隧穿电子的传导特性发生变化.即 SPP 波将对隧穿电子产生一定的阻挡作用.于是当结的偏压由零增加到能激发起较强的 SPP 时的电压 V_0 (如 1.0 V)时,出现负阻.当外加偏压继续升高时,激发 SPP 达到饱和,隧穿电流又成非线性增长.这种 SPP 的场的影响可以等效为两种模型,即电子平均隧穿距离的增加和相对于隧穿电子的势垒增高.采用梯型势垒模型,由量子力学理论在 $T=300$ K 下计算得到的结果如图 8 所示,隧穿电流强烈地依赖于势垒宽度,而对势垒高度的影响较弱.计算时对隧穿概率没有采用半经典的 WKB 近似方法,而是采用了更为准确的级数作为势垒区连接函数的方法.数值计算还显示,考虑 Fermi 分布随温度变化时,隧穿电流对温度的依赖很弱,如当 $V=1$ V, T 从 30 K 上升至 450 K 时, I 的相对变化小于 0.3%. I-V 曲线中的负阻现象可以用图 8(a) 中 A 点下降的虚线来模拟,并与实验符合得很好.

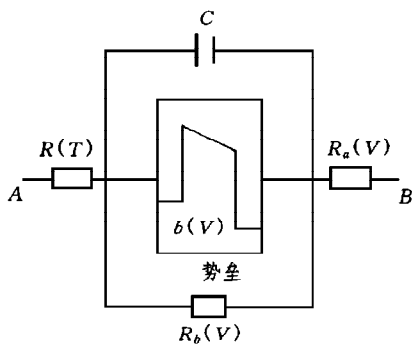


图 7 MIM 隧道结的电路模拟

3.2 附加电阻和电容

R_a (V) 为两边电极的接触电阻、连接导线等引起的电阻总和. R_b (V) 为与泄漏电流相对应的泄漏电阻, 泄漏包括边缘泄漏和结面上的 I 层缺陷泄漏. R (T) 为两边金属薄膜的电阻, 与温度 T 有关. 真空蒸发淀积的金属一般呈多晶结构, 对较薄的膜 R (T) 为晶粒本身和晶粒间界引起的电阻之和,

$$R(T) = R_0[1 + \alpha(T - 273)] + C \exp(\theta/kT), \quad (1)$$

其中 R_0 为 0°C 下的电阻, C 为常量, θ 为晶粒间界势垒高度, α 为温度系数. 对较厚的连续膜, $\theta = 0$.

图 7 中的电容 C 为绝缘层电容和由于高场透入金属电极而引起的极化电容之和,

$$1/C = b(V)/\epsilon_i + 1.15(\lambda_{m1}/\epsilon_{m1} + \lambda_{m2}/\epsilon_{m2}), \quad (2)$$

其中 ϵ_i , ϵ_{mj} ($j=1, 2$) 为 I 和 M 层的电容率, $b(V)$ 为电子的平均有效隧穿距离, λ_m 为电场在金属内的特征穿透长度. 在直流情形下, 附加电容对 I - V 特性影响可以忽略.

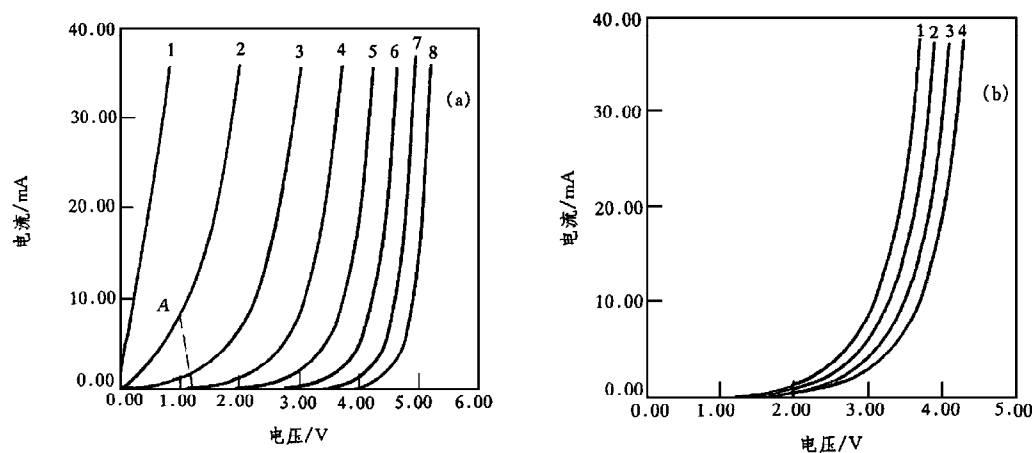


图 8 (a) 为 MIM 隧道结的 I - V 特性曲线随势垒宽度变化的计算结果 $d_1 = 2.4 \text{ nm}$, $d_{i+1} = d_i + 0.2 \text{ nm}$ ($i = 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7$). 曲线 1—8 对应的势垒宽度为 d_1 — d_8 ; (b) 为 MIM 隧道结的 I - V 特性曲线随势垒高度变化的计算结果 $P_{Al,1} = 3.25 \text{ eV}$, $P_{Al,i+1} = P_{Al,i} + 0.1 \text{ eV}$ ($i = 1, 2, 3$). 曲线 1—4 对应的势垒高度为 $P_{Al,1}$ — $P_{Al,4}$

4 讨 论

4.1 MIMTJ 的负阻现象

由图 7 所示的模型知, 图 2 和图 3 中显示的负阻现象是由于外加偏压达到某一值时, 隧穿电子激发 SPP 波, SPP 波反过来又对隧穿电子产生一定的阻挡作用. 相当于增加了电子的平均有效隧穿距离 $b(V)$. 增加量可由 SPP 在 M-I 界面 M 侧电场的穿透深度来估计. 观察到的负阻出现的偏压值并不总是在一个点, 这是由于附加电阻的影响. 由 (1) 式

知,当 Au 膜厚度为 10—15 nm, $T=300\text{ K}$ 时, $R(T)$ 约为 $33.5\ \Omega$. 对较厚的 Al 膜, $R(T)$ 在 $2.5\text{—}0.4\ \Omega$ 之间. $R_a(V)$ 在良好的电接触下约为 $10^{-1}\ \Omega$ 量级. $R_b(V)$ 现在还没有精确计算公式和测量结果,但在边角用绝缘层(如 MgF_2)保护下, $R_b(V)$ 的值将会很大. 因此当结中的隧穿电流达到一定的数值,而此时结未被击穿或很少部分击穿时, $R_b(V)$ 仍保持很大的值. 但是 $R(T)$ 和 $R_a(V)$ 上的相对压降增大,势垒上的实际压降相对减少,在外电路中表现出不同的负阻电压点. 另外,当 $R_b(V)$ 由于高电场作用而受到破坏时, $R_b(V)$ 将减少,导致泄漏电流增加,使隧穿电流比重下降或势垒消失而成为电阻型,导致负阻变小或消失,如图 4(a)中的 $I\text{--}V$ 曲线由 $a \rightarrow b \rightarrow c$ 变化. 如果实验中工艺不当可导致很大的附加电阻或结的泄漏电阻很小,此时 $I\text{--}V$ 呈准线性,没有负阻,如图 4(b)中的曲线 d 所示.

4.2 负阻与 MIMTJ 发光的联系

由图 5 可见,在 720 和 630 nm 附近有两个发射极大值,经由 SPP 波与表面随机粗糙度耦合的一级公式可知,是 SPP 的快模式起主要作用,这与文献[5]的结论一致.

负阻与结的发光之间的联系由上述讨论可以看出,它仍是以 SPP 波为纽带的,即隧穿电子激发 MIMTJ 中的 SPP 波, SPP 一方面对电子隧穿发生作用,表现为负阻;另一方面与粗糙度耦合产生光发射. 至于少数样品未见负阻现象却有较弱的发光是因为附加电阻掩盖了负阻现象. 另外,在较高偏压(大于 10 V)下结的闪烁发光机制则是电击穿引起的发光,此种结也没有负阻现象.

4.3 结构分析结果与负阻的联系

图 6 显示 O 在 Au 及 Al 中均有一定的比例. Au 中的 O 来自于表面吸附、扩散及蒸镀系统. Al 内部的 O 则主要是由于淀积 Al 膜时真空度不够高($(2\text{—}5) \times 10^{-3}\text{ Pa}$)所致. 估计得到的 Al_2O_3 层约为 3 nm, Au 层约为 12 nm. 由于测量点不够多,刻蚀速率较大,估计值是十分粗糙的. 由图 6 也可看出 Au 在 Al_2O_3 中的扩散情况,这种外电极金属在 I 层中的扩散会导致 I 层逐渐变性为欧姆型而失去负阻, Al 中较高的 O 含量在高场或一定大小的电流下也会使 Al 膜本身变性导致附加电阻增大,减少负阻.

5 结 论

以玻璃为基底的 Au- Al_2O_3 -Al 隧道发光结(MIMTJ)电流电压特性中的负阻现象是由于隧穿电子激发的 SPP 而产生隧穿平均有效距离的增加引起的. 利用本文建立的 MIMTJ 电路模型较好地说明了负阻及其变弱和消失现象. SPP 波在 MIMTJ 结构的发光和电子隧穿中起着非常重要的作用.

当然 MIMTJ 中的电子输运还涉及到许多因素,如镜像力、界面注入陷阱效应和 I 层厚度的起伏等. 更详细的研究对研制实用化的发光器件及量子干涉器件都是很有意义的.

- [1] J. Lambe, S.L. McCarthy, *Phys. Rev. Lett.*, **37**(1976), 923.
- [2] Q.Q. Shu, Z.R. Zu, J.W. Lu, *J. Appl. Phys.*, **66**(1989), 6193.
- [3] S. Ushioda, Y. Uehara, M. Takada *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(1992), L870.
- [4] Z. Szentirmay, *Prog. Quant. Electr.*, **15**(1991), 175.
- [5] 蔡益民、孙承休、俞建华, 固体电子学研究进展, **13**(1993), 307.
- [6] 俞建华、孙承休、蔡益民等, 发光学报, **16**(1995), 63.
- [7] C.X. Sun, Y.W. Zhang, Z.L. Gao, *Chinese Journal of Electronics*, **5**(1996), 44.
- [8] T. Suemasu, Y. Kohno, W. Saitoh *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**(1994), L1762.
- [9] M. Akazaw, Y. Amemiya, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**(1996), 3569.
- [10] J.R. Kirtly, T.N. Theis, J.C. Tsang, *Phys. Rev.*, **B27**(1983), 4607.
- [11] P. Dawaon, D.G. Walmsley, *Solid State Commun.*, **50**(1984), 383.
- [12] J.F. Donohue, E.Y. Wang, *J. Appl. Phys.*, **62**(1987), 1313.
- [13] B. Laks, D.L. Mills, *Phys. Rev.*, **B20**(1979), 4962.
- [14] D.L. Mills, M. Weber, B. Laks, in *Tunneling Spectroscopy*, ed. P.K. Hansma (Plenum, New York, 1982), p. 121.
- [15] G. Kovacs, in *Electromagnetic Surface Modes*, ed. A.D. Boardman (John Wiley and Sons Ltd., 1982), pp. 143—200.

ELECTRON TUNNELING AND NEGATIVE DIFFERENTIAL RESISTANCE OF MIM LIGHT-EMISSION TUNNEL JUNCTION

YU JIAN-HUA SUN CHENG-XIU WANG MAO-XIANG¹⁾ ZHANG YOU-WEN WEI TONG-LI

(Department of Electronic Engineering, Southeast University, Nanjing 210096)

1) (Department of Physics, Southeast University, Nanjing 210096)

(Received 2 June 1997; revised manuscript received 28 June 1997)

ABSTRACT

We have observed that the apparent negative differential resistance (NDR) comes out in I - V characteristic curves of metal-insulator-metal (MIM) thin film tunnel junction when light-emission from this structure occurs in the experiments. The mechanism of this NDR is that the surface plasmon polariton (SPP), which plays a role of intermediate in the process of light-emission, creates the impeding effect upon tunneling electrons. We have also built the circuit simulation of electron-transfer, computed the numerical solution of I - V characteristic curve, and revealed the key action of SPP on the NDR in I - V characteristic curve and the light-emission from MIM tunnel junction.

PACC: 7340R