

发光隧道结表面粗糙度的隧道显微镜研究*

江 孟 蜀

舒 启 清

(渝州大学物理系, 重庆 630033)

(重庆大学应用物理系, 重庆 630044)

提 要

本文报道用扫描隧道显微镜(STM)在空气中观测淀积在100 nm厚的CaF₂薄膜上的Al-Al₂O₃-Au发光隧道结表面的研究成果。在观测中首次发现结表面呈现出横向相关长度分别为30~70 nm和3~5 nm的两种粗糙度;横向相关长度小的粗糙度被横向相关长度大的所调制。这种横向相关长度为3~5 nm的表面粗糙度的存在与Laks和Mills预期的表面随机粗糙隧道结发光理论值一致。

关键词: 发光隧道结, 表面等离极化激元, 表面粗糙度。

一、引 言

1976年Lambe和McCarthy把Al-Al₂O₃-Au(或Ag)制作在表面粗糙的CaF₂薄膜上,发现加偏压时结表面均匀地发射可见光^[1]。理论和实验分析表明隧道结发光是一个两步过程:非弹性隧道电子激发束缚于界面上的表面等离极化激元(surface plasmon polariton,缩写为SPP),然后在表面粗糙度的参与下,SPP转变为外光子^[2,3]。由隧穿电子在Al-Al₂O₃-Au隧道结各界面附近所激发的SPP的色散方程^[4]所计算出的色散曲线如图1所示。图1中的 K_{\parallel} 是平行于表面(界面)的SPP的波矢值,SLOW MODE(慢模式)和FAST MODE(快模式)分别是Al₂O₃-Au界面和Au-真空界面上的SPP的色散曲线,虚直线 $\omega = cK_{\parallel}$ 是光在真空中的色散曲线, ω 和 c 分别是光在真空中的频率和速度。图1表

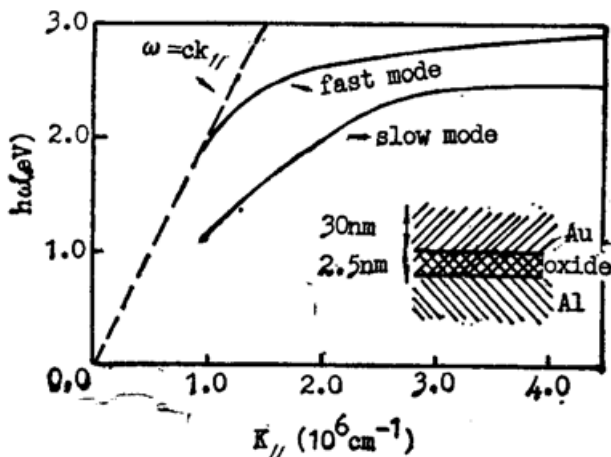


Fig. 1 The dispersion curves for a structure with 2.5 nm layer of oxide and 30 nm of Au deposited on the aluminum substrate.

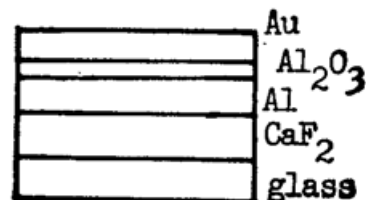


Fig. 2 The schematic for tunnel junction structure

收稿日期: 1990年6月25日; 收到修改稿日期: 1991年5月13日

* 本工作得到国家自然科学基金会的资助。

明结中两种模式的 SPP 的波矢值 K_{\parallel} 都大于具有相同能量的真空或空气中的光波波矢值 ω/c 。而界面上的电磁振荡 (SPP) 转变为外光子必须满足沿界面方向的准动量(波矢)守恒条件, 因此, 结内各界面上的 SPP 都不能直接转变为外光子, 而是束缚于界面上的非辐射场。但是如果结表面是粗糙的(以一层 CaF_2 薄膜作为平面隧道结的基底, 即可有效地引进表面粗糙度^[2]), SPP 就会因受表面粗糙度散射而转变为外光子。表面粗糙度是用横向相关长度 α 和粗糙度振幅 δ 来描写的; α 被定义为粗糙面上两相邻突峰之间的平均距离, δ 被定义为粗糙表面相对于一标称平面的突起高峰的高度的方均根值。那么, 束缚于界面上的非辐射的 SPP 通过与粗糙表面交换动量辐射外光子的过程满足下述著名公式^[5]

$$\frac{\omega}{c} \sin \theta = K_{\parallel} \pm n(2\pi/\alpha) \quad n=1, 2, \dots$$

式中 θ 是频率为 ω 波速为 c 的发射光与结界面法线的夹角, K_{\parallel} 是界面上的 SPP 的波矢值, α 是结的粗糙表面的横向相关长度。上式就是 SPP 被粗糙表面散射转变为外光子过程中所应满足的沿界面方向准动量守恒条件的数学表述^[5,6]。因此研究结表面的粗糙度对于分析结的发光机制是必不可少的。

在探讨隧道结的发光机制中, Laks 和 Mills 根据平面隧道结发光的两步过程, 提出了 SPP 与表面随机粗糙度耦合的理论。在这一理论中, 当横向相关长度为 α 时, 符合 $K_{\parallel}\alpha \approx 1$ 条件的 SPP 转化为外光子的效率最高, 且在这种 SPP-光子的转化中, 如图 1 所示的其它色散曲线为慢模式的 SPP 起主要作用^[6]。这样, 如欲解释隧道结发射光谱中可见光的存在, 则在以 CaF_2 作基底的随机粗糙隧道结的表面上应该存有一横向相关长度 $\alpha=3\sim 5\text{ nm}$ 的小粗糙度^[2,6,7]。但是根据光学测试结果^[8,9], 淀积在 100 nm CaF_2 薄膜上的隧道结表面的横向相关长度却是 $\alpha \approx 50\text{ nm}$, 并未发现 $\alpha=3\sim 5\text{ nm}$ 的小粗糙度的存在。为此, Laks 和 Mills 对 CaF_2 -隧道结表面的粗糙度结构提出了一个新的精细结构模型^[2,8,6,7], 假设在整个以 CaF_2 薄膜垫底的发光隧道结表面上, 除存有横向相关长度 α 为 $50\sim 100\text{ nm}$ 的大粗糙度外, 还同时存有许多横向相关长度 $\alpha=3\sim 5\text{ nm}$ 的小粗糙度; 这些小粗糙度以一系列微小的突峰和台地的形式连续地叠加于大粗糙度之上。其中, α 为 $50\sim 100\text{ nm}$ 的大粗糙度导致光的无规则反射, α 为 $3\sim 5\text{ nm}$ 的小粗糙度导致结的可见光发射。

本文首次报道用扫描隧道显微镜观测到为 Laks 和 Mills 所预言的存在于 CaF_2 -隧道结表面的横向相关长度 α 为 $3\sim 5$ 的小粗糙度。

二、实 验

如图 2 所示的 $\text{Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Au}$ 发光隧道结, 系用真空电阻加热法蒸镀于显微镜载物玻片之上。在压强为 1×10^{-5} Torr 的空真室内, 用掩模先在清洁过的玻片上以 0.2 nm/sec 的速率淀积一层 1.5 mm 宽 100 nm 厚的 CaF_2 长形条状薄膜, 接着以 1.5 nm/sec 的速率原位蒸发一层 70 nm 厚的 Al 膜复盖其上。然后把试样放在空气中, 在 200°C 的温度下烘烤 10 分钟, 使 Al 膜上部热氧化生成一层 $3\sim 4\text{ nm}$ 厚的 Al_2O_3 。最后, 把试样放在真空室, 更换掩模, 以 0.5 nm/sec 的速率在玻片上蒸发一条宽 1.5 mm 厚 30 nm 的 Au 膜条与 Al 膜正交, 形成一个 $1.5 \times 1.5\text{ mm}^2$ 的 $\text{Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Au}$ 隧道结, 简称为 CaF_2 -隧道结。

在空气中,用一台扫描隧道显微镜(美国 Digital Instruments 公司的 Nanoscope I 型),对上述 CaF_2 -隧道结上的 Au 表面进行观测,得到一系列如图 3、4 所示的 STM 像;再对直接淀积在上述同一块玻片上的(无 CaF_2 衬底的)Au 膜和 Al 膜表面进行观测,又得到一系列如图 5、6 所示的 STM 像。该 STM 使用的是 Pt-Ir 探针,由一压电陶瓷管驱动,对结表面进行三维扫描运动。成像用一台存储示波器显示。

三、结果和讨论

1. 观测到 CaF_2 -隧道结的大粗糙度

图 3 和图 4 是以厚为 100 nm 的 CaF_2 垫底的隧道结表面的 STM 像。由图 3 和图 4 可得该 CaF_2 -隧道结 Au 表面的突峰高度界于 7~17 nm 之间 [$\delta = (12 \pm 5) \text{ nm}$], 相邻突峰的间距界于 30~70 nm 之间 [$\alpha = (50 \pm 20) \text{ nm}$]。又知 Daunde^[8] 和 Ames^[9] 等人用光学手段对 CaF_2 薄膜表面的横向相关长度所测得的结果是 $\alpha \approx 50 \text{ nm}$ 。这表明在大粗糙度的横向相关长度 α 的测量上,STM 关于 CaF_2 -隧道结表面的测试结果与光学关于 CaF_2 薄膜表面的测试结果是一致的。在过去,人们一直是由上述的 CaF_2 膜的表面粗糙度的光学测试结果来推断 CaF_2 -隧道结的表面粗糙度,认为后者是前者的复现。本文首次用 STM 对结表面直接观测所得的结果表明: CaF_2 -隧道结的表面粗糙度确是其衬底 CaF_2 膜的表面粗糙度的复现。

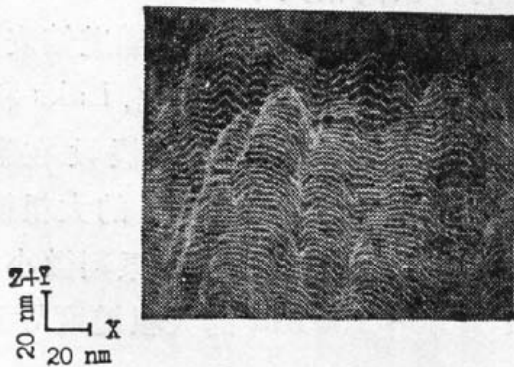


Fig. 3 STM topograph of top Au-surface of tunnel junctions with CaF_2 underlayer. STM operating conditions: tunnel voltage $V_t = 0.25 \text{ V}$, tunnel current $I_t = 8 \text{ nA}$, scanning frequency

$$f_s = \begin{cases} 20 \text{ Hz (X)} \\ 0.2 \text{ Hz (Y)} \end{cases}$$

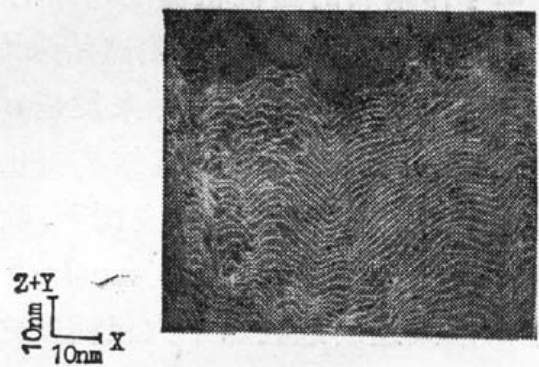


Fig. 4 STM topograph of top Au-surface of tunnel junction with CaF_2 underlayer. STM operating conditions: tunnel voltage $V_t = 0.25 \text{ V}$, tunnel current $I_t = 6 \text{ nA}$, scanning frequency

$$f_s = \begin{cases} 20 \text{ Hz (X)} \\ 0.2 \text{ Hz (Y)} \end{cases}$$

2. 首次发现了 Laks 和 Mills 所假设的 CaF_2 -隧道结的小粗糙度的存在

本文用 STM 所发现的为 Laks 和 Mills 所假设的横向相关长度 $\alpha = 3 \sim 5 \text{ nm}$ 的小粗糙度如图 3 和图 4 所示。图 3 和图 4 清晰地显示 CaF_2 -隧道结 Au 膜表面的大粗糙度犹如是一系列小粗糙度的包络,由一系列微小的突峰和台地叠加而成。构成这些小粗糙度的微小突峰和台地的高度界于 0.8~1.6 nm 之间 [$\delta = (1.2 \pm 0.4) \text{ nm}$], 相邻小突峰之间的横向距离界于 3~5 nm 之间 [$\alpha = (4.0 \pm 1.0) \text{ nm}$]。按照 Laks-Mills 理论,正是这类小粗糙度导致了隧道结可见光的发射。

为什么上述这类小粗糙度在过去一直未能被光学测量所发现? 本文认为这是由光学测量本身的局限性所引起。一般地说, 光学关于空间不均匀性的测量, 都是利用光波关于这些不均匀性的平均效果。当这些不均匀性的空间长度与光波波长可相比拟时, 效果最佳。然而, 为 Laks-Mills 所假设的 $a=3\sim 5\text{ nm}$ 的小粗糙度, 其横向相关长度 a 却远小于光波波长, 小两个数量级以上。对于其线度较之光波波长如此之小的空间不均匀性, 光学手段实难以有效检测。于是, 在空气中, 其横向分辨力可达 0.2 nm , 垂直分辨力也达 0.01 nm 的 STM 也就自然地成了观测上述小粗糙度的有力工具。

3. 观测到存在于平滑 Au 膜表面的剩余粗糙度

直接淀积于平滑玻璃基片上的 Au 膜表面的剩余粗糙度 (residual roughness)^[10] 的 STM 像如图 5 所示。该 STM 像表明, 无 CaF_2 衬底的 Au 膜表面和 CaF_2 -隧道结 Au 膜表面一样也存有大、小两类粗糙度。大粗糙度的横向相关长度 a 介于 $8\sim 12\text{ nm}$ 之间, 其粗糙度 $\delta < 1.0\text{ nm}$; 小粗糙度的横向相关长度 a 介于 $3.0\sim 5.0\text{ nm}$ 之间, 其粗糙度 $\delta < 0.5\text{ nm}$ 。这样, 就可以按照 Laks-Mills 理论解释无 CaF_2 衬底的平滑隧道结的可见光发射: 一是因为它也存有 $a=3.0\sim 5.0\text{ nm}$ 的小粗糙度, 所以它可以发射可见光; 二是因为隧道结的发光强度与粗糙度 δ 的平方成正比^[7], 而 CaF_2 -隧道结的粗糙度比平滑隧道结的粗糙度约大 1 个数量级, 所以平滑隧道结的发光强度比粗糙隧道结的发光强度低 $1\sim 2$ 个数量级, 因而只能发射微弱的可见光。由此也可见粗糙度在隧道结的光发射中所起的重要作用。

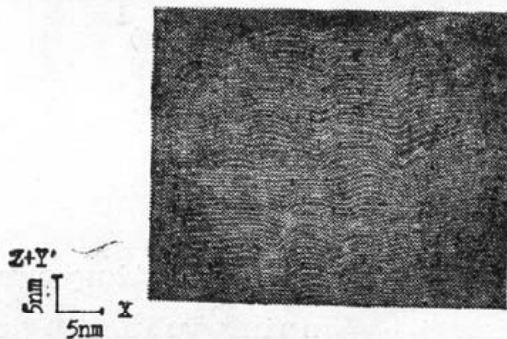


Fig. 5 STM topograph of top Au-surface on the glass substrate, STM operating conditions: tunnel voltage $V_t=0.25\text{ V}$, tunnel current $I_t=2\text{ nA}$, scanning frequency

$$f_s = \begin{cases} 26\text{ Hz (X)} \\ 0.2\text{ Hz (Y)} \end{cases}$$

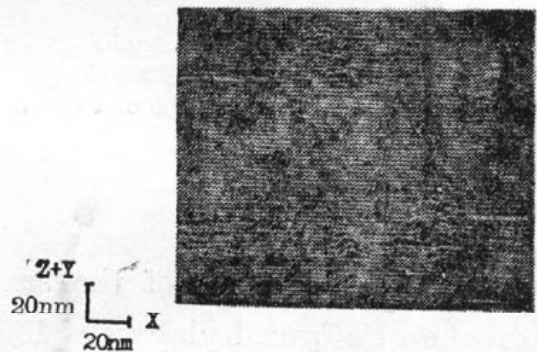


Fig. 6 STM topograph of top Al-surface on glass substrate. STM operating conditions: tunnel voltage $V_t=1\text{ V}$, tunnel current $I_t=2.5\text{ nA}$, scanning frequency

$$f_s = \begin{cases} 27\text{ Hz (X)} \\ 0.18\text{ Hz (Y)} \end{cases}$$

4. 使用 STM 研究隧道结表面(界面)粗糙度的一个局限性是只能测定结能导电的上电极 Au 膜表面的粗糙度^[11], 结的其它界面则不能为 STM 的探针所到达。图 6 显示的是淀积在平滑玻璃上的 Al 膜表面的 STM 像。然而该 STM 像并不是 Al 膜表面真实形貌的再现。图 6 中的平坦部分是由于 Al 膜表面 Al_2O_3 绝缘层的存在, 使探针与 Al 膜表面间的隧穿效应极其微弱所致; 该 STM 像中的若干凸起部分则可认为是该处的 Al_2O_3 薄膜存有某种局部缺陷, 这些缺陷为探针与 Al 膜之间的强电场(测图 6 时所用的偏压已由测图 3 时的 0.25 V 增至 1 V)所击穿, 出现了较强的隧穿效应所致。

参 考 文 献

- [1] J. Lambe, S. L. McCharthy; *Phys. Rev. Lett.*, 1976, **37**, No. 14 (Oct), 923.
[2] B. Laks, D. L. Mills; *Phys. Rev. B.*, 1979, **20**, No. 12 (Dec), 4962.
[3] P. Dawson, D. G. Walmsley *et al.*; *Phys. Rev. B.*, 1984, **30**, No. 6 (Sep), 3164.
[4] 舒启清;《物理》, 1988, **17**, No. 2 (Feb), 91.
[5] J. R. Kirtley, T. N. Thels *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1980, **37**, No. 5 (Sep), 435.
[6] L. Mills, M. Weber *et al.*; «in *Tunneling Spectroscopy: Capabilities, Application and New Techniques*», (Edited by P. K. Hansma, Plenum, New York, 1982), 121.
[7] B. Laks, D. L. Mills; *Phys. Rev. B.*, 1980, **21**, No. 11 (Jun), 5175.
[8] A. Daunde, A. Savary *et al.*; *J. O. S. A.*, 1972, **62**, No. 1 (Jan), 1.
[9] G. H. Ames, D. G. Hall *et al.*; *Opt. Comm.*, 1982, **43**, No. 4 (Oct), 247.
[10] S. Ushioda, J. E. Rutledge *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1985; **54**, No. 3 (Jan), 224.
[11] D. Papars, P. D. Sparks *et al.*; *J. Vacuum Sci. & Technol. A*, 1988, **6**, No. 2 (Mar/Apr), 415.

Surface roughness study of light-emitting tunnel junction with scanning tunnelling microscope

JIANG MENGSHU

(Department of Physics, Yuzhou University, Chongqing, 630033)

SHU QIQING

(Department of Applied Physics, Chongqing University, Chongqing, 630044)

(Received 25 June 1990; revised 13 May 1991)

Abstract

We report a study of the surface of Al-Al₂O₃-Au light-emitting junctions deposited on CaF₂ underlayers of 100 nm thickness with scanning tunnelling microscopy (STM) in air. For the first time, two kinds of the roughness on the junction surface are observed, which have the transverse correlation length of 30~70 nm and 3~5 nm, respectively. The smaller one is modulated by the larger one. The existence of this surface roughness with the transverse correlation length of 3~5 nm is in agreement with the theoretical predication of Lake and Mills^[2],

Key words: Light-emitting tunnel junction, surface plasmon-polariton, surface roughness.