

楔形金薄膜系统中的反常跳跃电导和隧道效应^{*}

陶向明 夏阿根 叶高翔

(浙江大学物理系, 杭州 310027)

(2003 年 2 月 19 日收到 2003 年 3 月 17 日收到修改稿)

采用真空蒸镀方法, 利用液体衬底在沉积过程中的线性扩散过程, 在玻璃表面制备出斜率仅为 10^{-5} 的楔形金薄膜逾渗系统, 并用四引线方法测量了从该薄膜系统中得到的均匀无序金薄膜的导电特性. 实验结果表明和通常的平整薄膜逾渗系统相比, 该薄膜系统呈现更为强烈的跳跃电导和隧道效应.

关键词: 带状薄膜, 跳跃电导, 隧道效应

PACC: 7360, 7360D

1. 引 言

微观结构在薄膜物理系统中起着极为重要的作用. 大量物理事实表明, 薄膜的微观结构发生变化, 其物理特性也将发生相应的变化^[1]. 如利用粗糙衬底制备的具有独特表面形貌的双层薄膜系统, 其电子输运特性就大大有别于其他平整薄膜体系. 当薄膜很薄时, 只要薄膜的表面或薄膜和衬底间的界面的平整度发生变化, 那怕它是极其微小的, 都将使薄膜的电子输运特性发生很大的改变, 因为这种改变将诱导不同于平整薄膜的电子散射^[2,3]. 此外, 薄膜的生长模式也将对其电子输运特性产生很大的影响^[4].

逾渗系统的 $1/f$ 噪声功率谱不具有普适性, 其临界指数与系统的微观结构密切相关. 因此, 研究 $1/f$ 噪声功率谱是了解逾渗系统微观结构的有效途径^[5-7].

根据无规电阻网络模型 (RRN)^[6,7] 模型, 系统的功率谱密度为

$$S_R \equiv \langle \delta R^2 \rangle / R^2 = B / R_0^2, \quad (1)$$

其中 R_0 为零电流电阻, B 为归一化的三次谐波系数.

Rammal 等已经证明^[8,9], 在 S_R 和 R_0 之间存在

$$S_R \propto R^w, \quad (2)$$

其中 w 为功率谱临界指数, 是表征逾渗系统特性的基本参量, 可直接反映出系统的微观结构、传导机理等重要物理参量.

由 (1) 和 (2) 式可得

$$B \propto R_0^{w+2}, \quad (3)$$

因此, 只要在实验上测得三次谐波系数 B 和样品的零电流电阻 R_0 , 就可求得指数 w , 从而对系统的微观结构作出准确的分析.

根据通常的 RRN 模型, 当流经逾渗系统的电流的频率趋于零时, 即三次谐波系数 $B = B_0$ 时, 样品的电阻

$$R = R_0 + B_0 I^2, \quad (4)$$

其中 R_0 为零电流下系统的总电阻^[6,7].

Dubson 等^[10,11] 已从实验上证实: 1) B 随 ω 的变化而略有变化, 当 $\omega \rightarrow 0$ 时, B 趋向于一个和 R_0 有关的定值 B_0 ; 2) 由 B 求得的临界指数与 ω 无关. 因此只要在直流情况下测得 $R(I)$ 关系, 就可利用 (4) 式求得 B_0 的值. 且由于 w 与 ω 无关, 因此从直流情况下得到的 B 值所对应的指数应该和用低频方法测得的相应值一致^[10,11], 从而获得系统的微观结构、传导机理等重要信息.

此外根据 RRN 模型^[6,7], 当逾渗薄膜的覆盖率 $p > p_c$ 时, 逾渗系统的临界电流 I_c (系统的 $R-I$ 曲线出现第一个不连续跳变点) 满足^[6,7]

$$I_c \propto R_0^{-\gamma}. \quad (5)$$

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 40204018 和 10174063) 资助的课题.

无序系统中的不连续跳变点的临界行为,一般无普适性可言^[12-14]. 实验发现,粗糙薄膜系统的临界指数 γ 完全不同于沉积在平整衬底上的薄膜系统^[12-14].

本文采用真空蒸镀方法,利用液体衬底在沉积过程中的流动和扩散,形成了沉积在玻璃表面的楔形金薄膜,并研究了从楔型薄膜中雕刻得到的均匀无序带状薄膜的导电特性. 实验结果表明 在此薄膜系统中,其跳跃电导和隧道效应非常强烈.

2. 实验方法

样品用真空蒸发方法在室温下制备而成. 先将一小滴纯净的扩散泵硅油(DOW CORNING 705,室温下蒸气压小于 10^{-8} Pa)置于载玻片上,将其放入真空室中,固定在蒸发源的上方. 为了确保在沉积过程中液体衬底不会被蒸发源明显加热,衬底与蒸发源之间应保持较大的距离,本实验中此距离固定为 20 cm. 当真空室中气压降为 $p = 5 \times 10^{-4}$ Pa 以下时,开始蒸发. 蒸发材料 Au 的纯度为 99.999 %. 薄膜的名义厚度 d 及其沉积速率 f 由石英晶振测厚仪(UL-VAC CRTM-8000)控制,本文中样品的沉积速率均为 0.01 nm/s. 样品制好后,将其从真空室中取出,用丙酮将玻璃表面的硅油和硅油表面的 Au 膜一并冲洗干净,即得到楔形金膜. 样品的结构如图 1 所示. 油滴的扩散现象是由于在沉积过程中受钨丝热辐射及金原子轰击而引起液体衬底局域温度的变化而产生的. 且在 $r_1 < r < r_2$ 之间的区域,薄膜厚度几乎呈线性增长. 楔形金薄膜的斜率 $\theta = d/(r_2 - r_1)$. 如果我们将楔形薄膜样品沿油滴的圆周雕刻成带状,并保证带状薄膜两端的高度差的相对值 $\Delta d'/d'$ 不大于 5%,如图 1(b)所示,则带状薄膜的厚度 $d' \approx [d/(r_2 - r_1)] \times (r - r_1)$. 根据不同的圆周半径即可得到不同厚度的带状薄膜样品. 由于带状薄膜的宽度 b 很窄,该带状薄膜可视为均匀无序平整薄膜. 实验中使用的带状薄膜样品从斜率为 $\theta = 10^{-5}$ rad, $d = 20.0$ nm, $\Delta r = 10.0$ nm 的楔形薄膜中雕刻得到其宽度 $b \approx 0.5$ mm. 用四引线法测量薄膜的 I - R 特性,测量均在真空中进行,真空室气压小于 5×10^{-4} Pa; 测量时,样品的温度与室温相同. 实验中所使用的样品的尺寸均为 $0.5\text{mm} \times 1.5$ mm.

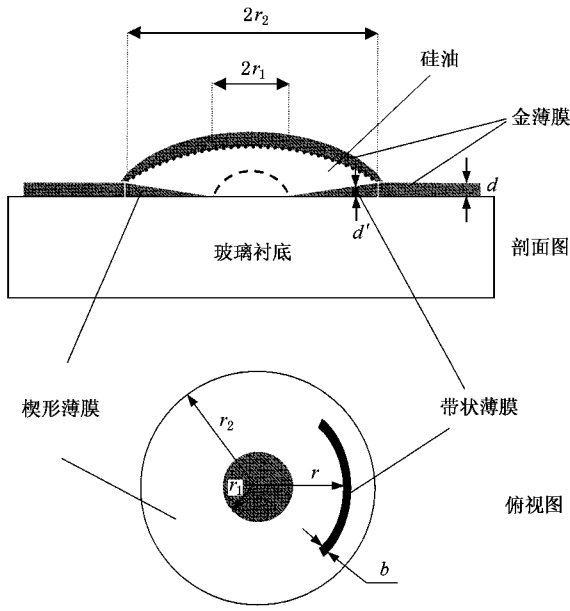


图 1 楔形 Au 薄膜的结构示意图

3. 结果与讨论

3.1. 非线性 I - R 特性

图 2 为楔形金薄膜的扫描电子显微镜 (SEM) 照片. 从图中可以看出,楔形金薄膜呈现一特征微结构. 在这个尺寸范围内,没有明显的结晶结构. 我们认为这种特征微结构主要是由于金原子在沉积过程中受到硅油的快速淬火而造成的,因为在相同尺寸范围内,没有受硅油淬火的金薄膜形貌要光滑得多.

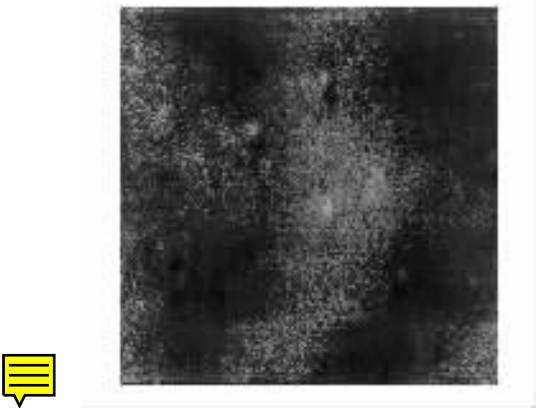


图 2 楔形金薄膜的 SEM 照片 ($2.0\mu\text{m} \times 2.0\mu\text{m}$)

图 3 为这样两个均匀无序薄膜样品的 I - R 曲线. 从图 3 中可看出,当电流很小时 (0—6 mA),电阻 R 随电流 I 的增加而缓慢的增加, dR/dI 为正值,且和 (4) 式吻合得很好. 随着电流的增大, dR/dI 趋于零,此后随着电流的进一步增大,电阻迅速减小,即

dR/dI 变为负值. 这种 I - R 特性完全不同于其他薄膜系统^[6-11]. 此外, 从图 3 还可看出, R 和 dR/dI 的值第一次和第二次测量结果均无变化, 且大气中和真空中的测量值也极其吻合, 即图 3 中的 I - R 特性是一种可逆行为, 这表明在测量过程中薄膜的微结构没有受到破坏.

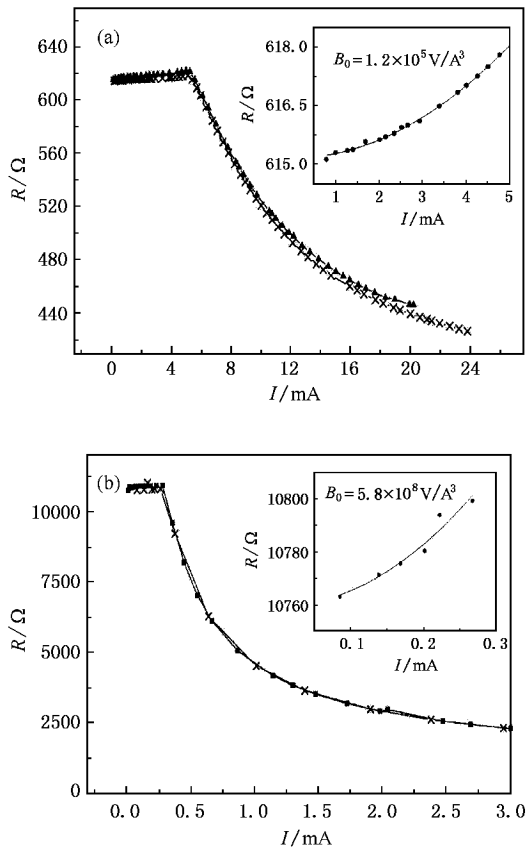


图 3 沉积在玻璃上 Au 带状薄膜的非线性 $R(I)$ 特性. 插图 1 为当测量电流 $I < I_m$ 时, 带状 Au 薄膜的 I - R 特性 (插图 1 中圆点是实验数据, 实线是公式 $R = R_0 + BI^2$ 的拟合结果. 图中 $\blacktriangle$ 为第一次测量; $\times$ 为第二次测量) (a) $d' = 9.0 \text{ nm} \pm 1.0 \text{ nm}$, $B_0 = 1.2 \times 10^5 \text{ V/A}^3$, (b) $d' = 4.0 \text{ nm} \pm 1.0 \text{ nm}$, $B_0 = 5.8 \times 10^8 \text{ V/A}^3$

我们认为图 3 所示的非线性 I - R 特性主要是由该新型楔形薄膜的特征微结构引起的, 因为其他类型的薄膜并没有呈现这种特性. 在楔形薄膜的沉积过程中, 当沉积在玻璃表面的 Au 原子被硅油覆盖时, Au 原子的热运动能量立即消失, 且 Au 原子的扩散会受到油分子的阻挡, 这样沉积在玻璃上的 Au 原子在还没有运动到能量最稳定处就停止了. 这个过程称之为快速淬火过程. 硅油的快速淬火作用使得楔形 Au 薄膜中包含了丰富的缺陷, 并形成了一种特征逾渗结构. 楔形薄膜中排列杂乱的 Au 原子

团簇和空气介质也组成了类似金属-绝缘体-金属 (MIM) 的隧道结和桥. 当测量电流很小时, 局域温度的升高不足以激发局域的跳跃电导和隧道效应, 故而此时样品电阻的改变主要是由焦耳热效应引起的. 而当电流增大到一定值时, 电流通过微弱的隧道结时, 局域温度的升高就足以激发局部的跳跃电导和隧道效应, 这两种效应的存在大大减小了隧道结内的电流密度, 从而当电流增大时总的电阻反而减小了, 即 $dR/dI < 0$. 电流越大, 电阻减少得越多. 在图 3 中, 当电流增大到一定值时, 电阻 R 随电流 I 增大而急剧减小, 这说明在该薄膜中单位面积中存在极其丰富的缺陷和杂质. 同时也说明, 在薄膜中, 这两种效应 (焦耳热效应、隧道效应) 始终是同时存在的, 最终表现的物理性质是两种机理互相竞争的结果.

同时注意到, 图 3(a) 中的 I_m (I_m 为电阻最大值所对应的电流强度) 值比 (b) 中的大, 实验表明随着带状薄膜厚度的增加, I_m 逐渐增加, 当带状薄膜的厚度接近玻璃表面未被淬火的 Au 膜厚度时, 即 $d' \rightarrow d$ 时, $dR/dI < 0$ 的现象消失, 并呈现出符合 (4) 式的非线性 I - R 曲线 (见图 4). 事实上, 均匀无序薄膜厚度的增加意味着较厚的薄膜在没有被油所覆盖前, 有更多的 Au 原子到达衬底, 即 Au 原子在玻璃上的扩散时间增长, 真正的淬火过程减小, 这样 Au 原子就有足够的时间和能量运动到最稳定处, 形成有规则的结构. 这就是说, 带状薄膜的厚度越接近玻璃表面未被淬火的 Au 膜厚度, 受油滴的快速淬火的影响就越小. 因此接近楔形薄膜厚端边缘的均匀无序薄膜类似于沉积在玻璃上的平整 Au 膜, 其 $R(I)$ 关系满足 (4) 式.

3.2. 直流三次谐波系数与 $1/f$ 噪声功率谱指数

通过对十多个带状金薄膜样品的 I - R 特性的测量 (样品的电阻从 $20-10000 \Omega$), 发现在这一电阻范围内, 当通过样品的电流较小时 ($I < I_m$), 样品的 I - R 特性满足 (4) 式, 如图 3 中插图所示. 用 (4) 式拟合图中的实验点 ($I < I_m$), 求得图 3(a) 样品的 $B = 1.20 \times 10^5 (\text{VA}^{-3})$. 通过这样的方法, 求得了这十多个带状 Au 薄膜样品的 B 值, 结果如图 5 所示. 由图中拟合直线的斜率可求得该系统的噪声功率谱指数 $w = 0.22 \pm 0.01$, 此值比平整薄膜中的相应值以及诸多二维系统的理论值要低很多^[15-17], 这一情况与分形基底上的金属薄膜相类似. 我们认为, 这主要是由

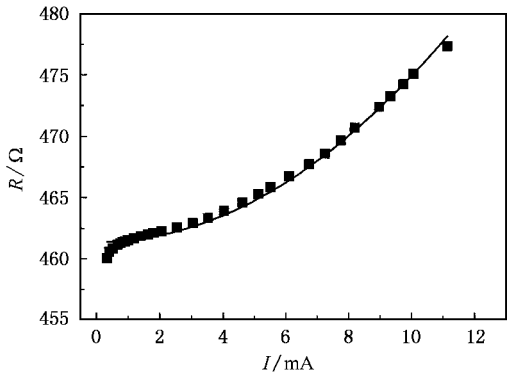


图4 接近楔形薄膜厚端边缘的均匀无序 Au 薄膜的 $R(I)$ 特性 实线是公式 $R = R_0 + BI^2$ 的拟合结果 ($B_0 = 1.35 \times 10^5 \text{ V/A}^3$)

于在实验过程中采用了比较特殊的沉积方法,由于油滴的快速淬火作用,薄膜中势必存在极为丰富的多种缺陷,此时,非平整薄膜是由结构各异的 MIM 隧道结和桥所组成的一个网络系统. 结和桥对应着 RRN 模型中的小电阻 r_a . 当较大的电流流经某一 r_a 时,其局域温度的升高足以激发 r_a 周围的跳跃电导的形成. 这一效应将减小 r_a 中的电流密度,从而减小电阻随电流增加的速率. 且电流越大,电阻下降的幅度也越大,从而降低了 B 值,进而导致指数 w 的变小. 因此,较低的 w 值主要也是由于此类薄膜系统中存在强烈的跳跃电导、隧道电流引起的. 换言之,较小的 w 值意味着在非平整薄膜逾渗系统中存在着比平整系统更强的跳跃电导效应,这与一般平整薄膜的情况也大相径庭^[6].

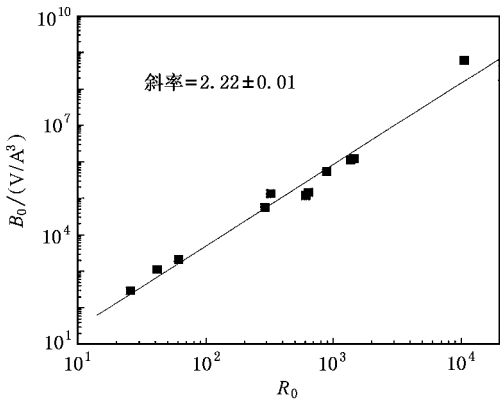


图5 带状 Au 薄膜系统的 $B-R_0$ 标度关系 由直线斜率 (≈ 2.22) 给出指数 $w = 0.22 \pm 0.01$

3.3. 临界电流 I_m 与直流三次谐波系数

由于楔形膜中的跳跃电导和隧道效应的影响,因此很难由 $R-I$ 曲线来确定此类样品的临界电流 I_c 与 R_0 的关系. 因为早在 I_c 出现以前, R 已由于强烈的跳跃电导而剧烈下降,从而很难从 $R-I$ 的曲线中观察到 dR/dI 的不连续点. 实验发现:对应于电阻极大值的电流 I_m 却和 R_0 之间存在着临界指数关系

$$I_m \propto R_0^{-\alpha} \tag{6}$$

图6 给出了带状 Au 薄膜的 I_m-B 的关系图. 由图中拟合直线的斜率求得此类系统的 $\alpha = 0.91 \pm 0.01$. 这一指数与指数 γ 的值大相径庭,平整玻璃上的 Au 薄膜系统实验值 ($\gamma = 0.41$)^[11].

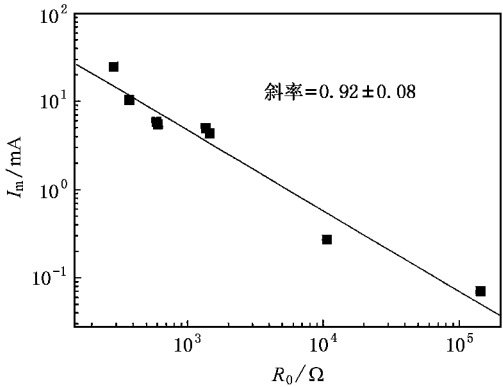


图6 带状 Au 薄膜系统的 I_m-R_0 标度关系由直线斜率 (≈ 0.91) 给出指数 $\alpha = 0.91 \pm 0.01$

显然, I_c 与 I_m 没有必然的联系. 事实上 I_m 为电阻极大值峰所对应的电流,当 $I = I_m$ 时,由焦耳热效应而引起的薄膜电阻的增加刚好等于由跳跃电导和隧道效应引起的薄膜电阻的减小,即在 I_m 处,这两种效应恰好相消. I_c 则为系统中最弱结被熔断时所对应的系统的总电流. 我们相信 I_m 的大小与薄膜的微结构密切相关,因此,指数 α 也应与系统的微观结构有关,不具有普适性.

4. 结 论

本文研究了沉积在玻璃衬底上的楔形金薄膜的物理特性,所得主要结论如下:

1. 当电流很小时,均匀无序薄膜的电阻 R 均随电流 I 的增大而缓慢增加,其 $I-R$ 曲线与一般楔形薄膜的 $R(I)$ 关系相一致,符合无规网络模型的预言

结果. 而当电流比较大时, 样品的电阻随电流的增大反而减小, 这种奇异的 I - R 特性表明该系统中存在强烈的跳跃电导和隧道效应. 分析认为, 这种现象是由于受到硅油的淬火作用, 从而在此类楔形薄膜中形成了特征逾渗结构而造成的. 上述 I - R 曲线的形成是薄膜中隧道效应和焦耳热效应相互竞争的结果.

2. 用直流测量方法测量此类金薄膜逾渗系统的噪声功率谱指数的结果表明: 该系统具有较小的

功率谱临界指数 $w = 0.22 \pm 0.01$. 说明该系统中存在较明显的跳跃电导效应, 与结论 1. 一致. 这与平整薄膜系统相应的结果相比相差甚远.

3. 楔形金薄膜具有独特的 I - R 关系. 这种具有电阻极峰值的 I - R 关系可由随空间坐标变化的跳跃电导(LDHC)效应来解释. 而且 I_m 和 R_0 之间满足临界指数关系 $I_m \propto R_0^{-\alpha}$, 其中 $\alpha = 0.91 \pm 0.01$, 实验发现这一临界指数不具有普适性.

- [1] Haus J W and Kehr K W 1987 *Phys. Rep.* **150** 263
- [2] Palasantzas G and Barnas J 1997 *Phys. Rev. B* **56** 7726
- [3] Barnas J and Palasantzas G 1997 *J. Appl. Phys.* **82** 3950
- [4] Palasantzas G, Zhao Y P, Wang G C, Lu T M, Barnas J and Hosson J Th M De 2000 *Phys. Rev. B* **61** 11109
Palasantzas G and Hosson J Th M De 2001 *Phys. Rev. B* **63** 125404
- [5] Du L and Zhuang Y Q 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2836 (in Chinese)
[杜 磊、庄奕琪 2002 物理学报 **51** 2836]
- [6] Ye G X, Xu Y Q, Wang J S, Jiao Z K and Zhang Q R 1994 *Phys. Rev. B* **49** 3020
Ye G X, Wang J S, Xu Y Q, Jiao Z K and Zhang Q R 1994 *Phys. Rev. B* **50** 13163
- [7] Yagil Y, Deutscher G and Bergman D J 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 1423
- [8] Rammal R, Tannous C, Breton P and Tremblay A-M S 1985 *Phys. Rev. Lett.* **54** 1718
- [9] Rammal R, Tannous C, Breton P and Tremblay A-M S 1985 *Phys. Rev. A* **31** 2662
- [10] Dubson M A, Hui Y C, Weissman M B and Garland J C 1989 *Phys. Rev. B* **39** 6807
- [11] Yagil Y and Deutscher G 1992 *Phys. Rev. B* **46** 16115
- [12] Feng S and Sen P N 1984 *Phys. Rev. Lett.* **52** 216
- [13] Feng S, Halperin B I and Sen P N 1987 *Phys. Rev. B* **35** 197
- [14] Gefen Y, Shih W H, Laibowitz R B and Viggiano J M 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 3097
- [15] Arcangelis L de, Redner S and Hermann H J 1985 *J. Phys. (Paris) Lett.* **46** 585
- [16] Lobb C J, Hui P M and Stroud D 1987 *Phys. Rev. B* **36** 1956
- [17] Garfunkel G A and Weissman M B 1986 *Phys. Rev. Lett.* **55** 269

Anomalous hopping and tunneling effects on the conductivity of a wedge-shaped Au film system^{*}

Tao Xiang-Ming Xia A-Gen Ye Gao-Xiang

(Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

(Received 19 February 2003; revised manuscript received 17 March 2003)

Abstract

A gold thin film percolation system, deposited on glass surfaces by the vapor deposition method, has been fabricated. By using the expansive and movable properties of silicone oil drop, a characteristic wedge-shaped film system with a slope of $\sim 10^{-5}$ naturally forms during deposition. The electrical conductivity of the band-like gold film, *i. e.*, the uniform part with a fixed thickness, is measured with the four-probe method. It is found that hopping and tunneling effects of the films are stronger than those of the other films.

Keywords: band-like films, hopping conductivity, tunneling effect

PACC: 7360, 7360D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10204018 and 10174063).