

MIM 隧道发光二极管的电子输运研究¹

俞建华 孙承休 王启明*

(东南大学电子工程系 南京 210096)

*(中国科学院半导体所集成光电子国家重点实验室 北京 100083)

摘 要 本文报道了 MIM 隧道二极管的发光和负阻现象,用梯形势垒计算了电流-电压特性。结果显示,由于 SPP 波对电子的阻挡和束缚作用引起的势垒平均宽度的增加所导致的负阻现象与实验结果相符合。

关键词 MIM 隧道二极管, 发光, 电子输运

中图分类号 TN383

1 引 言

金属/绝缘层/金属(简称 MIM)隧道二极管的可见光发射现象最早于 1976 年由 Lambe 等人发现^[1],作为一种低直流驱动电压(3~5 V)、全固态的平面型发光器件,它具有与微电子工艺兼容、发光颜色可调、工艺简单等特点,具有广阔的应用前景,如用作薄膜寻址阵列显示^[2]、双稳态光学开关^[3]、超高速三端器件^[4]、光电集成领域中的微光源,制作高分辨率的隧道电子显微镜^[5],利用它的逆效应作响应为 10^{-12} s 量级的微型光探测器^[6]等,它的发光机理是隧道电子激发起的表面等离激元(Surface Plasmon Polariton,简称 SPP)与表面粗糙度的耦合^[7],对研究固体元激发过程有重要意义。因此引起了许多国家研究人员的兴趣^[8]。

隧穿电子在 MIM 隧道二极管的发光中扮演着重要角色,研究电子在 MIM 结构中的输运过程对理解器件的工作机理有重要意义。本文建立了 MIM 隧道二极管的势垒模型,得到器件电流的分析表达式,并计算了电流-电压特性。

2 实 验

2.1 样品制备

MIM 隧道二极管的结构见图 1。Al、Au 和 MgF₂ 膜分别在油扩散泵真空系统中蒸镀而成,真空度为 10^{-3} Pa 量级 Al₂O₃ 是 Al 膜在空气中自然氧化而成,厚度为 3nm 左右。

2.2 发射光谱

在室温大气中测得的 MIM 隧道二极管的发射光谱如图 2 所示。发射光谱与表面粗糙度之间的关系在文献[9]中已进行了详细的描述,与两步光发机制^[7]相吻合。

2.3 电流-电压特性

采用四端法在室温大气中测得的 MIM 隧道二极管的电流-电压特性曲线如图 3 所示,图中表现出了明显的负阻($dI/dV < 0$)区域。实验中发现样品出现负阻现象时一定能发光。

¹ 1998-06-01 收到, 1999-01-23 定稿

国家自然科学基金(批准号 69576006)和集成光电子国家重点实验室的资助课题

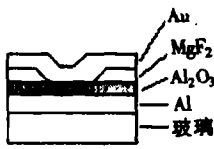


图1 MIM 结构

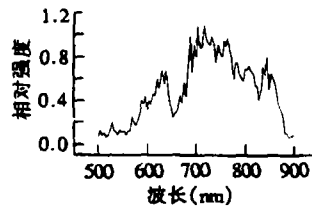


图2 MIM 的发射光谱特性

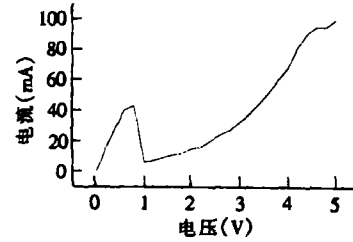


图3 室温下 MIM 的 I-V 曲线

3 势垒模型

3.1 符号说明

w_1 为底电极 Al 的逸出功, w_2 为顶电极 Au 的逸出功; η_1 为 Al 中的费密能级, η_2 为 Au 中的费密能级; χ 为 Al 和 Au 间绝缘层的电子亲和势; d 为 Al 和 Au 间的势垒宽度; Φ_1 为底电极 Al 与绝缘层界面的势垒高度; Φ_2 为顶电极 Au 与绝缘层界面的势垒高度; m^* 为电子的有效质量, e 为电子电荷; m_e 为自由电子的质量; $\Delta\phi = \phi_2 - \phi_1$, $\phi_2 = w_2 - e\chi$; $\phi_1 = w_1 - e\chi$.

3.2 势垒模型的数学表示

未加偏压和加三种不同偏压时的势垒模型示于图 4(a)、4(b)、4(c)、4(d)。数学表示式如下:

$$\text{当 } 0 < V, \frac{\phi_2 - \phi_1}{e} \text{ 时, } U(x) = \begin{cases} 0, & x < 0; \\ \alpha + \beta x, & 0 < x < d; \\ \gamma, & x > d; \end{cases} \quad (1)$$

$$\text{当 } \frac{\phi_2 - \phi_1}{e} < V < \frac{\phi_2}{e} \text{ 或 } V > \frac{\phi_2}{e} \text{ 时, } U(x) = \begin{cases} 0, & x < 0; \\ \alpha - \beta x, & 0 < x < d; \\ \gamma, & x > d; \end{cases} \quad (2)$$

以及

$$\alpha = \eta_1 + \phi_1, \quad \beta = |\phi_2 - \phi_1 - eV|/d, \quad \gamma = (\eta_1 - \eta_2 - eV). \quad (3)$$

4 隧穿电流

4.1 隧穿电流的数学表示

对金属采用 Sommerfeld 自由电子理论, 并认为电子在隧穿过程中是相互独立的, 于是得电子由一种金属通过一个绝缘层势垒到达另一金属时的隧穿电流密度

$$J = \frac{4\pi m^* e}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x, V) dE_x \int_0^\infty [f(E) - f(E + eV)] dE_r \quad (4)$$

上式中, E_m 是电极中电子动能的最大值, $f(E)$ 为费密-狄拉克 (Fermi-Dirac) 函数, E_r 是电子垂直于 x 方向平面的动能, E_x 是电子在 x 方向的动能分量, 各量均取 CGS 单位制。定义

$$E = E_r + E_x, \quad E_r = m(V_y^2 + V_z^2)/2, \quad E_x = mV_x^2/2, \quad (5)$$

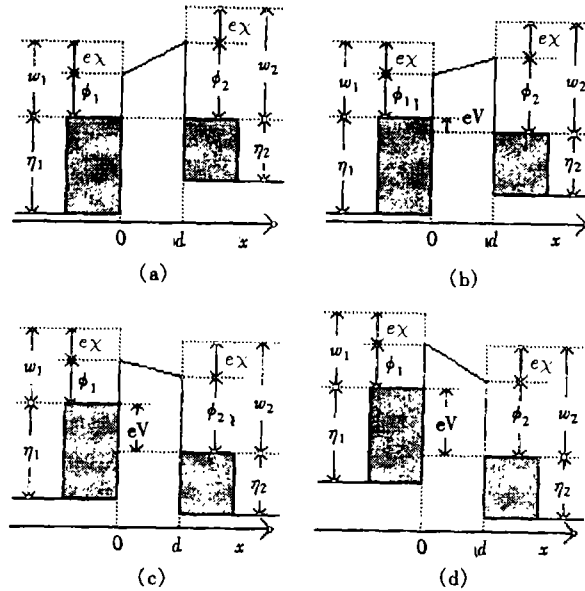


图 4 势垒模型

$D(E_x, V)$ 是具有能量 E_x 的电子在结偏压为 V 时, 在 x 方向的隧穿几率。对于 (4) 式中的第二个积分, 其 E_r 值的上限原则上可以从零到无限大, 但对于实际的金属, 在热平衡下, 声子传输给电子的激发能约 kT 。考虑到 $E = E_r + E_x$, 故 E_r 对 $f(E)$ 和 $f(E + eV)$ 的积分上限可以分别取为 $(\eta_1 + kT - E_x)$ 和 $(\eta_1 - eV + kT - E_x)$, 经过计算, 可得

$$A(E_x, V) = \int_0^{\infty} [f(E) - f(E + eV)] dE_r$$

$$= \begin{cases} kT \ln \left\{ \left[\frac{\exp(-eV/(kT)) + e}{e + 1} \right] \cdot \left[\frac{\exp\langle (\eta_1 - E_x)/(kT) \rangle + 1}{\exp\langle (\eta_1 - E_x - eV)/(kT) \rangle + 1} \right] \right\}, & \text{当 } 0 < E_x < \eta_1 + kT \text{ 时;} \\ 0, & \text{当 } E_x \geq \eta_1 + kT \text{ 时.} \end{cases} \quad (6)$$

于是 (4) 式可写为

$$J = \frac{4\pi m^* e}{h^3} \int_0^{E_m} A(E_x, V) D(E_x, V) dE_x. \quad (7)$$

4.2 电子隧穿几率 $D(E_x)$ 的计算

我们采用梯形势垒对绝缘层势垒进行模拟。对于任意形状的势垒, 量子力学中常采用半经典的 WKB 近似方法求势垒的透射系数^[10]。但此种方法适用的条件为: (1) $V(x)$ 的变化比较缓慢; (2) 入射粒子的能量 E 不太靠近 $V(x)$ 的峰值; (3) 透射系数远小于 1 的情形。因此对图 4 所示的势垒, $V(x)$ 是阶跃变化, 并不满足 WKB 方法的适用条件。这里通过求解薛定谔方程, 利用波函数的级数连接方法, 得到了透射系数的分析表达式。

设势垒两边的电势差为 V (M_1 接负极), 左边 (M_1) 金属导带底为能量零点, 令 $\Phi_2 > \Phi_1$, 势垒宽度为 d , 定态薛定谔方程为

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \psi(x)}{\partial x^2} + U(x)\psi(x) = E_x \psi(x). \quad (8)$$

4.2.1 对 $x < 0$ 的区域 $U(x) = 0$, 故可令波函数为

$$\psi_1(x) = A \exp(i\alpha_1 x) + B \exp(-i\alpha_1 x), \quad x < 0, \quad (9)$$

其中 A 、 B 为待定系数, $\alpha_1 = (2mE_x/\hbar^2)^{1/2}$.

4.2.2 对 $x > d$ 的区域 E_x 从 0 到 E_m 变化, 设波函数为

$$\psi_3(x) = \begin{cases} F_1 \exp(i\alpha_3 x), & E_x > \eta_1 - \eta_2 - eV; \\ H_2, & E_x = \eta_1 - \eta_2 - eV; \\ H_3 \exp(-\alpha_3 x), & E_x < \eta_1 - \eta_2 - eV; \end{cases} \quad (10)$$

上式已考虑到波函数的有界性和势垒右方不存在反射波, F_1 , H_2 , H_3 为待定系数 $\alpha_3 = [2m|E_x - (\eta_1 - \eta_2 - eV)|/\hbar^2]^{1/2}$. 将 $E_x \leq (\eta_1 - \eta_2 - eV)$ 时的波函数 ψ_3 代入几率流公式

$$j_x = \frac{\hbar}{2mi} \left(\psi_3^* \frac{\partial}{\partial x} \psi_3 - \psi_3 \frac{\partial}{\partial x} \psi_3^* \right), \quad (11)$$

可得 $j_x = 0$, 即在此能量范围内透射系数恒为零. 因此 $\psi_3(x)$ 仅需考虑 (10) 式的第一式. 这种情况类似光从光密媒质射向光疏媒质, 所发生的“全内反射”.

4.2.3 对 $0 < x < d$ 的区域 设波函数为

$$\psi_2(x) = C\psi_a(x) + D\psi_b(x). \quad (12)$$

同样 C 、 D 为待定系数, $\psi_a(x)$, $\psi_b(x)$ 为待求函数, 下面对不同的偏压范围求解.

(1) 若 $0 < V < (\psi_2 - \psi_1)/e$, 将 $U(x) = \alpha + \beta x$ 和 $\psi(x) = \psi_2(x)$ 代入 (8) 式, 移项并同除 $(\alpha - E_x)$ 得

$$\frac{\hbar^2}{2m(\alpha - E_x)} \frac{\partial^2 \psi_2}{\partial x^2} - \psi - \frac{\beta}{(\alpha - E_x)} x \psi_2 = 0, \quad (13)$$

令 $l = [2m(\alpha - E_x)/\hbar^2]^{1/2}$, $\lambda = \beta/[(\alpha - E_x)l] = |\phi_2 - \phi_1 - eV|/[(\alpha - E_x)ld]$, $\xi = lx$, $U(\xi) = \psi_2(x)$, 得

$$\partial^2 U(\xi)/\partial \xi^2 - U(\xi) - \lambda \xi U(\xi) = 0. \quad (14)$$

令 $\psi_2(x) = U(\xi) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n \xi^n$, 代入 (14) 式, 得

$$\sum_{n=2}^{\infty} n(n-1)a_n \xi^{n-2} - (1 + \lambda \xi) \sum_{n=0}^{\infty} a_n \xi^n = 0. \quad (15)$$

由 ξ 的各次项系数为零可得

$$a_2 = \frac{a_0}{2(2-1)}, \quad a_3 = \frac{a_1 + \lambda a_0}{3(3-1)}, \quad a_n = \frac{a_{n-2} + \lambda a_{n-3}}{n(n-1)}, \quad n = 4, 5, \dots$$

可见 a_n 可表示为 a_0 和 a_1 的函数, a_0 、 a_1 可取任意值. 取 $(a_0, a_1) = (1, 0), (0, 1)$ 得一组线性无关解:

$$U_a(\xi) = 1 + \frac{\xi^2}{2(2-1)} + \frac{\lambda\xi^3}{3(3-1)} + \dots + \frac{a_{n-2} + \lambda a_{n-3}}{n(n-1)}\xi^n + \dots = U_a(lx) = \psi_a(x),$$

$$U_b(\xi) = \xi + \frac{\xi^3}{3(3-1)} + \frac{\lambda}{4(4-1)}\xi^4 + \dots + \frac{a_{n-2} + \lambda a_{n-3}}{n(n-1)}\xi^n + \dots = U_b(lx) = \psi_b(x). \quad (16)$$

因为微分方程 (14) 式没有奇点, 故 ψ_a 、 ψ_b 在所有的 x 都是收敛的, 势垒区域的波函数可写为

$$\psi_2(x) = C\psi_a(x) + D\psi_b(x) = CU_a(lx) + DU_b(lx). \quad (17)$$

由 (9)、(10)、(17) 三式所表示的波函数及其导数在 $x=0$ 和 $x=d$ 处的连续性, 可得一方程组并结合 $U_a(0) = 0, U_b(0) = 0, U'_a(0) = 0, U'_b(0) = 1$, 经过计算得透射系数为

$$D(E_x, V) = \left| \frac{F_1}{A} \right|^2 = \frac{4[U_a(ld)U'_b(ld) - U'_a(ld)U_b(ld)]^2}{\{[U'_b(ld) + (\alpha_3/\alpha_1)U_d(ld)]^2 + [(l/\alpha_1)U'_b(ld) - (\alpha_3/l)U_b(ld)]^2\}}. \quad (18)$$

(2) 若 $V > (\Phi_2 - \Phi_1)/e$, 与 (1) 中类似, 只需将其中的 λ 换为 $(-\lambda)$ 即可, 表达式完全类似.

(3) 若 $V = (\Phi_2 - \Phi_1)/e$, 即 $(\Phi_2 - \Phi_1 = eV)$ 时, 能带如图 5, 而由前面讨论可知, E_x 在大于 $(\eta_1 - \eta_2 - eV)$ 时, 隧穿几率才不为零, E_x 又必须小于 $\eta_1 + kT$, 故 $E - \alpha < 0, \alpha$ 见 (3) 式, 由 (10) 式可知, 波函数 f_2 满足

$$\frac{\partial^2 f_2}{\partial x^2} + \frac{2m}{\hbar^2}(E - \alpha)f_2 = 0. \quad (19)$$

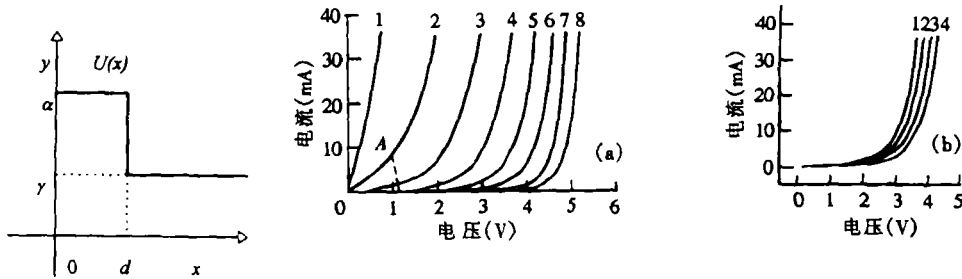


图 5 $\beta = 0$ 时的能带
图 6 MIM 二极管电流-电压特性的计算结果. (a) 对应势垒宽度增加, 即 $d_1 = 2.4\text{nm}, d_{i+1} = d_i + 0.2\text{nm}$; (b) 对应 Al 的势垒高度增加即 $P_1 = 3.25\text{eV}, P_{j+1} = P_j + 0.1\text{eV}$. $i = 1, \dots, 7; j = 1, \dots, 3$

令 $q = [|E - \alpha|2m/\hbar^2]^{1/2}$, 则 (19) 式的通解为

$$f_2(x) = C_1 \exp(qx) + D_1 \exp(-qx). \quad (20)$$

与 (1) 中类似, 由 (9)、(10)、(20) 三式得到隧穿几率为

$$D[E_x, (\phi_2 - \phi_1)/e] = \frac{4\alpha_1^2 q^2}{[q^2(\alpha_1 + \alpha_3)^2 \text{ch}^2(qd) + \alpha_1 \alpha_3 - q^2]^2 \text{sh}(qd)}, \quad (21)$$

其中 $q = [|E_x - \eta_1 - \phi_1| 2m/\hbar^2]^{1/2}$.

4.3 隧穿电流的数值计算

在用数值计算得到各种偏压下的隧穿几率后, 对 (7) 式用 Romberg 求积法进行计算. 参数选择^[11-13]: 室温 (300K) 时 Fermi 能量为 Al 为 11.63eV, Au 为 5.51eV, 逸出功为 Al 为 4.1eV, Au 为 5.0eV, $\chi = 0.85\text{eV}$, $m^* = 0.2m_e$. 这里的逸出功取氧化物 / 金属多晶膜界面的值, 与真空 / 金属单晶界面的值稍有不同, $\phi_2 = w_2 - (w_1 - \phi_1)$. 在不同的势垒宽度和势垒高度下的计算结果示于图 6. 由图可知, 势垒平均宽度的增加所引起的隧穿电流的增加, 远大于势垒高度的增加所引起的隧穿电流的增加. 负阻现象可以用图 6(a) 中 A 点下降的虚线来模拟. 在 SPP 的作用下势垒平均宽度的增加量为 0.1 ~ 0.4nm 左右.

5 结果和讨论

MIM 隧道二极管在产生光发射的同时, 显示出了负阻现象. 通过梯形势垒模型计算它的电流-电压特性可知, 施加偏压后势垒平均宽度的增加所导致的负阻现象可以定性地模拟实验结果. 势垒平均宽度的增加是由于当偏压达到一定值时, 隧穿电子开始激发起较强的 SPP 波, SPP 波对电子产生一定的束缚和阻挡作用, 这种作用可以等效为势垒平均宽度的增加. 当然势垒平均宽度的增加量和 SPP 波强度以及偏压之间的定量关系还需进一步的研究.

参 考 文 献

- [1] Lambe J, McCarthy S L. Light emission from inelastic electron tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 1976, 37(14): 923-926.
- [2] Troyan P E, Lubsanov R B, Vorobyev G A, *et al.* Flat display based on the metal-insulator-metal emitter array. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 1993, 11(2): 514-517.
- [3] Raymond S, Van Hoof C, Geone J, *et al.* Resonant tunneling light-emitting diode as an optical switch. *Electron. Lett.*, 1993, 29(14): 1301-1302.
- [4] Akazawa M, Amemiya Y. Directional single-electron-tunneling junction. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1996, 35(Part 1, No. 6 A): 3569-3575.
- [5] Ito K, Ohyama S, Uehara Y, *et al.* STM light emission spectroscopy of surface micro-structures on granular Au films. *Surface Science*, 1995, 324(2/3): 282-288.
- [6] Hoofring A B, Kapoor V J, Krawczonek W. Submicron nickel-oxide-gold tunnel diode detectors for rectennas. *J. Appl. Phys.*, 1989, 66(1): 430-437.
- [7] Mills D L, Weber M, Laks B. Light Emission from Tunnel Junctions. in *Tunneling Spectroscopy*. edited by Hansma P K, New York: Plenum, 1982, 121-151.
- [8] Szentirmay Z. Surface plasmon assisted electron-photon interaction in metal-oxide-metal layered structures. *Prog. Quant. Electr.*, 1991, 15(3): 175-230.
- [9] 张佑文, 孙承休, 高中林, 孙日俊. 金属 / 绝缘体 / 金属隧道结的粗糙度与发光光谱的关系. *电子学报*, 1997, 25(5): 25-28.
- [10] Schiff L I. *Quantum Mechanics*, 3rd ed., New York: McGraw-Hill Book Company; 1968, chap.8.
- [11] Kittel C. *Introduction to Solid State Physics*, 6th edition, New York: John Wiley & Sons, Inc., 1986, 134.
- [12] Sze S M. *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd edition, New York: John Wiley & Sons; 1981, 396.

- [13] 马文淦, 林趾荣, 张桂根, 等. 金属势垒参数与上电极的相关性. 物理学报, 1991, 40(3): 483-488.

THE RESEARCH OF ELECTRON TRANSFER IN MIM LIGHT EMISSION TUNNEL DIODE

Shu Jianhua Sun Chengxiu Wang Qiming*

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

**(National Integrated Optoelectronics Key Lab.,*

Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

Abstract This paper reports the light emission from MIM tunnel diode and Negative Differential Resistance (NDR) in its I-V characteristic curve. By building the trapezoid potential barrier model and calculating the numerical solution of I-V characteristic curve with computer, it is found that the increment of potential barrier average width is agree with the experiment well. This increment of potential barrier average width is caused by the SPP's impeding and trapping effect upon tunneling electrons.

Key words MIM tunnel diode, Light emitting, Electron transfer

俞建华: 男, 1961年生, 博士生, 讲师, 从事半导体光电子学研究.

孙承休: 男, 1937年生, 教授, 从事电致发光和半导体光电子学研究.

王启明: 男, 1934年生, 研究员, 中科院院士. 主要从事半导体与信息光电子学研究.