

Кулоновское блокирование проводимости пленок SiO_x при одноэлектронной зарядке кремниевой квантовой точки в составе цепочки электронных состояний

© М.Д. Ефремов[¶], Г.Н. Камаев, В.А. Володин, С.А. Аржанникова, Г.А. Качурин, С.Г. Черкова, А.В. Кретинин, В.В. Малютина-Бронская, Д.В. Марин

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

(Получена 27 декабря 2004 г. Принята к печати 12 января 2005 г.)

Проведены исследования электрофизических характеристик структур металл–окисел–полупроводник (МОП) со встроенными кремниевыми наночастицами в слое диоксида кремния. Формирование нанокристаллов осуществлялось путем распада пересыщенного твердого раствора имплантированного кремния в процессе термообработок при температурах $\sim 1000^\circ\text{C}$. При азотной температуре экспериментально обнаружена ступенчатая вольт-амперная характеристика МОП структуры с нанокристаллами кремния в окисном слое. Ступенчатая вольт-амперная характеристика впервые количественно описана в рамках модели, предполагающей осуществление транспорта заряда по цепочке локальных состояний, содержащей нанокристалл кремния в своем составе. Наличие ступеней объясняется одноэлектронной зарядкой нанокристалла кремния и кулоновским блокированием вероятности прыжка с ближайшего локального состояния в цепочке проводимости. Предполагается, что локальные состояния в окисном слое связаны с избыточной концентрацией кремния в нем. Наличие таких состояний в окисле кремния подтверждается данными измерений дифференциальных проводимости и емкости. Для имплантированных кремнием МОП структур наблюдается увеличение дифференциальной емкости и проводимости по отношению к контрольным структурам в области смещений более 0.2 В. В этой же области напряжений при воздействии ультрафиолетовым излучением изменение заполнения состояний в цепочках проводимости обуславливает уменьшение проводимости структур.

1. Введение

Пленки диоксида кремния с нанокристаллами кремния рассматриваются в настоящее время в качестве перспективного материала для создания одноэлектронных транзисторов и элементов памяти, в которых плавающий затвор заменяется нанокристаллическими включениями кремния. Нанокристаллы кремния в окисле кремния являются „глубокими“ квантовыми точками, люминесцирующими при комнатной температуре за счет эффектов размерного квантования носителей заряда в них [1,2]. Как электрические, так и оптические свойства нанокристаллов кремния привлекают повышенный научный интерес [3]. Эти свойства в значительной степени определяются спектром электронных состояний в нанокристаллах. Теоретическому изучению электронного спектра посвящено значительное количество работ [4–7]. Прямые квантово-механические методы расчета применяются для нанокристаллов кремния малых размеров — менее 1 нм. Для больших размеров применение данных методов затруднено вычислительными возможностями современной техники, и в качестве метода расчета применяется приближение эффективной массы. Следует отметить также, что прямые квантово-механические методы предполагают пассивацию нанокристаллов водородом, а это соответствует случаю изолированных нанокристаллов кремния, тогда как при решении задачи методом эффективной массы предполагается наличие границы раздела

с другим более широкозонным материалом. Последний случай соответствует нанокристаллу кремния в диэлектрическом окружении. Сопоставление результатов для тех и других вариантов расчета актуально и в принципе позволяет определить феноменологические параметры приближения эффективной массы, которые достаточно точно могут описать структуру электронных уровней нанокристаллов кремния в различном диэлектрическом окружении.

Малые размеры нанокристаллов могут обеспечить малые емкости переходов в двухбарьерной системе, достаточные для наблюдения эффекта „кулоновской блокады“. В ряде экспериментов были обнаружены эффекты, которые объяснялись особенностями транспорта заряда через квантовые состояния, локализованные в нанокристаллах кремния [8].

Высокие потенциальные барьеры на границе раздела кремний–диоксид кремния (3.2 и 4.34 эВ для электронов и дырок соответственно) могут обеспечить проявление квантово-размерных свойств нанокристаллов кремния даже при комнатной температуре. Однако с ростом высоты барьеров вероятность туннелирования через тонкий слой окисла кремния экспоненциально падает. Это затрудняет создание туннельно-тонких стенок переходов. Вместе с тем, если обеспечить транспорт электронов через поверхностные или локализованные состояния за счет многократных актов туннелирования с сохранением энергии электрона, попадающего в квантовую точку, то станет в принципе возможным наблюдение кулоновской

[¶] E-mail: efremov@isp.nsc.ru

блокады проводимости для толщин барьеров, доступных для практической реализации. В этом случае механизм транспорта заряда по состояниям в диоксиде кремния будет иметь принципиальное значение.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию электрических свойств пленок диоксида кремния, содержащих нанокристаллические включения кремния.

2. Методика эксперимента

Экспериментальные образцы представляли собой МОП структуры (металл–окисел–полупроводник) с захороненными в окисле кремния нанокристаллами кремния. В экспериментах использовались образцы с разным типом проводимости подложки и с вариацией толщины диэлектрика. Для введения нанокристаллов Si в слой диоксида кремния имплантировали ионы Si^+ с энергией 25 кэВ и дозой $3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ (подложка *n*-типа, толщина окисла 75 нм), с энергией 150 кэВ и дозой $7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ (подложка *p*-типа, толщина окисла 300 нм). Постимплантационный отжиг структур проводился при 1000°C в течение 2 ч в атмосфере N_2 . Как было показано ранее, такая термическая обработка имплантированных кремнием структур приводит к образованию нанокристаллических включений со средним размером $\sim 5 \text{ нм}$ и к появлению линии фотолюминесценции с длиной волны около 750 нм [9]. МОП структуры формировались путем термического испарения алюминия через маску в вакууме на холодную подложку. На тыльной стороне структур формировался омический контакт нанесением эвтектической смеси In–Ga. Также были созданы контрольные МОП структуры на той части поверхности образцов, которая при имплантации была закрыта металлической маской, а в остальном процесс их изготовления соответствовал исследуемым структурам.

Для полученных МОП структур были измерены зависимости дифференциальных емкости и проводимости от приложенного напряжения в диапазоне частот 1–145 кГц и статические вольт-амперные характеристики. Дифференциальные характеристики измерялись путем приложения переменного и постоянного напряжения, первое из которых равнялось 20 мВ, а второе плавно менялось от -10 до $+10 \text{ В}$. Переменный сигнал с нагрузочного сопротивления измерялся в режиме синхронного детектирования. Значения дифференциальных емкости и проводимости регистрировали одновременно, используя два синхронных детектора с отстройкой фазы на 90° .

Также проводилось исследование вольт-фарядных характеристик и зависимости проводимости от напряжения МОП структур, содержащих нанокристаллы в слое окисла, при воздействии на них ультрафиолетовым (УФ) излучением. Образцы облучались в течение 1 ч при отсутствии смещающего напряжения на электродах и во время измерения характеристик. Источником излучения

служила дейтериевая лампа высокого давления ДДС-30 с непрерывным спектром излучения в диапазоне длин волн от 200 до 400 нм. Для сравнения воздействия ультрафиолетового облучения также проводились исследования структур, не содержащих нанокристаллы в слое оксида.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

3.1. Дифференциальные вольт-амперные и вольт-фарядные характеристики

Вольт-фарядные характеристики (ВФХ) контрольных МОП структур имели достаточно стандартный вид, соответствующий обычной высокочастотной ВФХ МОП структуры, с емкостью насыщения при положительном смещении $\sim 185 \text{ пФ}$, что соответствует емкости диэлектрика указанной толщины (см. рис. 1, а, кривая 4).

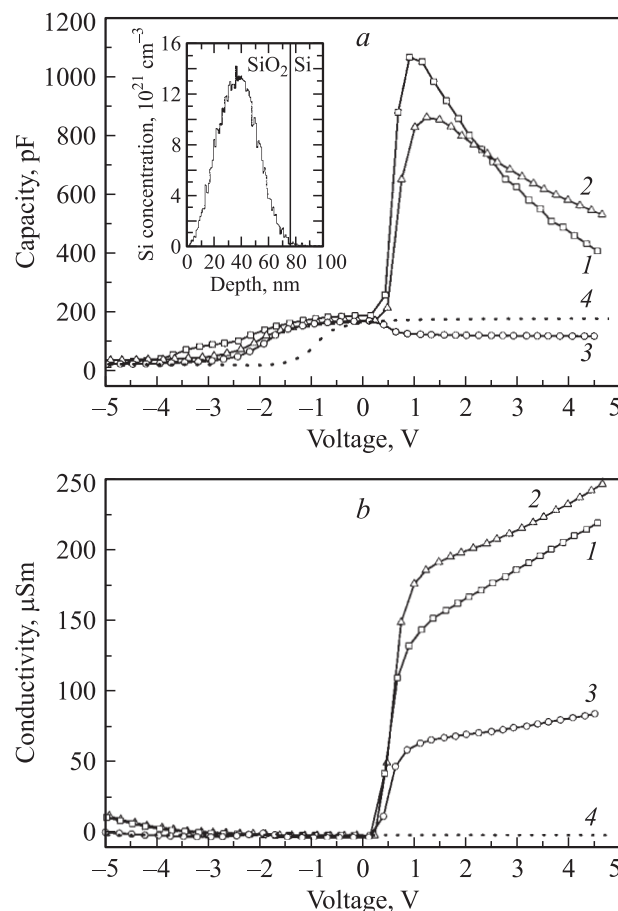


Рис. 1. Дифференциальная емкость (а) и проводимость (б) МОП структуры, содержащей нанокристаллы кремния в слое диэлектрика (1–3) и без нанокристаллов (4). Частота измерения, кГц: 1 — 1,12, 2 — 10, (3, 4) — 145. На вставке — пространственное распределение Si в пленке SiO_2 толщиной 75 нм после имплантации ионов Si^+ с энергией 25 кэВ дозой $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$.

Для МОП структур с нанокристаллами кремния в окисле кремния (см. рис. 1) наблюдается отличие характеристик дифференциальных емкости и проводимости. В сравнении с контрольным образцом наблюдается сдвиг напряжения плоских зон на величину $-(1-1.5)$ В в область отрицательных смещений, что свидетельствует о наличии дополнительного положительного заряда в окисле с избыточной концентрацией кремния. Кроме того, для частот 1.12, 10 кГц обнаружено резкое возрастание емкости, а для частоты 145 кГц некоторое уменьшение емкости при напряжениях более 0.2 В. Следует отметить, что экспериментальная дифференциальная проводимость МОП структур также существенно возрастает при приложении положительного смещения начиная с 0.2 В. Причем дифференциальная проводимость на частоте 145 кГц значительно меньше, чем для более низких частот (см. рис. 1, *b*). Для контрольного образца не наблюдалось существенного роста дифференциальной проводимости при увеличении смещения. Область напряжений, в которой наблюдаются отличия емкости и проводимости, одна и та же и, следовательно, при этих напряжениях происходит перезарядка электронных состояний в окисле кремния, которые дают существенный вклад в обе измеряемые величины. По-видимому, эти электронные состояния связаны с наличием избыточного кремния в окисле. Они могут быть связаны и с кремниевыми кластерами, присутствующими в окисле после радиационно-термических обработок. Повышение частоты измерения до 145 кГц приводит к уменьшению наблюдаемого эффекта вследствие того, что часть состояний не успевает перезарядиться. Так как при данных приложенных напряжениях область пространственного заряда полупроводника находится в режиме обогащения и емкость МОП структуры определяется исключительно емкостью диэлектрика, все изменения в общей емкости структуры происходят вследствие перезарядок состояний в диэлектрике. Итак, имплантация кремния и формирование в окисле кремния нанокристаллов кремния при последующих термических обработках приводят к появлению в окисле электронных состояний, которые, перезарядаясь, изменяют дифференциальную емкость и проводимость МОП структур.

Можно считать, что при комнатной температуре основным механизмом переноса заряда в окисле является прыжковый транспорт. В окисле кремния вероятность прыжков носителей заряда с одного состояния на другое зависит от их зарядового состояния. Его можно изменить при воздействии на образец УФ излучением, что и было осуществлено в эксперименте. На рис. 2 представлены зависимости дифференциальной емкости и проводимости МОП структуры в условиях УФ подсветки. Измерения проводились на частоте 145 кГц. В области напряжений более 0.2 В наблюдается уменьшение емкости и проводимости МОП структур с нанокристаллами кремния в окисном слое. Причем в этой области напряжений наблюдается гистерезис характеристик. В области напряжений от -2 до 0 В при освещении наблюдает-

ся увеличение дифференциальной проводимости МОП структур. Влияние подсветки на дифференциальную проводимость может быть обусловлено двумя механизмами. Первый связан с обычной фотопроводимостью, когда проводимость образца растет с интенсивностью падающего света, что связано с появлением дополнительных носителей заряда в зонах делокализованных состояний. Второй, более сложный, механизм может приводить к падению проводимости образца за счет того, что генерируемые светом носители заряда заполняют пустые состояния в цепочках проводимости, обеспечивающих полную проводимость структуры. Заполнение пустых состояний может приводить к выключению цепочки проводимости, что в конечном итоге может приводить к падению общей проводимости окисного слоя. В данном случае, по-видимому, проявляются оба этих механизма в диапазоне напряжений $-2-0$ В и более 0.2 В соответственно. Наличие гистерезиса объясняется естественным образом, так как зарядовое состояние в цепочках проводимости также зависит от приложенного смещения и при осуществлении развертки смещения в сторону его увеличения или обратно зарядовое состояние цепочек проводимости может быть разным.

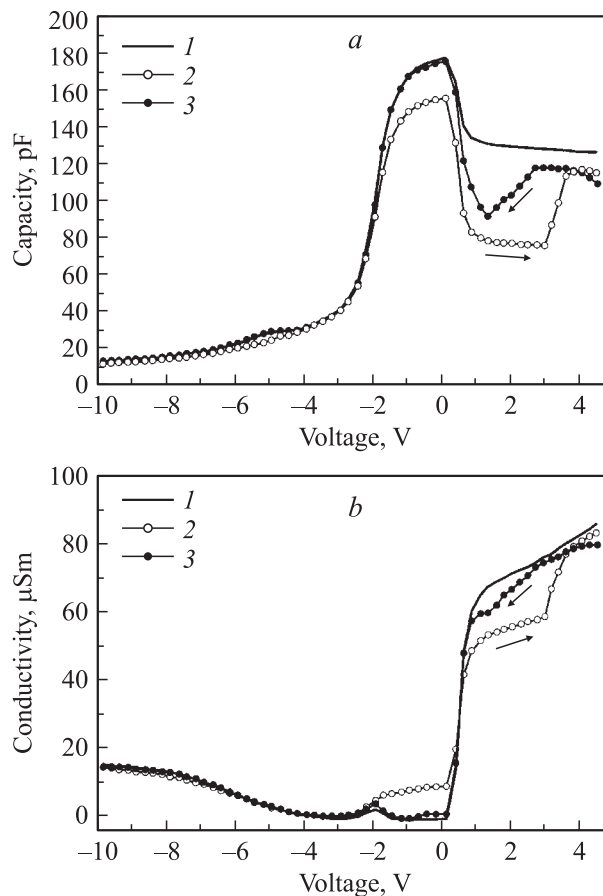


Рис. 2. Дифференциальная емкость (*a*) и проводимость (*b*) МОП структуры, содержащей нанокристаллы кремния в слое диэлектрика, на частоте 145 кГц: 1 — измерения в темноте, (2, 3) — при ультрафиолетовой подсветке.

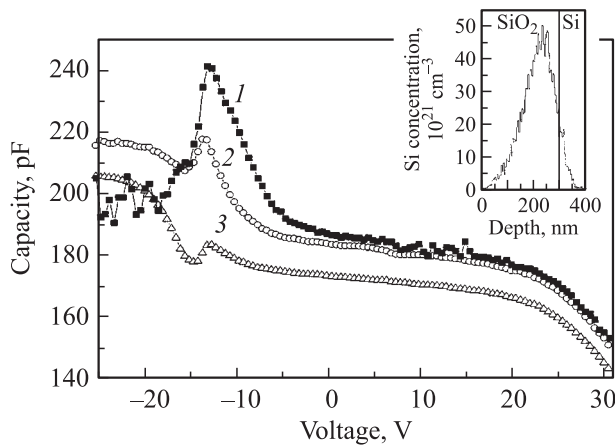


Рис. 3. Вольт-фарадные характеристики МОП структуры, содержащей нанокристаллы кремния в слое диэлектрика. Частота измерения, кГц: 1 — 1, 2 — 10, 3 — 145. На вставке — пространственное распределение Si в пленке SiO₂ толщиной 300 нм после имплантации ионов Si⁺ с энергией 150 кэВ дозой $7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$.

Ультрафиолетовое облучение структур, не содержащих нанокристаллов, не изменяло форму ВФХ, однако они сдвигались в область отрицательных напряжений, что свидетельствует о накоплении положительного встроенного заряда внутри диэлектрика. Зарядка диэлектрика в результате ультрафиолетового облучения объясняется тем, что в SiO₂ имеются два типа ловушек внутри его запрещенной зоны. Первый тип — мелкие электронные ловушки, второй — глубокие дырочные. При ультрафиолетовом облучении происходит рождение электронно-дырочных пар внутри SiO₂, фотовозбужденные электроны захватываются на электронные ловушки, а дырки — на дырочные. Так как электронные ловушки — мелкие и подвижность захваченных электронов на них выше, электроны быстро стекают в металл или зону проводимости полупроводника. Дырочные ловушки являются глубокими состояниями с большим временем жизни на них дырок. В результате дырки остаются на своих ловушках, диэлектрик получает положительный заряд, а это в свою очередь приводит к изменению напряжения плоских зон и смещению вольт-фарадной характеристики в область отрицательных напряжений. Для снятия такого положительного заряда диэлектрик необходимо было подвергнуть термическим обработкам при температуре до 350°С в течение 15–20 мин.

На рис. 3 приведены результаты измерения ВФХ для МОП структур, содержащих в окисле нанокристаллы кремния. Толщина окисла в данном случае равнялась 300 нм, а подложка имела *p*-тип проводимости. Анализ ВФХ выявил наличие пика при смещении $\sim (-12)$ В, соответствующего перезарядке локальных электронных состояний в диэлектрике. Амплитуда пика падает с ростом частоты измерения вследствие того, что часть состояний не успевает перезарядаться при высокой

частоте. Наблюдение сравнительно узкого пика на вольт-фарадной характеристике соответствует узкому распределению локальных состояний в окисле по энергии.

3.2. Статические вольт-амперные характеристики

Были измерены статические ВАХ МОП структур с нанокристаллами кремния в окисном слое при комнатной температуре. Для большинства экспериментальных образцов наблюдались ВАХ диодного типа. Избыточный кремний, внедренный при имплантации, приводит к появлению электронных состояний в объеме диэлектрика, и диэлектрик становится проводящим. Так как ток легко проходит через диэлектрик от полупроводника к металлическому контакту, можно предположить, что такая структура будет иметь вольт-амперную характеристику, схожую с характеристикой диода Шоттки. В эксперименте наблюдалась ВАХ, несимметричная по отношению к знаку напряжения.

Однако примерно для 10% из исследованных структур резкого возрастания тока при приложении прямого напряжения не наблюдалось. В этих случаях вольт-амперная характеристика в прямом направлении была

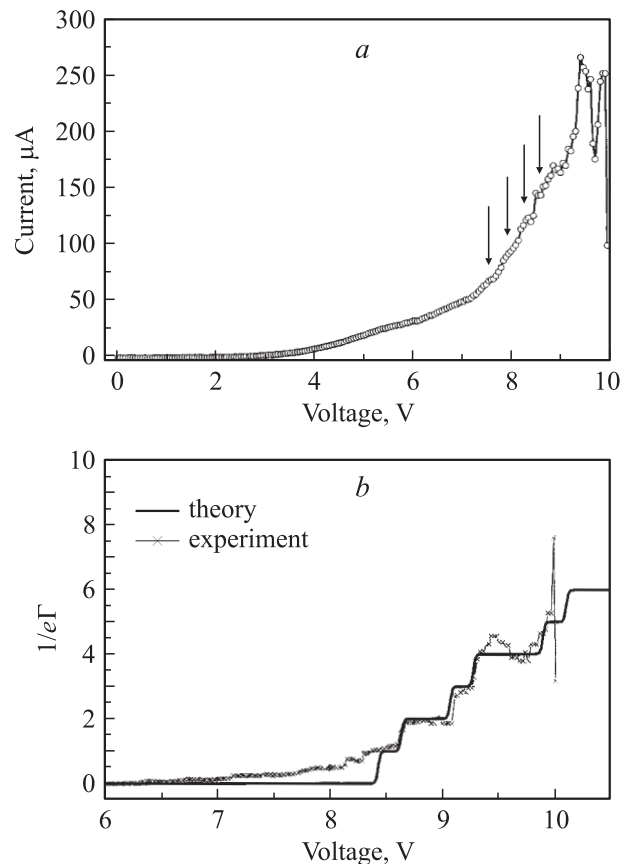


Рис. 4. Вольт-амперные характеристики МОП структуры, содержащей нанокристаллы кремния в слое диоксида кремния. *a* — эксперимент при $T = 300$ К; *b* — эксперимент при $T = 77$ К и расчет для двухбарьерной структуры.

более пологой. На рис. 4, *a* представлена типичная вольт-амперная характеристика такой структуры. В области напряжений от 7 до 9 В были отмечены слабые особенности, которые воспроизводились для одного и того же образца. Для смещений выше 9 В наблюдалась нестабильность тока через образец. Как видно, для этого сорта структур не наблюдается быстрого и монотонного возрастания тока, наподобие наблюдавшегося в большинстве структур при 0.7 В. Более того, зависимость тока от напряжения начиная примерно с 7 В содержит резкие изломы и небольшие плато, которые отмечены на графике стрелками. Появление подобных изломов и плато на вольт-амперных характеристиках авторы многих работ [10–13] связывают с резонансным туннелированием через локализованные состояния внутри слоя диэлектрика. Воспроизводимость слабых особенностей на статических ВАХ позволила предположить, что эти особенности могут быть связаны с зарядкой состояний в нанокристаллах кремния. При понижении температуры до 77 К воспроизводимые особенности ВАХ приняли ступенеобразную форму, что отражено на рис. 4, *b*. Ступенеобразная форма статических ВАХ наблюдалась в области напряжений от 8.5 до 9.5 В. При напряжениях ~ 9.5 В, так же как и при комнатной температуре, наблюдалась неустойчивость измеряемого тока. Подобные флуктуации тока наблюдались во многих работах, посвященных резонансному протеканию тока через уровни размерного квантования или примесные уровни в диэлектрике [11,14].

Нужно заметить, что ступени на представленной вольт-амперной характеристике (рис. 4, *b*) неэквидистантны и токовые плато имеют разную протяженность. Для качественного объяснения ступенчатого вида зависимости тока от напряжения была использована модель, в которой протекание тока через слой окисла МОП структуры происходит по цепочкам электронных состояний. Цепочки могут содержать состояния, соответствующие уровням размерного квантования энергии электрона, локализованного внутри нанокристалла кремния. Модель также учитывает одноэлектронную зарядку нанокристалла при прохождении через него тока.

Суть использованной модели состоит в следующем. Предполагалось, что проводимость окисла определяется прыжковым механизмом транспорта заряда. Прыжки носителей заряда осуществляются через состояния в окисле, которые образуют систему цепочек, дающих существенный вклад в общую проводимость окисла. Наличие в составе такой цепочки нанокристалла кремния делает ее вклад более существенным, поскольку радиус локализации волновой функции электрона для нанокристалла много больше соответствующего радиуса для локального центра. Локальный центр цепочки состояний, с которого электрон прыгает на нанокристалл кремния, играет роль эмиттера, а центр, принимающий электрон, прыгающий из нанокристалла, — роль коллектора. При понижении температуры можно ожидать, что вклад в проводимость от цепочек состояний, не

содержащих нанокристаллы кремния, будет падать более резко из-за большей локализации волновых функций на состояниях. По мере понижения температуры вклад проводимости одной или нескольких цепочек может стать доминирующим.

Нанокристалл, являясь многозарядным центром, при зарядке несколькими электронами или дырками может блокировать проводимость такой цепочки. В эксперименте это может проявляться в ступенеобразной вольт-амперной характеристике на фоне тока, определяемого другими цепочками проводимости. При этом кулоновское блокирование будет наблюдаться только для тех цепочек, для которых вероятность перехода электрона из эмиттера в нанокристалл будет много больше, чем вероятность туннелирования из нанокристалла в коллектор. Остальные цепочки будут давать вклад, плавно зависящий от напряжения и не содержащий обсуждаемых особенностей.

С тем чтобы оценить непротиворечивость модели, был осуществлен теоретический анализ ВАХ МОП структуры на основе положений работы [15].

3.3. Моделирование статических вольт-амперных характеристик для МОП структур с нанокристаллами кремния

В работе [15] получено выражение для туннельного тока через состояния в квантовой яме в двухбарьерной структуре. В качестве одного электрода выступает кремниевая подложка *n*-типа проводимости, другим электродом является алюминиевый контакт. Квантовая яма образуется нанокристаллом кремния, который находится внутри слоя SiO_2 . Выражение для туннельного тока, описывающее ступенеобразную форму вольт-амперной характеристики, имеет вид [15]

$$I = e\Gamma_c \times \left[n + \frac{[p(n) - q(n)]}{p(n) - q(n) + [q(n) + 1] \exp\left[-e\eta \frac{(V_b - V_{\varepsilon_n})}{kT}\right]} \right].$$

В данном выражении Γ_c — вероятность туннелирования из нанокристалла в коллектор, n — число электронов в квантовой яме, p — степень вырождения незаполненного уровня, q — число электронов на незаполненном уровне, η — часть напряжения, которая падает между эмиттером и квантовой ямой, V_b — напряжение, прикладываемое к структуре, V_{ε_n} — пороговое напряжение, необходимое для перехода электрона из эмиттера на квантовый уровень с энергией ε_n , T — температура, k — постоянная Больцмана, e — заряд электрона.

Пороговое напряжение определяется как энергетическим спектром нанокристалла $\varepsilon_i(n)$, так и характерной электростатической энергией δ одноэлектронной заряд-

ки нанокристалла, имеющего емкость C :

$$V_{\varepsilon_n} = V_t + \frac{\varepsilon_l(n) + \delta n}{e\eta},$$

$$\delta = \frac{e^2}{C},$$

где V_t — пороговое напряжение, необходимое для перехода электрона в нанокристалл кремния в основное состояние. Вероятность попадания электронов в нанокристалл Γ_e определяется прыжковым транспортом электронов по проводящей цепочке и положением нанокристалла в ней.

Расчет энергетического спектра нанокристалла кремния, помещенного в более широкозонную матрицу SiO_2 , проведен на основе решения сферически симметричного уравнения Шредингера в приближении эффективной массы. При расчетах использовались следующие параметры: эффективная масса дырки $m_h = 0.19m_0$, эффективная масса электрона $m_e = 0.26m_0$; барьер для дырок 4.34 эВ, для электронов 3.2 эВ [16]. Учитывался разрыв масс на гетерогранице и эффективная масса носителей заряда в SiO_2 $m_b = m_0$.

Решалось уравнение Шредингера для сферически симметричного случая [17]:

$$\Delta\Psi + \frac{2m}{\hbar^2} [E - U(r)]\Psi = 0.$$

Волновая функция электрона в сферически симметричном случае может быть представлена в виде произведения радиальной волновой функции и сферической функции в каждой из областей, где масса является постоянной величиной:

$$\Psi(r, \theta, \phi) = \Phi(r) \cdot Y(\theta, \phi).$$

В нашем случае потенциал сферически симметричен, и для всех таких потенциалов угловая зависимость волновой функции универсальна и определяется сферическими функциями. Для радиальной части волновой функции имеем уравнение

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \Phi(r) \right) - \frac{L(L+1)}{r^2} \Phi(r) + \frac{2m}{\hbar^2} [E - U(r)] \Phi(r) = 0.$$

Сделав замену переменных $\Phi(r) = \chi(r)/r$, уравнение приводим к виду

$$\frac{\partial^2 \chi(r)}{\partial r^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} [E - U(r)] - \frac{L(L+1)}{r^2} \right] \chi(r) = 0.$$

Для орбитального момента L , равного нулю, можно воспользоваться решением задачи об одномерной потенциальной яме

$$\frac{d^2 \chi(r)}{dr^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} [E - U(r)] \right] \chi(r) = 0,$$

где $\chi(r)/r$ определяет радиальную часть волновой функции. Должно выполняться условие $\chi(r=0) = 0$ с тем,

чтобы обеспечить конечность волновой функции в начале координат; выполнение условия может быть обеспечено бесконечно высокой стенкой потенциала при $r=0$. Роль ширины ямы выполняет радиус нанокристалла R , а вид потенциала следующий:

$$U(r) = \begin{cases} \infty & \text{при } r=0, \\ 0 & \text{при } 0 < r < R, \\ U_0 & \text{при } r \geq R. \end{cases}$$

Расчет энергетических состояний для нанокристаллов кремния позволил рассчитать ВАХ, которая приведена на рис. 4, *b* в сопоставлении с результатами эксперимента. Расчетная ВАХ хорошо согласуется с экспериментом. Это позволяет предположить, что наблюдаемые особенности на ВАХ связаны с проявлением эффекта „кулоновской блокады“, когда одноэлектронная зарядка нанокристалла, встроенного в цепочку проводимости, вызывает блокирование прыжка следующего электрона в нанокристалл за счет возросшего электростатического потенциала. Для того чтобы этот эффект можно было наблюдать, необходимо соблюдение соотношения

$$\frac{e^2}{2C} \gg kT,$$

т.е. чтобы электростатическая энергия зарядки нанокристалла значительно превышала тепловую энергию. Оценки показывают, что для размера нанокристалла 2–5 нм с учетом зависимости диэлектрической проницаемости от размера нанокристалла электростатическая энергия составляет величины 60–32 мэВ, что на порядок больше kT для азотной температуры (6.63 мэВ). Еще одним условием для наблюдения „кулоновской блокады“ является то, что вероятность попадания электрона в нанокристалл, находящийся в основной проводящей цепочке, должна быть выше вероятности ухода из него. В нашем случае это достигалось статистическим отбором экспериментальных образцов. Вероятность одноактного туннелирования электрона из металла в нанокристалл через всю толщину разделяющего их окисла крайне мала, и в нашем случае, предположительно, электрон достигал нанокристалла путем многократных туннельных прыжков по состояниям в SiO_x . Наличие состояний в SiO_x , по нашему мнению, обусловлено избыточными атомами кремния, внедренными ионной имплантацией и не собравшимися в нанокристаллы.

Теоретическая вольт-амперная характеристика имеет ступенчатый вид и содержит две группы ступеней, разделенных широким плато. Первое ступенчатое увеличение тока возникает при совмещении уровня эмиттера с основным одноэлектронным уровнем размерного квантования в нанокристалле E_0 . При выполнении условия $\Gamma_e \gg \Gamma_c$ происходит аккумуляция одиночного электрона в потенциальной яме, что приводит к увеличению энергии системы на величину e^2/C [15]. Следующее ступенчатое увеличение тока происходит при совмещении уровня эмиттера с двухэлектронным

основным состоянием, энергия которого составляет величину $E_1 = E_0 + e^2/C$. После заполнения основного уровня размерного квантования количество электронов в нанокристалле равно 2 и энергия всей системы увеличилась на $2e^2/C$. Поэтому очередная ступень на вольт-амперной характеристике возникнет при достижении уровнем эмиттера следующего одноэлектронного уровня, энергия которого уже составляет $E_1 + 2e^2/C$, а количество электронов в яме после этого станет равным 3. Дальнейшее заполнение уровней происходит аналогично. Таким образом, процесс одноэлектронной зарядки нанокристалла снимает вырождение уровней размерного квантования. При таком рассмотрении не учитывается взаимодействие электронов в яме. Уровни E_0, E_1 рассчитывались в одноэлектронном приближении. Вполне возможно, что при заполнении нанокристалла кремния 4 электронами и более это взаимодействие становится существенным, что и объясняет наблюдающуюся в эксперименте нестабильность тока при напряжении более 9.5 В.

Следует обратить внимание на то, что как теоретическая, так и экспериментальная ВАХ на рис. 4, *b* нормированы на величину $(e\Gamma_c)$, где значение вероятности туннелирования в коллектор Γ_c было подобрано нами из сравнения с экспериментом и равнялось $7 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$. При этом уровни ступеней, наблюдаемые в эксперименте, становятся последовательно равными натуральному ряду чисел 1, 2, 3, 4. Это соответствует числу электронов в нанокристалле при поданном смещении и соответствует тому, что ток в режиме „кулоновской блокады“ определяется произведением числа электронов в квантовой точке на вероятность перехода в коллектор.

В случае нанокристалла кремния диаметром ~ 5 нм расстояние между уровнями размерного квантования больше характерной электростатической энергии e^2/C , поэтому узкие плато на вольт-амперной характеристике соответствуют разности энергии между одно- и двух-электронными состояниями, а широкие плато соответствуют разности энергии между уровнями размерного квантования. Исходя из сказанного выше можно сделать вывод, что в эксперименте наблюдается резонансное туннелирование через основной и первый возбужденный уровни размерного квантования в нанокристалле, а также наблюдается тонкая структура, связанная с расщеплением уровней квантования за счет одноэлектронной зарядки нанокристалла.

4. Заключение

Таким образом, в работе при азотной температуре экспериментально обнаружена ступенеобразная вольт-амперная характеристика МОП структуры с нанокристаллами кремния в окисном слое. Степенеобразная ВАХ количественно описана в рамках модели, предполагающей осуществление транспорта заряда по цепочке локальных состояний, содержащей нанокристалл крем-

ния в своем составе. Наличие ступеней описано одноэлектронной зарядкой нанокристалла кремния и кулоновским блокированием вероятности прыжка электрона с ближайшего локального состояния в цепочке проводимости. Предполагается, что локальные состояния в окисле кремния соответствуют кластерам избыточного кремния малых размеров, формирующимся непосредственно в результате ионной имплантации кремния. Наличие таких состояний в окисле кремния подтверждается данными измерений дифференциальных проводимости и емкости. Для имплантированных кремнием МОП структур наблюдается увеличение дифференциальных емкости и проводимости по отношению к контрольным структурам в области смещений более 0.2 В. В этой же области напряжений при воздействии УФ излучением изменение заполнения в цепочках проводимости обуславливает уменьшение проводимости структур.

Список литературы

- [1] T. Shimizu-Iwayama, K. Fujita, S. Nakao, K. Saitoh, R. Fujita, N. Itoh. *J. Appl. Phys.*, **75**, 7779 (1994).
- [2] Г.А. Качурин, И.Е. Тыщенко, В. Скорупа, Р.А. Янков, К.С. Журавлев, Н.А. Паздников, В.А. Володин, А.К. Гутаковский, А.Ф. Лейер. *ФТП*, **31** (6), 730 (1997).
- [3] Y.C. King, T.J. King, C. Hu. *International Electron Devices Meeting Technical Digest* (1998) p. 115.
- [4] C. Delerue, M. Lannoo, G. Allan. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 2457 (2000).
- [5] A. Zunger, L.-W. Wang. *Appl. Surf. Sci.*, **102**, 350 (1996).
- [6] B. Delley, E.F. Steigmeier. *Appl. Phys. Lett.*, **67** (16), 2370 (1995).
- [7] D. Babic, R. Tsu, R.F. Greene. *Phys. Rev. B*, **45** (24), 14 150 (1992).
- [8] R. Tsu. *Appl. Phys. A*, **71**, 391 (2000).
- [9] Г.А. Качурин, А.Ф. Лейер, К.С. Журавлев, И.Е. Тыщенко, А.К. Гутаковский, В.А. Володин, В. Скорупа, Р.А. Янков. *ФТП*, **32** (11), 1371 (1998).
- [10] Q. Ye, R. Tsu, E.H. Nicollian. *Phys. Rev. B*, **44** (4), 1806 (1991).
- [11] R. Tsu, X.-L. Li, E.H. Nicollian. *Appl. Phys. Lett.*, **65** (7), 842 (1994).
- [12] R. Tsu. *Appl. Phys. A*, **71**, 391 (2000).
- [13] Y. Inoue, A. Tanaka, M. Fujii, S. Hayashi, K. Yamamoto. *J. Appl. Phys.*, **86** (6), 3199 (1999).
- [14] И.И. Абрамов, А.Л. Данилюк. *ЖТФ*, **68** (12), 93 (1998).
- [15] D.V. Averin, A.N. Korotkov, K.K. Likharev. *Phys. Rev. B*, **44** (12), 6199 (1991).
- [16] В.А. Бурдов. *ФТП*, **36** (10), 1233 (2002).
- [17] Л.Д. Ландау, Е.М. Лившиц. *Теоретическая физика*, т. 3. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория* (М., Наука, 1974).

Редактор Л.В. Шаронова

Coulomb blockade of conductivity in SiO_x film due to single electron charging of silicon dot within a chain of electronic states

M.D. Efremov, G.N. Kamaev, V.A. Volodin, S.A. Arzhannikova, G.A. Kachurin, S.G. Cherkova, A.V. Kretinin, V.V. Malutina-Bronskaya, D.V. Marin

Institute of Semiconductor Physics
Russian Academy of Sciences, Siberian Branch,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract The studies of electrical characteristics of metal–oxide–semiconductor (MOS) structures with silicon nanoparticles embedded in silicon oxide were carried out. The silicon nanocrystals were formed under thermal annealing at temperature 1000°C of SiO_2 films implanted by Si^+ ions. A staircase current–voltage characteristic of a MOS structure with Si nanocrystals in SiO_2 film was observed at temperature 77 K. The staircase current–voltage characteristic was well approximated in the frame of model, in which the charge transport take place via a chain of local states, including a Si nanocrystal. The staircase-like characteristic is supposed to induced by Coulomb blockade of conducting chain of local states due to single-electron charging of the Si nanocrystal. Local states in silicon dioxide is supposed to be connected with surplus of silicon atoms. The availability of local states (charge traps) was verified by measurements of the differential capacitance and conductance in implanted MOS structures as compared to the non-implanted ones. For the implanted MOS structures the differential capacitance and conductance was higher in the range of biases above of 0.2 V. In the same bias range the UV-irradiation of the implanted MOS structures led to decrease of conductance, caused, admittedly, by changing of the local states population within conductivity chains.