

Микроконтактная спектроскопия металлических гетероконтактов на высоких частотах

О. П. Балкашин

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: balkashin@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 8 июля 1998 г.

С помощью микроконтактной спектроскопии исследованы особенности спектров электрон-фононного взаимодействия в гетероконтактах, образованных разнородными металлами Cu–Cu (1 ат% Fe) и Cu–Au. Измерения на высоких частотах позволили выделить и идентифицировать вклады в спектр, обусловленные процессами релаксации неравновесных фононов.

За допомогою мікроконтактної спектроскопії вивчено властивості спектрів електрон-фононної взаємодії в гетероконтактах, утворених з різнорідних металів Cu–Cu (1% Fe) та Cu–Au. Вимірювання на високих частотах дозволило виділити та ідентифікувати внески в спектр, обумовлені процесами релаксації нерівноважних фононів.

PACS: 73.40.Jn, 73.40.Ei

Микроконтактная спектроскопия — измерение нелинейных особенностей электропроводности точечных контактов при низких температурах — весьма эффективно используется для изучения спектров элементарных возбуждений и, в частности, электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ) в металлах и сплавах [1,2]. Ряд таких экспериментов был выполнен на гетероконтактах, т.е. точечных контактах, образованных разнородными металлами. Специфика гетероконтактов обусловила обнаружение некоторых новых эффектов: суперпозицию спектров ЭФВ контактирующих металлов [3–5], асимметрию проводимости микроконтактов (МК) относительно полярности приложенного напряжения [6], асимметрию спектров ЭФВ [7]. Особенности МК спектров биметаллических контактов, выявленные в этих исследованиях, нашли удовлетворительное объяснение в рамках теоретических работ [8–10], в которых были проведены расчеты нелинейных вкладов в проводимость гетероконтактов, где наряду с процессами электронного рассеяния учтена и кинематика процессов реабсорбции неравновесных фононов. В «грязных» контактах с малой длиной свободного пробега электронов и фононов (тепловой режим МК спектроскопии)

асимметрия электропроводности связывается [6,9] с вкладом термоэлектрического эффекта Зеебека. Асимметрия МК спектров в контактах с диффузным движением квазичастиц объясняется эффектом увлечения электронов проводимости потоком неравновесных фононов из области концентрации тока в массивные электроды [7,10].

Высокочастотный метод МК спектроскопии, развитый в последнее время [11,12], позволяет изучать кинетику релаксационных процессов и разделять вклады в МК спектр различных механизмов рассеяния квазичастиц в контакте. В настоящем сообщении представлены результаты экспериментальных исследований асимметричных эффектов в гетероконтактах, проведенных с помощью высокочастотной МК спектроскопии. Измерения выполнены при температуре 4,2 К на микроконтактах меди со сплавом меди с 1 ат.% железа, а также меди с золотом. В случае контактов Cu–Cu(1 ат.% Fe) массивные электроды, образующие контакт, характеризуются практически одинаковыми фононными спектрами, но существенно различаются чистотой. В контактах Cu–Au электроды изготавливались из одинаково чистых исходных металлов, но обладающих значительными отличиями фононных спектров. В

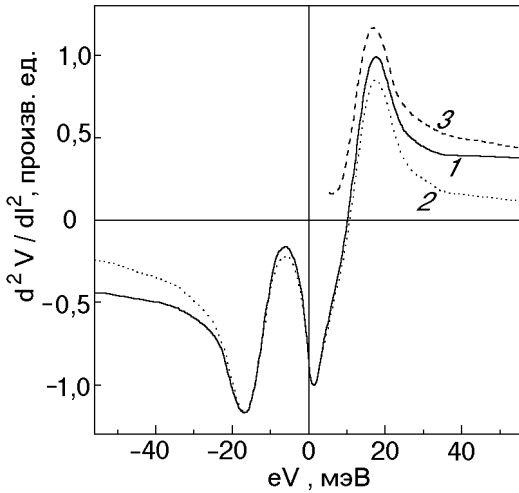


Рис. 1. Спектр микроконтакта Cu–Cu(1 ат.% Fe), измеренный на частоте 0,21 (1) и 79,5 ГГц (2). Кривая 3 – часть зависимости (1), инвертированная из области отрицательных смещений. При $V > 0$ электроны инжектируются в сплав Cu(Fe).

качестве медного электрода использовалась игла с радиусом закругления 1 мкм, полученная после электрохимической заточки медного провода диаметром 0,25 мм, и отношением сопротивлений $R_{300}/R_{4,2} \sim 85$. Измерения МК спектров выполнены по модуляционной методике с регистрацией второй гармоники тока модуляции в низкочастотных экспериментах и амплитуды выпрямленного напряжения при измерениях на высоких частотах. Детальное описание техники эксперимента приведено в работе [11].

На рис. 1 представлены МК спектры контакта Cu–Cu (1 ат.% Fe) для двух полярностей приложенного смещения: при $V > 0$ поток электронов направлен из медного электрода в Cu(Fe). Спектры измерены при частотах модуляции 0,21 (кривая 1) и 79,5 ГГц (кривая 2). Зависимость для частоты 0,21 ГГц полностью совпадает с зависимостью, полученной традиционным методом с низкочастотной модуляцией*, и хорошо воспроизводит спектр аналогичного контакта, приведенный в работе [6].

Как следует из рис. 1, МК спектры гетероконтакта Cu–Cu(Fe) обладают значительной асимметрией. Кроме ярко выраженной особенности при малых смещениях, обусловленной рассеянием электронов

проводимости на примесных атомах железа (эффект Кондо), в спектре наблюдается существенное различие как высоты фоновых линий при $eV \sim \pm 17$ мэВ, так и уровня фонового сигнала при больших смещениях. Чтобы это подчеркнуть, часть спектра при отрицательных напряжениях инвертирована в область положительных смещений (кривая 3). При измерении на частоте 79,5 ГГц асимметрия спектра возрастает. Об этом можно судить по уменьшению интенсивности фоновой особенности при $eV \sim + 17$ мэВ. Зависимости для 0,21 и 79,5 ГГц специально совмещены при $eV \sim - 17$ мэВ и совпадают в области Кондо минимума. Правомерность такой процедуры обусловлена тем, что в упомянутых областях энергий нелинейные вклады в проводимость контакта связаны с быстрыми процессами рассеяния электронов на фононах и магнитных примесях с характерными частотами ($\sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ [11,14]), значительно превосходящими частоту модуляции тока в эксперименте. Кроме того, все измерения были выполнены в пределе малых сигналов ($\sim 1 \text{ мкВ}$), когда амплитуда измеряемого сигнала линейно зависит от мощности электромагнитного облучения.

Согласно результатам работ [8,10], загрязнение одного из электродов гетероконтакта (т.е. уменьшение упругой длины свободного пробега электронов в этом электроде) приводит к одинаковому ослаблению в обоих электродах как интенсивности спектральных особенностей, так и амплитуды фонового сигнала. Однако из результатов на рис. 1 видно, что, хотя отношение интенсивности фоновой особенности к величине фона одинаково для обеих полярностей смещения, их абсолютные значения существенно отличаются. Причем асимметрия спектров наблюдается для обеих использованных частот. Следуя [6], разумно предположить, что наблюдаемая в наших экспериментах асимметрия МК спектров обусловлена вкладом термоэлектрического эффекта Зеебека в измеряемый сигнал. При малых длинах упругого и неупругого пробегов электронов и фононов в контакте ($l_i, l_e, l_r, l_{ph} \ll d$, где d – диаметр контакта), что характерно для теплового режима МК спектроскопии, зависимость асимметричной части дифференциального сопротивления

* Этого и следовало ожидать, учитывая, что частота модуляции 0,21 ГГц значительно меньше характерной частоты самого медленного релаксационного процесса в контакте – релаксации температуры с характерной частотой $f_T \sim 1 \text{ ГГц}$ [13].

гетероконтакта от приложенного смещения определяется выражением [9,15]

$$R_d^a(V_c) = R_0 \Delta S(T_c) \left[\frac{\rho_1 \rho_2}{(L_1 \rho_2 + L_2 \rho_1)(\rho_1 + \rho_2)} \right]^{1/2}, \quad (1)$$

где $R_d^a(V) = 1/2 [R_d(V^+) - R(V^-)]$, $R_0 \equiv R_d(V=0)$ — сопротивление контакта; ρ_1, ρ_2 — удельные сопротивления и L_1, L_2 — числа Лоренца для разнородных составных частей контакта; ΔS — дифференциальная термоэдс контактирующих металлов. Связь между температурой контакта и напряжением на нем задается соотношением

$$T_c = |V_c| \left[\frac{\rho_1 \rho_2}{(L_1 \rho_2 + L_2 \rho_1)(\rho_1 + \rho_2)} \right]^{1/2}. \quad (2)$$

Величины под знаком корня являются характеристиками металлов непосредственно в приконтактных зонах, поэтому они могут значительно отличаться от аналогичных параметров для массивных электродов из-за внесения структурных дефектов и поверхностных загрязнений в объем контакта при его образовании. Однако величины ρ и L входят в формулы (1), (2), связывающие $R_d^a(V_c)$ и $\Delta S(T_c)$ и V_c с T_c , в одинаковом соотношении, поэтому можно сравнить полученные нами экспериментальные зависимости для асимметричной части дифференциального сопротивления $R_d^a(V_c)$ с температурной зависимостью дифференциальной термоэдс $E(T)$ пары Cu-Cu(Fe), подбирая одинаковый масштабный множитель по вертикальной и горизонтальной осям. Результаты такого сравнения представлены на рис. 2. Масштабный коэффициент для кривой 2 выбран равным 1,47, чтобы значения $\Delta S(T_c)$, рассчитанные по формуле (1), не превосходили величину термоэдс $E(T)$ пары Cu-Cu(Fe) [16,17]. При этом связь между температурой контакта и напряжением на нем имеет вид

$$T_c [K] = 1,47 [\text{град}/\text{мВ}] V_c [\text{мВ}],$$

практически совпадая с данными работы [6]. Кривая 3 на рис. 2, рассчитанная для частоты модуляции 79,5 ГГц при том же значении

а* В меди характерное время релаксации фононов с дебаевскими энергиями $\tau_{\text{ph-e}} \sim 2 \cdot 10^{-10}$ с и для частоты 0,21 ГГц имеет место обратное неравенство.

ш

т** Нельзя уменьшить расчетные значения ΔS на кривой 3 простым увеличением масштабного коэффициента, так как это приведет к существенному возрастанию значений температуры контакта при ВЧ измерениях при тех же величинах постоянного смещения, что противоречит экспериментам [11], свидетельствующим об уменьшении нагрева контакта при высокочастотной модуляции.

н

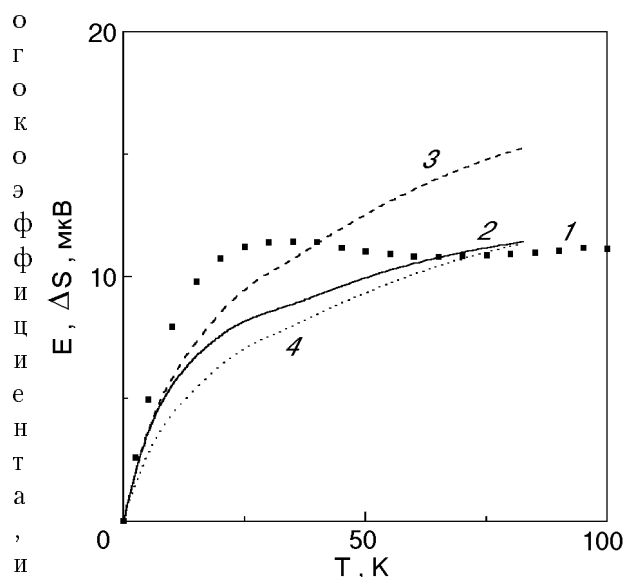


Рис. 2. Температурная зависимость дифференциальной термоэдс пары Cu-Cu(1 ат.% Fe) (1) и значений $\Delta S(T_c)$, рассчитанных по формулам (1), (2) для различных частот, ГГц: 0,21 (2), 79,5 (3) и скорректированных данных для 79,5 ГГц (4).

сколько выше зависимости для 0,21 ГГц, и их расхождение возрастает с увеличением температуры (напряжения) контакта. Проанализируем возможные причины такого различия. Хорошо известно [16], что термоэдс фононного увлечения обратно пропорциональна времени фонон-электронной релаксации $S_g \sim \tau / (\tau + \tau_{\text{ph-e}})$, где τ — характерное время других релаксационных процессов. Следовательно, S_g уменьшается при замедлении процесса передачи энергии от фононов к электронной подсистеме металла. В экспериментах на высокой частоте $\Omega = 79,5$ ГГц ($\Omega \tau_{\text{ph-e}} \gg 1$)* неравновесные фононы не успевают передать электронам свою избыточную энергию за период ВЧ поля и вклад эффекта увлечения в термоэдс должен ослабляться в противоположность данным на рис. 2. По-видимому, нормировка МК спектров на рис. 1, обычно проводимая в высокочастотной МК спектроскопии для учета электродинамического рассогласования контакта с ВЧ трактом на различных частотах [11], в наших экспериментах не совсем корректна. Это связано с тем обстоятельством, что в данном случае нелинейный вклад в электропроводность

контакта имеет частотнозависимую компоненту S_g с существенной частотной дисперсией даже при малых напряжениях на контакте. Поэтому более реалистичным, на наш взгляд, будет нормирование асимметричных частей дифференциального сопротивления для различных частот ВЧ модуляции**. Кривая 4 на рис. 2 представляет термоэдс контакта, рассчитанную по формуле (1), исходя из нормированных значений асимметричной части дифференциального сопротивления на частоте 79,5 ГГц. В этом случае, как видно на рисунке, зависимость $\Delta S(T_c)$ располагается ниже кривой для частоты 0,21 ГГц в полном соответствии с ожидаемым уменьшением вклада от термоэдс увлечения, о котором упоминалось выше. Различие кривых (2 и 4) по величине сравнимо с величиной абсолютной термоэдс фоннного увлечения (например, для меди $\sim 1,5$ мкВ) [16].

Расчетные зависимости $\Delta S(T_c)$ (рис. 2, кривые 2, 4) для обеих частот ВЧ поля отличаются от температурного хода термоэдс пары Cu-Cu(Fe). Однако здесь следует учесть, что расчеты выполнены по формулам для теплового режима МК спектроскопии, тогда как реальный режим пролета электронов в исследованных контактах был диффузионным, судя по наличию в МК спектрах Cu-Cu(Fe) (рис. 1) интенсивной линии фоннного спектра меди. В связи с изложенным несомненный интерес представляют расчеты кинетики термоэлектрических явлений на высоких частотах в микроконтактах, которые позволят понять природу протекающих процессов и провести более корректное сравнение полученных экспериментальных данных с теорией.

Вторая серия экспериментов была выполнена на гетероконтактах Cu-Au, образованных из металлов одинаковой чистоты (использовались электролитические медь и золото), фоннные спектры которых значительно отличаются. В связи с тем, что при сближении массивных электродов контакты создавались неконтролируемым образом, индивидуальные объемы меди и золота в объеме контакта могли сильно изменяться. Это приводило к соответствующей модификации суммарного МК спектра: от уменьшения интенсивности до полного исчезновения спектральных линий, характерных для одного из электродов. Поэтому для настоящих исследований были отобраны только те гетероконтакты, МК спектры которых представляли собой суперпозицию спектров электрон-фоннного взаимодействия меди и золота. Спектр

о
д
н
о
г
о
и
з
т
а
к
и
х
к
о
н
т
а
к
т
о
в
,
и
з
м
е
р
е
н
н
ы
й
п
р
и
а

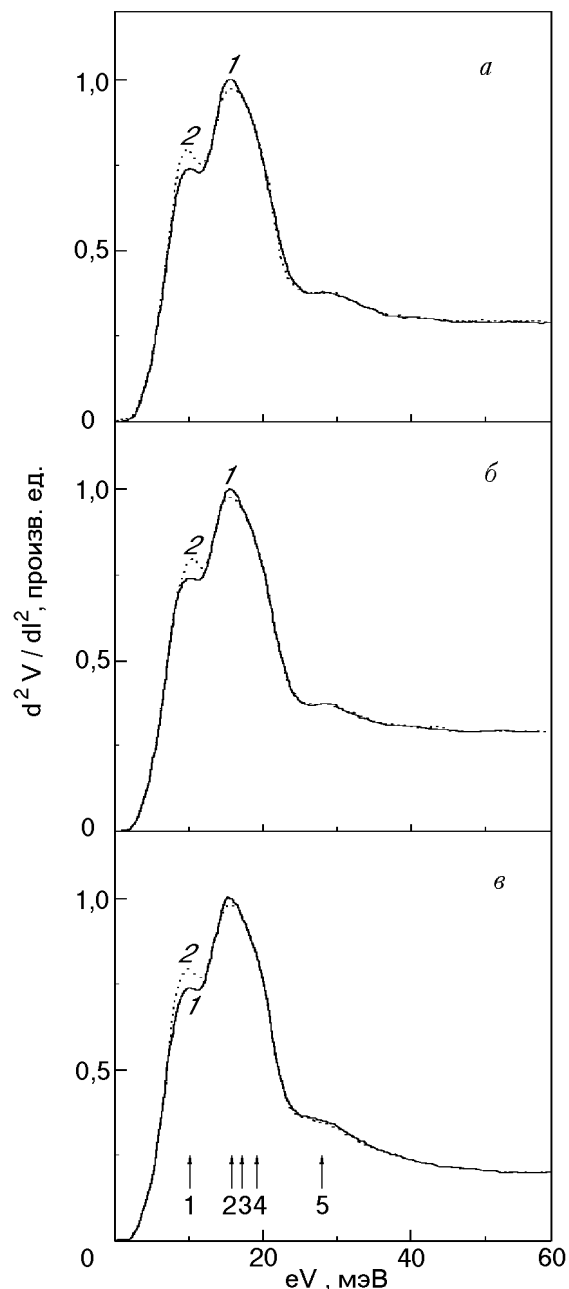


Рис. 3. Спектры контакта Cu-Au с сопротивлением $R_0 = 3,3$ Ом при различных полярностях приложенного смещения: (1) — положительный потенциал на электроде из меди, (2) — обратная полярность смещения. Измерения выполнены на частотах: 3747 Гц (а), 0,7 ГГц (б) и 3,7 ГГц (в).

х частотах модуляции в двух полярностях приложенного смещения, представлен на рис. 3. Наблюдаемые особенности соответствуют максимумам для поперечных и продольных ветвей фоннных спектров контактирующих металлов, положение которых указано стрелками в нижней части рисунка. Как видно на рис. 3, интенсивность спектральных линий заметным образом изменяется при изменении полярности

приложенного смещения, однако уровень фонового сигнала при больших энергиях не зависит от полярности и остается постоянным.

Отмеченные выше особенности МК спектров нельзя объяснить проявлением термоэлектрического эффекта, рассмотренного выше для контактов Cu–Cu(Fe). Поскольку, во-первых, в спектрах микроконтакта Cu–Au (рис. 3) не наблюдается увеличение степени асимметрии с увеличением смещения, как это имеет место для Cu–Cu(Fe) (рис. 1), а, во-вторых, значения абсолютных термоэдс для меди и золота практически одинаковы [16], поэтому и термоэлектрический вклад в нелинейность вольт-амперной характеристики должен быть пренебрежимо мал.

Впервые асимметрия МК спектров гетероконтактов Cu–Au, аналогичная показанной на рис. 3, экспериментально исследована в работе [7], авторы которой привлекли для интерпретации своих результатов теоретические расчеты эффекта дрейфового увлечения электронов неравновесными фононами [9,10]. Согласно [10], при сильном упругом рассеянии фононов в контакте ($l_r \ll d$) диффузионный дрейф неравновесных фононов из объема контакта в массивные берега приводит к ускорению электронного потока в одном проводнике и его торможению в другом. В случае биметаллического контакта фононное увлечение электронов при нормальных процессах электрон-фононного рассеяния вызывает уменьшение интенсивности МК спектра того металла, в который инжектируются электроны, и увеличивает амплитуду линий спектра другого проводника. Если в металле преобладают процессы электрон-фононного рассеяния с перебросом, как это имеет место при рассеянии на поперечных акустических фононах в меди и золоте, то знак асимметрии спектра изменяется на противоположный. Степень асимметрии спектра, т.е. отношение его асимметричной части к симметричной, пропорциональна отношению l_r/d . Эффект дрейфового увлечения не влияет на величину фона в МК спектре, уровень которого должен сохраняться для обеих полярностей приложенного к контакту смещения [10].

Наши данные на рис. 3,а хорошо согласуются с результатами работы [7] и полностью укладываются в рамки теоретических предсказаний [10]. Действительно, из рис. 3,а следует, что при инжекции электронов в медный электрод увеличивается интенсивность максимума линии поперечных фононов меди ($eV \sim 17$ мэВ), в

обратной полярности (инжекция осуществляется в электрод из золота) возрастает интенсивность линии поперечных фононов золота ($eV \sim 10$ мэВ), уровень фона остается одинаковым для обеих кривых. Воспользовавшись значениями характерных параметров (ρl) для меди и золота [19], по формуле $R_0 = 8[(\rho l)_1 + (\rho l)_2]/3\pi d^2$ можно определить диаметр контакта ($d \sim 20$ нм) и, исходя из различия спектров на рис. 3,а, оценить упругую длину пробега фононов в контакте. Полученные значения $l_r \sim 1-2$ нм совпадают с предыдущими оценками [7,11]. Повышение частоты модуляции тока до 0,7 ГГц, близкой к частоте тепловой релаксации контакта, не привело к каким-либо изменениям МК спектров (см. рис. 3,б). При измерениях на частоте 3,7 ГГц (рис. 3,в), сравнимой с характерными частотами фонон-электронной релаксации в золоте ($\tau_{ph-e}^{-1} = 2$ ГГц) и меди ($\tau_{ph-e}^{-1} = 5$ ГГц), величина асимметрии спектров сохранилась, однако уровень фона, как и следовало ожидать, заметно понизился из-за уменьшения на высоких частотах вклада в спектр, обусловленного реабсорбцией неравновесных фононов [11].

Для интерпретации результатов ВЧ измерений воспользуемся выражением для МК спектра гетероконтакта из работы [10]:

$$\frac{d^2 V}{dI^2}(eV) \sim \sum_{n=1}^2 \frac{d_n}{v_{F_n}} \left[g_n^{(1)}(eV) + Q_n(eV) g_n^{(2)}(eV) + 2 \int_0^{|eV|} Q_n(\omega) g_n^{(2)}(\omega) \frac{d\omega}{\omega} + (-1)^n \operatorname{sgn}(eV) g_n^{(2)}(eV) \right], \quad (3)$$

здесь v_F — скорость Ферми, а суммирование по n учитывает парциальные вклады металлов. Функции $g^{(i)}(eV)$ ($i = 1, 2$) описывают спектр ЭФВ для процессов спонтанного и стимулированного испускания фононов. Они различаются только величиной геометрического K -фактора, который для $g^{(2)}$ обладает более слабой направленностью. Коэффициент $Q(\omega)$ определяется кинетикой неравновесных фононов в контакте и для модели контакта в форме длинного канала в случае полной реабсорбции фононов равен $\sim 0,3$ при дебаевских энергиях [18]. В формуле (3) первый член представляет МК спектр ЭФВ, второй — перенормировку этого спектра, вызванную взаимодействием электронов с неравновесными фононами, третий — фон в спектре при больших энергиях, а

четвертый определяет асимметрию спектра при различных направлениях тока через контакт.

Если частота модуляции тока достаточно высока ($\Omega\tau_{\text{ph-e}} > 1$), то нарушается соответствие между числом неравновесных фононов и мгновенным значением переменного напряжения на контакте. Число актов реабсорбции фононов, происходящих синхронно с изменением напряжения, уменьшается, и амплитуда фоновой части спектра падает. Остальные составляющие спектра (3) характеризуются временем электрон-фононного рассеяния ($\tau_{\text{e-ph}} \ll \tau_{\text{ph-e}}$, $\Omega\tau_{\text{e-ph}} \ll 1$), поэтому их величина в исследованном диапазоне частот должна оставаться постоянной. Экспериментальные результаты на рис. 3 хорошо подтверждают рассмотренный выше механизм модификации МК спектра на высоких частотах.

Таким образом, в настоящей работе обнаружено влияние частоты электромагнитного облучения на асимметрию вольт-амперных характеристик гетероконтактов различного типа, которая связывается со спецификой релаксации неравновесных фононов. Полученные результаты существенным образом дополняют данные предыдущих исследований [6,7]. В заключение заметим, что несомненный интерес представляют теоретические расчеты асимметричных эффектов в биметаллических контактах на высоких частотах и их сравнение с изложенными здесь экспериментальными результатами.

Автор глубоко признателен И. К. Янсону за постоянное внимание и поддержку при выполнении данных исследований и А. Г. Шкорбатову за плодотворные дискуссии.

1. И. К. Янсон, А. В. Хоткевич, *Атлас микроконтактных спектров и электрон-фононного взаимодействия в металлах*, Наукова думка, Киев (1986).

2. И. К. Янсон, О. И. Шкляревский, *ФНТ* **12**, 899 (1986).
3. A. G. M. Jansen, A. P. van Gelder, and P. Wyder, *J. Phys.* **C13**, 6073 (1980).
4. А. Г. Батрак, И. К. Янсон, *ФНТ* **5**, 1404 (1979).
5. H. Sato, K. Yonemitsu, and J. Bass, *Phys. Rev.* **35**, 2484 (1987).
6. Ю. Г. Найдюк, Н. Н. Грибов, О. И. Шкляревский, А. Г. М. Янсен, И. К. Янсон, *ФНТ* **11**, 1053 (1985).
7. Ю. Г. Найдюк, И. К. Янсон, *ФТТ* **30**, 1535 (1988).
8. Р. И. Шехтер, И. О. Кулик, *ФНТ* **9**, 46 (1983).
9. И. Ф. Ицкович, И. О. Кулик, Р. И. Шехтер, *ФНТ* **11**, 886 (1985).
10. И. Ф. Ицкович, Р. И. Шехтер, *ФНТ* **11**, 1176 (1985).
11. О. П. Балкашин, И. К. Янсон, Ю. А. Пилипенко, *ФНТ* **13**, 389 (1987).
12. О. Р. Balkashin, *ФНТ* **18**, 659 (1992).
13. О. П. Балкашин, И. К. Янсон, В. С. Соловьев, А. Ю. Красногоров, *ЖТФ* **52**, 811 (1982).
14. M. A. Blachly and N. Giordano, *Phys. Rev.* **51**, 12537 (1995).
15. Yu. Naidyuk, M. Reiffers, A. N. Omelyanchouk, I. K. Yanson, A. G. M. Jansen, P. Wyder, D. Gignoux, and D. Schmitt, *Physica* **B194-196**, 1321 (1994).
16. Ф. Дж. Блатт, П. Л. Шредер, К. Л. Фойлз, Д. Грейг, *Термоэлектродвижущая сила металлов*. Металлургия, Москва (1980).
17. В. М. Бейлин, И. Я. Левин, И. Л. Рогельберг, В. А. Черенков, *ФММ* **42**, 288 (1976).
18. И. О. Кулик, *ФНТ* **11**, 937 (1985).
19. И. К. Янсон, *ФНТ* **9**, 676 (1983).

Point-contact spectroscopy of metallic heterocontacts at high-frequencies

О. Р. Balkashin

The electron-phonon spectra singularities have been studied by point-contact spectroscopy in heterocontacts made of different metals Cu-Cu(1 at.% Fe) and Cu-Au. The high-frequency measurements have allowed us to distinguish and identify the spectrum contributions caused by nonequilibrium phonon relaxation processes.