

## ЭФФЕКТИВНАЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ СИСТЕМЫ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНООСТРОВОВ В СИЛЬНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЯХ

А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин

*Работа связана с исследованием влияния электрического поля на величину и знак низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости островковых металлических пленок. Показано, что диэлектрическая проницаемость в островковых металлических пленках может иметь как положительную, так и отрицательную величину, причем в некоторых образцах при изменении электрического поля, приложенного к образцу, диэлектрическая проницаемость изменяла знак. Рассмотрены механизмы поляризации пленок.*

**Ключевые слова:** нанострoва, металлические пленки, диэлектрический характер проводимости, эффективная диэлектрическая проницаемость.

Островковые и гранулированные металлические пленки обладают рядом уникальных свойств. В частности, в таких пленках наблюдается диэлектрический характер проводимости, т.е. было обнаружено, что электрическая проводимость пленок возрастает при увеличении температуры. Такое поведение проводимости в литературе широко обсуждается, например, в работах [1–8]. В то же время в работе [9] обнаружено, что островковые металлические пленки обладают аномально высокой величиной низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости ( $\epsilon = 10^7 - 10^8$ ). Причем эффективная диэлектрическая проницаемость островковой металлической пленки являлась положительной величиной. В связи с этим возникает вопрос о причине возникновения в нанострoвковых металлических пленках положительной низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости, поскольку в объемных металлах низкочастотная диэлектрическая проницаемость определяется проводимостью металла и является отрица-

---

Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: boltsev@sci.lebedev.ru

тельной величиной [10]. Следует подчеркнуть, что проводимость островковых металлических пленок увеличивается под воздействием внешнего электрического поля (эффект аномальной проводимости) [7]. Поскольку диэлектрическая проницаемость проводящих систем в значительной степени определяется их проводимостью, то и диэлектрическая проницаемость островковых пленок с изменением электрического поля должна изменяться. При этом, при увеличении проводимости (с ростом электрического поля), положительная часть эффективной диэлектрической проницаемости металлических пленок должна уменьшаться, а отрицательная возрастать по абсолютной величине. Целью работы являлось изучение диэлектрических свойств островковых металлических пленок различной толщины от электрического поля.

*Экспериментальная часть.* В работе методом атомно-силовой микроскопии (AFM) проведены исследования топографии поверхности полученных структур, измерены зависимости активной и реактивной дифференциальной проводимости систем металлических наноструктур из FeNi и Ti от температуры и величины электрического поля. Диэлектрическая проницаемость пленок определялась из анализа реактивной проводимости пленок. Кроме того были проведены измерения распределения приложенного к структурам электрического напряжения вдоль исследуемого образца.

Тонкие пленки FeNi, Ti выращивались методом ВЧ-распыления в аргоне на диэлектрической подложке. Подробности метода получения пленок приведены в [6]. Для измерения использовались металлические пленки различной толщины – островковая пленка Ti с эффективной толщиной  $d = 7 \text{ \AA}$  (№ 1); островковые пленки FeNi с эффективной толщиной  $d = 7.5 \text{ \AA}$  (№ 2) и  $d = 8 \text{ \AA}$  (№ 3).

Каждая металлическая структура закрывалась сверху слоем  $\text{Al}_2\text{O}_3$  с эффективной толщиной  $d = 20 \text{ \AA}$ . Эффективная толщина металлических и диэлектрических слоев определялась по времени напыления пленок (скорости осаждения металлических пленок и  $\text{Al}_2\text{O}_3$  определялись заранее). Из структур изготавливались прямоугольные образцы шириной 1.5–3 мм и длиной 4–5 мм. Омические контакты создавались путем нанесения узких полосок индия на поверхность металлической островковой пленки вдоль противоположных сторон прямоугольника.

При изучении зависимостей активной и реактивной дифференциальной проводимости структур на основе островковых металлических пленок к образцу прикладывалось напряжение  $U = U_0 + U_1 \cos(\omega t)$ . Амплитуда переменного напряжения равнялась  $U_1 = 10^{-2} \text{ V}$ . Измерение активной и реактивной дифференциальной проводимости осуществлялось на частоте  $f = 12 \text{ кГц}$ . Постоянное электрическое напряжение  $U_0$  из-

менялось от  $U_0 = 0$  V до  $U_0 \approx 15$  V (электрическое поле в образцах изменялось от  $F = 0$  V/cm до  $F \approx 60$  V/cm). Погрешность измерения проводимости островковых пленок составляла  $\sim 5\%$ . Реактивная составляющая проводимости пленок определялась из измерения фазового сдвига тока относительно фазы переменного напряжения, приложенного к образцу. Для измерения распределения приложенного напряжения вдоль образца к структуре прикладывалось внешнее постоянное напряжение  $U_0 = 4$  V и измерялся потенциал вдоль образца через  $\Delta L = 0.25$  мм.

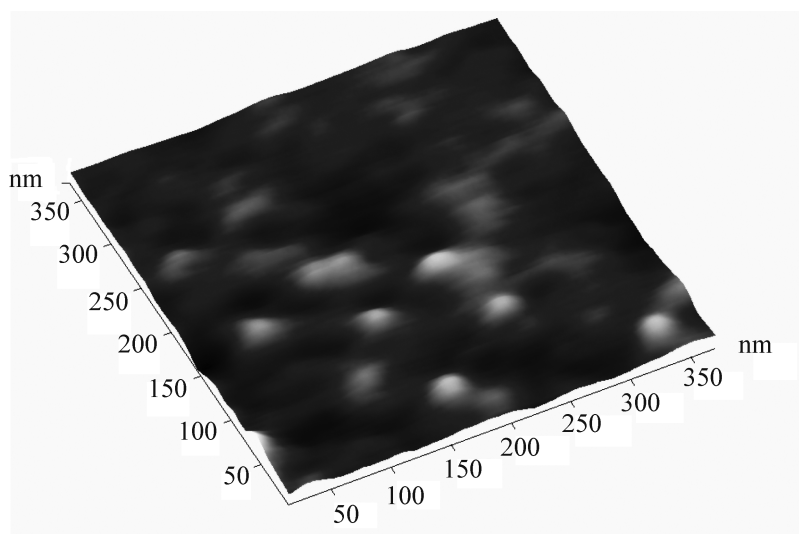


Рис. 1: AFM-изображение поверхности пленки  $FeNi$  толщиной  $d = 7.5$  Å, нанесенной на диэлектрическую подложку.

На рис. 1 представлено типичное изображение топографии поверхности пленки  $FeNi$  толщиной  $d = 7.5$  Å полученное с помощью AFM. Видно, что пленка имеет островковый характер. Поскольку AFM позволяет получать изображение объектов размером не менее  $100$  Å, то на представленном изображении видны лишь большие острова размером  $\sim 200$ – $500$  Å, отстоящие друг от друга на расстоянии  $\sim 100$ – $300$  Å. Более мелкие островки не видны. По данным рентгеновской рефлектометрии и флуоресцентного анализа, полученным ранее в [13, 14], пленки с такой эффективной толщиной преимущественно состоят из малых по размерам плоских наностровов высотой  $\sim 15$ – $20$  Å, которые отстоят друг от друга в среднем на расстоянии около  $20$  Å.

Измеренные зависимости приведенной к единице площади емкости систем металлических наностровов из  $FeNi$  и  $Ti$  от электрического поля представлены на рис. 2. При этом величина емкости диэлектрической подложки без пленки равня-

лась  $C_S \approx 5 \cdot 10^{-14}$  F и оставалась постоянной во всей области электрических полей, приложенных к образцу. Измерения зависимости емкости систем металлических наностровов из FeNi и Ti от электрического поля проводились на частоте электрического поля  $f = 12$  кГц.

Зависимости удельной поверхностной дифференциальной проводимости пленок от температуры и частоты электрического поля представлены на рис. 3 и рис. 4. Измерения зависимостей удельной поверхностной дифференциальной проводимости пленок от температуры осуществлялись на частоте электрического поля  $f = 12$  кГц. Как видно на рис. 3, величина дифференциальной проводимости пленок с ростом температуры увеличивается, т.е. в этих металлических пленках наблюдается диэлектрический характер проводимости. Диэлектрический характер проводимости в островковых металлических пленках указывает на туннельный перенос носителей заряда между островками [1, 3, 4]. Представленные на рис. 4 зависимости удельной проводимости пленок от частоты электрического поля ( $f$ ), позволили установить, что величина активной проводимости пленки остается постоянной во всем измеряемом диапазоне частот (до  $f_{\max} = 100$  кГц). Следовательно, процессы переноса носителей заряда в данных структурах определяются характерными временами  $\tau_r < 1/f_{\max} = 10^{-5}$  с. Учитывая, что  $\tau_r \ll 1/f$  ( $f = 12$  кГц) и длина образца  $L \ll \lambda = c/f$  ( $\lambda$  – длина волны электрического поля,  $c$  – скорость света), а реактивная проводимость образцов по абсолютной величине много меньше их активной проводимости ( $\omega C \ll \sigma$ ,  $C$  – емкость образца, приведенная к единице площади), то электрическое поле, которое удовлетворяет перечисленным выше условиям, является квазистационарным [11]. Условие квазистационарности электрического поля предполагает, что электрическое поле, приложенное к образцу, сосредоточено внутри образца, а вне пределов образца величина электрического поля много меньше электрического поля внутри образца. В случае квазистационарности электрического поля исследуемые образцы, с точки зрения оценки величины эффективной диэлектрической проницаемости пленки, можно рассматривать как плоские конденсаторы ( $C = \epsilon \epsilon_0/d$ , где  $\epsilon$  – эффективная диэлектрическая проницаемость структуры,  $\epsilon_0$  – электрическая постоянная вакуума,  $d \approx 30$  Å – толщина пленки с учетом толщины верхнего диэлектрического слоя).

Вычисленные из выражения  $C = \epsilon \epsilon_0/d$  зависимости низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости островковых металлических пленок от величины электрического поля представлены на рис. 5. Измерения позволили установить, что диэлектрическая проницаемость в островковых металлических пленках может иметь как

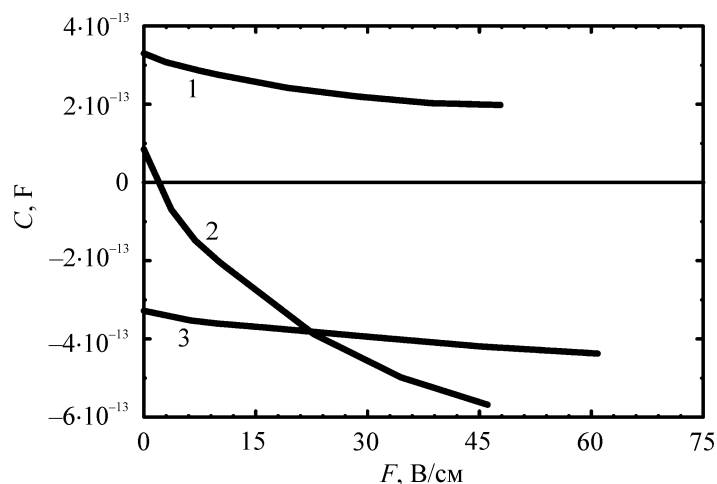


Рис. 2: Зависимости величины емкости металлических nanoостровковых пленок от электрического поля, измеренные при температуре  $T = 300$  К (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7$  Å; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5$  Å; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8$  Å).

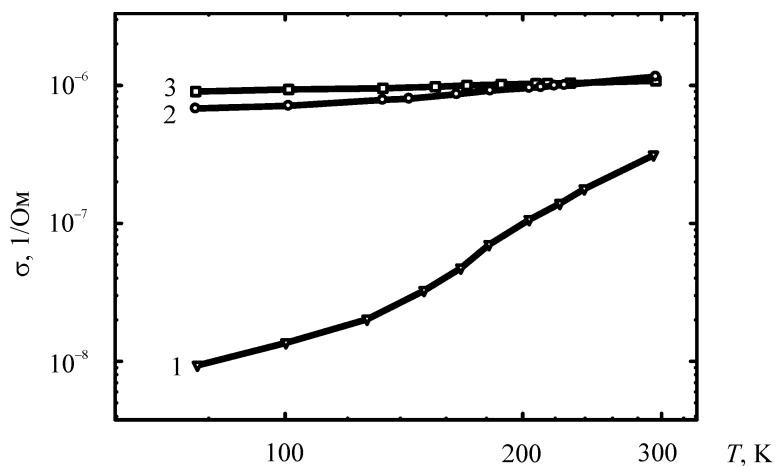


Рис. 3: Зависимости удельной поверхностной дифференциальной проводимости пленок от температуры, измеренные на частоте электрического поля  $f = 12$  кГц (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7$  Å; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5$  Å; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8$  Å).

положительную, так и отрицательную величину, причем в образце № 2 при изменении величины электрического поля диэлектрическая проницаемость изменяла знак. С ростом электрического поля положительная эффективная диэлектрическая проница-

емость металлических пленок уменьшается, а отрицательная возрастает по абсолютной величине. Следует подчеркнуть, что величина низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости в различных наноструктурах изменялась от  $\epsilon \approx 4 \cdot 10^7$  до  $\epsilon \approx -6 \cdot 10^7$ .

Для выяснения природы диэлектрических свойств металлических островковых структур были проведены измерения зависимостей относительной проводимости металлических наноструктурных пленок от электрического поля и распределения приложенного напряжения вдоль образца.

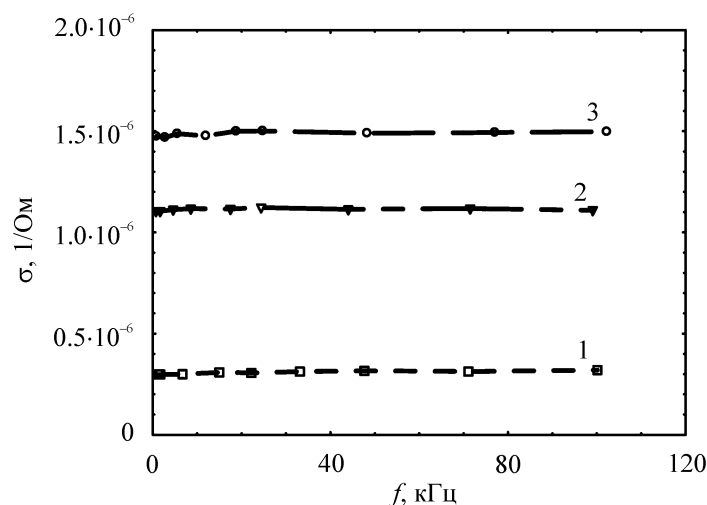


Рис. 4: Зависимости удельной поверхностной дифференциальной проводимости пленок от частоты электрического поля (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7 \text{ \AA}$ ; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5 \text{ \AA}$ ; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8 \text{ \AA}$ ).

Зависимости приведенной дифференциальной проводимости ( $\sigma_E/\sigma_0$ ) металлических пленок от электрического поля ( $F$ ) представлены на рис. 6, где  $\sigma_E$  – дифференциальная проводимость пленки, приведенная к единице площади при  $F \neq 0$ ;  $\sigma_0$  – дифференциальная проводимость пленки, приведенная к единице площади при  $F = 0$  (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7 \text{ \AA}$ ; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5 \text{ \AA}$ ; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8 \text{ \AA}$ ). Измерения были выполнены при температуре  $T = 300 \text{ К}$ . На рис. 6 видно, что с увеличением электрического поля проводимость пленки увеличивается. С другой стороны, на характер изменения проводимости от электрического поля практически не влияет материал металлической пленки (зависимости 1–3).

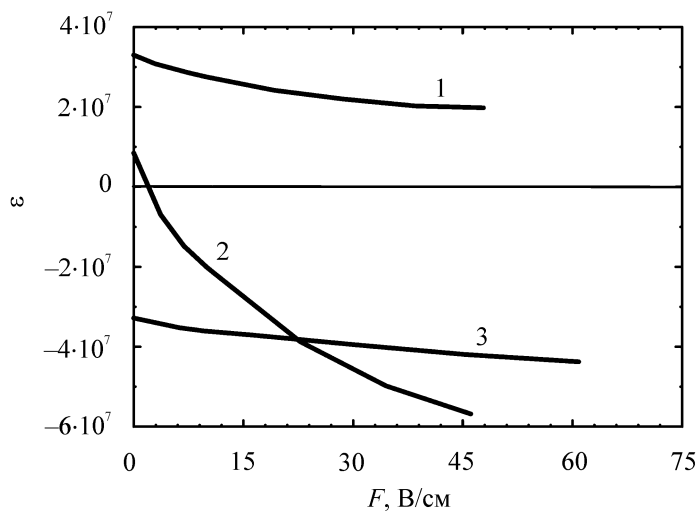


Рис. 5: Зависимости низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости островковых металлических пленок от электрического поля (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7 \text{ \AA}$ ; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5 \text{ \AA}$ ; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8 \text{ \AA}$ ).

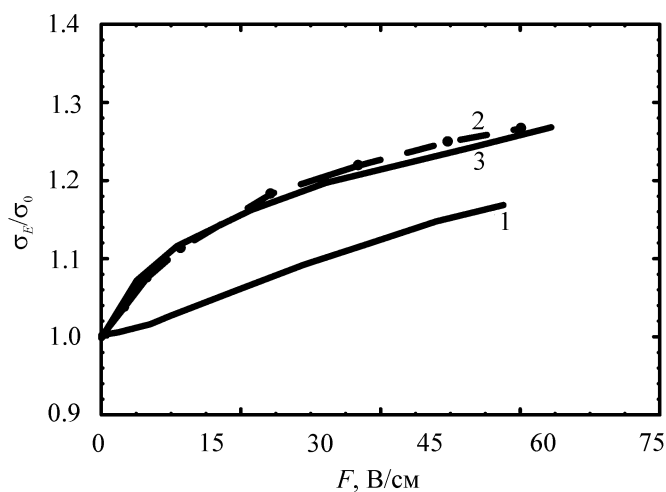


Рис. 6: Зависимость относительной проводимости металлических нанострочковковых пленок от электрического поля (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7 \text{ \AA}$ ; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5 \text{ \AA}$ ; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8 \text{ \AA}$ ).

На рис. 7 представлены зависимости распределения постоянного напряжения вдоль образца. Измерения зависимостей распределения постоянного напряжения вдоль образца позволили получить дополнительную информацию о свойствах измеряемых пленок.

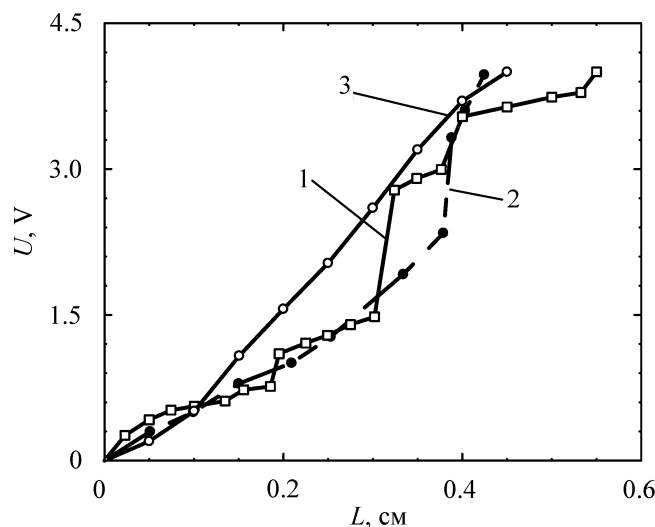


Рис. 7: Зависимости распределения постоянного напряжения, приложенного к структуре, вдоль образца (1 – пленка  $Ti$ ,  $d = 7 \text{ \AA}$ ; 2 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 7.5 \text{ \AA}$ ; 3 – пленка  $FeNi$ ,  $d = 8 \text{ \AA}$ ).

Так в образце № 3, где диэлектрическая проницаемость с изменением величины электрического поля остается отрицательной, распределение потенциала вдоль образца имеет сглаженный характер. В этой структуре, вероятно, может существовать бесконечный кластер. В этом случае процесс переноса носителей заряда под действием электрического поля обусловлен как движением носителей заряда вдоль бесконечного кластера, так и туннелированием носителей заряда между nanoостровами. В структурах № 1 и № 2, в которых при  $F = 0$  наблюдается положительная диэлектрическая проницаемость, распределение потенциала вдоль образца имеет ступенчатый характер. Очевидно, перенос носителей заряда в структурах № 1 и № 2 обусловлен либо туннелированием носителей заряда между nanoостровами, либо между конечными кластерами, если они образуются в пленках.

*Обсуждение результатов.* В результате проведенных измерений установлено, что исследуемые металлические пленки имеют островковый характер (рис. 1). Величина дифференциальной проводимости пленок с ростом температуры увеличивается, т.е. в этих металлических пленках наблюдается диэлектрический характер проводимости. Диэлектрический характер проводимости в островковых металлических пленках указывает на туннельный перенос носителей заряда между островками [1, 3, 4].



Установлено, что диэлектрическая проницаемость в островковых металлических пленках может иметь как положительную, так и отрицательную величину, причем в образце № 2 (рис. 5) диэлектрическая проницаемость изменяла знак при изменении величины электрического поля. С ростом электрического поля положительная эффективная диэлектрическая проницаемость металлических пленок уменьшается, а отрицательная возрастет по абсолютной величине. Следует подчеркнуть, что величина низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости в различных наноструктурах изменялась от  $\epsilon \approx 4 \cdot 10^7$  до  $\epsilon \approx -6 \cdot 10^7$ .

Рассмотрим процессы, которые могут влиять на величину и знак эффективной диэлектрической проницаемости в островковых металлических пленках на низких частотах электрического поля. Можно выделить два процесса.

Первый связан с инерционными процессами движения электронов в проводящей среде под действием электрического поля. Он дает отрицательный вклад в величину диэлектрической проницаемости пленки [10]. При приложении переменного электрического поля, наряду с эффектами проводимости, возникает эффект поляризации в проводнике. Поляризация в проводнике проявляется в возникновении эффективной диэлектрической проницаемости [10]. Полная диэлектрическая проницаемость в проводящих системах с учетом затухания и токов смещения в переменном электрическом поле с частотой  $\omega$  определяется выражением [12]:

$$\epsilon = \epsilon_0 - 4\pi\sigma_0 \frac{\tau_0}{1 + \omega^2\tau_0^2}. \quad (1)$$

Здесь  $\epsilon_0$  – макроскопическая диэлектрическая проницаемость пленки,  $\sigma_0$  – проводимость на постоянном токе,  $\tau_0$  – время релаксации электрона (в данном случае это время определяется обратной величиной вероятности туннелирования носителей заряда от заряженного островка на нейтральный островок  $\tau_r$ ). Известно, что в проводящих структурах (металлах, металлических пленках) в области низких частот, когда  $\omega\tau_0 \ll 1$ , диэлектрическая проницаемость  $\epsilon \rightarrow \epsilon_0 - 4\pi\sigma_0\tau_0$ . Диэлектрическая проницаемость становится отрицательной, если  $4\pi\sigma_0\tau_0 > \epsilon_0$ . Как правило, в металлических пленках это утверждение выполняется.

Второй процесс, возможно, связан с существованием в структурах конечных кластеров, на что указывает ступенчатый характер распределения потенциала вдоль образца (рис. 7, зависимости 1 и 2). Конечные кластеры в структурах могут сформировать в пленке геометрические емкости, где обкладками могут являться кластеры, разделенные зазором. Суммарно эта геометрическая емкость дает положительный вклад в величину эффективной диэлектрической проницаемости пленки ( $\epsilon_0$ ).

Как видно на рис. 5 при электрическом поле, равном нулю ( $F = 0$ ), эффективная диэлектрическая проницаемость является положительной величиной для образцов № 1 и № 2. Причиной формирования положительной диэлектрической проницаемости в образцах, очевидно, является образование конечных кластеров в пленках. При этом  $4\pi\sigma_0\tau_0 < \epsilon_0$ . Для образца № 3 при нулевом электрическом поле диэлектрическая проницаемость является отрицательной величиной и выполняется условие  $4\pi\sigma_0\tau_0 > \epsilon_0$ . В этой пленке, очевидно, существует бесконечный кластер и величина отрицательной диэлектрической проницаемости пленки определяется мнимой компонентой проводимости пленки.

Электрическое поле в значительной степени влияет на величину и знак эффективной диэлектрической проницаемости островковых металлических пленок. С ростом электрического поля проводимость островковых металлических пленок увеличивается (рис. 6). При увеличении проводимости пленки ее эффективная диэлектрическая проницаемость в соответствии с уравнением (1) должна уменьшаться, если диэлектрическая проницаемость пленки была положительной величиной (кривые 1 и 2, рис. 5). Причем эффективная диэлектрическая проницаемость образца № 2 с ростом электрического поля изменяет знак. В случае, если диэлектрическая проницаемость была отрицательной величиной, с ростом электрического поля наблюдается рост диэлектрической проницаемости по абсолютной величине (кривая 3, рис. 5).

*Выводы.* Проведено исследование низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости островковых металлических пленок от электрического поля.

Показано, что диэлектрическая проницаемость в островковых металлических пленках может иметь как положительную, так и отрицательную величину, причем в некоторых образцах при изменении электрического поля диэлектрическая проницаемость изменяла знак.

Показано, что величина низкочастотной эффективной диэлектрической проницаемости nanoостровковых структур изменялась от  $\epsilon \approx 10^7$  до  $\epsilon \approx -10^7$  при изменении электрического поля от  $F = 0$  до  $F = 60$  В/см.

Рассмотрены механизмы поляризации пленок. Показано, что механизм поляризации островковых металлических пленок может быть связан с двумя различными процессами.

Работа поддержана грантами РФФИ.

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] В. Abeles, Ping Sheng, M. D. Coutts and Y. Arie, *Adv. Phys.* **24**, 407 (1975).

- [2] Б. А. Аронзон, А. Е. Варфоломеев, Д. Ю. Ковалев и др., ФТТ **41**, 944 (1999).
- [3] Е. З. Мейлихов, ЖЭТФ **115**, 1484 (1999).
- [4] С. А. Neugebauer and M. V. Webb, J. Appl. Phys. **33**, 74 (1962).
- [5] А. П. Болтаев, Н. А. Пенин, А. О. Погосов, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ **126**, 954 (2004).
- [6] А. П. Болтаев, Н. А. Пенин, А. О. Погосов, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ **123**, 1067 (2003).
- [7] А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ **130**, 500 (2006).
- [8] I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur, and K. V. Efetov, Reviews of Modern Physics **79**, 469 (2007).
- [9] А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ **134**, вып. 3(9), 587 (2008).
- [10] Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела* (М., Наука, 1978), с. 282.
- [11] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (М., Физматлит, 2001).
- [12] Н. А. Пенин, Краткие сообщения по физике ФИАН **36**(3), 3 (2009).
- [13] I. F. Mikhailov, S. S. Borisova, L. F. Fomina, et al., Cryst. Res. Technol. **28**(6), 871 (1993).
- [14] I. F. Mikhailov, S. S. Borisova, L. P. Fomina, et al., Cryst. Res. Technol. **27**(8), 1061 (1992).

Поступила в редакцию 7 октября 2010 г.