

РОЗМІРНИЙ ЕФЕКТ У ПРОВІДНОСТІ ПОЛІКРИСТАЛІЧНИХ ПЛІВОК НІКЕЛЮ

А.Г. Басов¹, Ю.О. Шкурдода², Л.В. Дехтярук³

¹Сумський державний університет, вул. Римського-Корсакова, 2, 40007, м. Суми, Україна
E - mail: agbasov@ukr.net

²Сумський державний педагогічний університет ім. А.С. Макаренка, вул. Роменська, 87
40002, м. Суми, Україна

³Харківський державний технічний університет будівництва та архітектури
вул. Сумська, 40, 61002, м. Харків, Україна

Експериментально досліджено провідність полікристалічних плівок нікелю при кімнатних температурах. Шляхом обробки експериментальних даних із використанням моделі Маядаса і Шацкеса встановлені розмірні залежності імовірності дзеркального відбиття електронів зовнішніми поверхнями зразка та імовірності дифузного розсіяння носіїв заряду міжкристалічними межами.

Ключові слова: полікристалічні плівки, модель Маядаса-Шацкеса, термічне випаровування, параметр дзеркальності, внутрішній та зовнішній розмірні ефекти.

Вступ

Значний інтерес до вивчення кінетичних ефектів у тонких металевих провідниках зумовлено як широким їх використанням у якості елементної бази сучасної мікроелектроніки, так і можливістю отримання докладної інформації щодо процесів релаксації носіїв заряду на зовнішніх і внутрішніх межах провідника [1-3]. Характерною особливістю електронного транспорту в полікристалічних плівках у порівнянні з масивними зразками, з одного боку, є взаємодія носіїв заряду із зовнішніми межами, що призводить до зовнішнього розмірного ефекту (залежності транспортних коефіцієнтів від товщини плівки), з іншого боку, у разі коли характерний розмір кристалітів L у площині плівки сумірний або менший за довжину вільного пробігу електронів l , то ефективні (відповідальні за ефект [4]) носії заряду або розсіюються межами зерен, або змінюють свою швидкість руху при проходженні через міжкристалітні межі внаслідок різної орієнтації суміжних кристалітів. Відповідно, у полікристалічному провіднику виникає внутрішній розмірний ефект, подібний до зовнішнього розмірного ефекту, але, разом з тим, він

принципово відрізняється від останнього, оскільки при зовнішньому розмірному ефекті розсіяння носіїв заряду відбувається на поверхні “метал - вакуум”, а при внутрішньому - на межі “метал - метал”.

Вперше внутрішній розмірний ефект досить коректно було враховано Маядасом та Шацкесом [5], які запропонували модель полікристалічної плівки, у якій кристаліти мають однаковий середній розмір L у площині провідника, а їх межі або перпендикулярні, або паралельні поверхням. Вважаючи, що потенціал на міжкристалітних межах можна описати одномірною δ - функцією, а розсіяння електронів відбувається лише на перпендикулярних до вектора напруженості електричного поля міжкристалітних межах, Маядасом та Шацкесом був отриманий загальний аналітичний вираз для питомої провідності σ_g полікристалічної плівки. Однак, отримана аналітична розмірна залежність провідності полікристалічної плівки виявилася досить складною, щоб можна було б провести безпосереднє порівняння з результатами експериментальних досліджень. Тому, в роботі [6] були запропоновані прості асимптотичні вирази для провідності полікристалічних плівок, які дозволяють

не лише відносно просто проаналізувати розмірну залежність провідності, а й отримати залежність коефіцієнта дзеркальності і ймовірності дифузного розсіювання електронів на межах зерен від товщини плівки за методикою, яка була запропонована у праці [7], що і є метою даного повідомлення.

Постановка експерименту

Плівки нікелю були отримані шляхом термічного випаровування зі швидкістю 3 нм/с у вакуумі (тиск залишкових газів $P=10^{-4}$ Па) за методом, який докладно описаний у роботі [8]. Конденсація зразків здійснювалася на скляні поліровані підкладки (для дослідження електропровідності) та на вуглецеві плівки для дослідження кристалічної структури. Стабілізація електрофізичних властивостей та кристалічної структури досягалася шляхом ізохронного відпалу за схемою "нагрівання↔охолодження" у інтервалі температур 300 – 700 К.

Як показали електроннографічні дослідження (рис. 1, табл. 1), у всьому дослідженому інтервалі товщин та температур відпалу в плівкових конденсатах спостерігалось утворення ГЦК-фази з параметром кристалічної решітки $a = 0,351 \pm 0,001$ нм, що добре узгоджується зі значенням $a_0 = 0,3524$ нм [9] для масивних зразків Ni, що вказує на задовільну чистоту конденсатів, тобто на відсутність у них домішок атомів залишкових газів.

Проведені електронно-мікроскопічні дослідження показали, що невідпалені зразки всіх товщин мають дрібнозернисту структуру з середнім розміром зерен $L < 10$ нм ($d < 50$ нм) і $L \sim 10$ нм ($d > 50$ нм). У результаті відпалювання і пов'язаних з ним рекристалізаційних процесів у всіх плівках, в залежності від їх товщини, спостерігається збільшення розмірів кристалітів. Особливо суттєвим воно було у плівках з $d > 50$ нм. За електронно-мікроскопічними знімками було встановлено, що величина середнього розміру зерен збігається з товщиною плівки, тобто зразки мають моноблочну по

товщині структуру.

Опір плівкових зразків вимірювався двозондовим методом за допомогою цифрового приладу В7-32.

На рис. 2 наведена залежність питомої провідності плівок нікелю від товщини d . Така поведінка залежності обумовлена як внутрішніми, так і зовнішніми розмірними ефектами в електропровідності плівок нікелю.

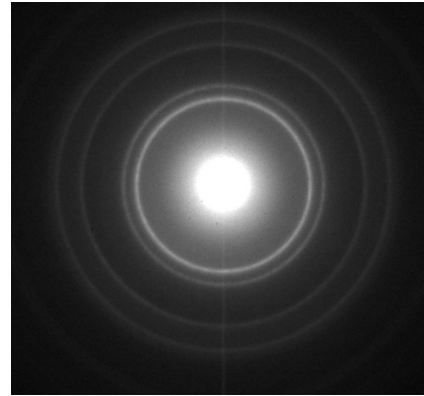


Рис. 1. Електроннограма плівки Ni, що пройшла термообробку при температурі $T_b=700$ К.

Таблиця 1

Результати розшифровки електроннограми від плівки Ni ($d=40$ нм), що пройшла термообробку при температурі $T_b=700$ К

I, в.о.		d_{hkl} , нм	hkl	фаза
Д.С.	100	0,211	111	Ni(ГЦК)
С.	60	0,183	200	Ni(ГЦК)
сер.	45	0,128	220	Ni(ГЦК)
сер.	43	0,110	311	Ni(ГЦК)

Д.С. – дуже сильна, С. – сильна, сер. – середня.

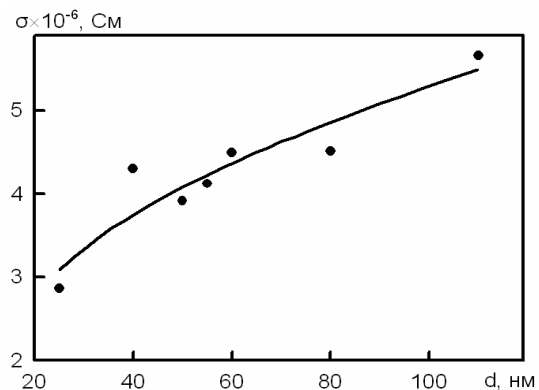


Рис. 2. Залежність провідності плівок нікелю від товщини.

Теоретичний аналіз

Провідність тонких плівок з полікристалічною моноблочною структу-

рою можна описати у рамках моделі Маядаса і Шацкеса (модель МШ) [5], згідно з якою питома провідність провідника дорівнює:

$$\frac{\sigma_{\delta}}{\sigma_0} = f(\alpha) - \frac{3}{\pi k} \int_0^{\pi/2} d\varphi \cos^2 \varphi \int_0^1 dz \frac{(z - z^3)(1 - E)}{H^2} \frac{2 - q_1 - q_2 + (q_1 + q_2 - 2q_1q_2)E}{1 - q_1q_2E^2} \quad (1)$$

$$E = \exp\left\{-\frac{kH}{z}\right\}, \quad H = 1 + \frac{\alpha}{\cos \varphi \sqrt{1 - z^2}}, \quad k = \frac{d}{l},$$

де σ_{δ} - коефіцієнт питомої електропровідності полікристалічної плівки товщиною d ; σ_0 - провідність необмеженого ($d \rightarrow \infty$) металевого провідника з монокристалічною структурою; l - довжина вільного пробігу електронів, q_j ($j = 1, 2$) - ймовірність дзеркального відбиття носія

заряду j -ю зовнішньою поверхнею зі збереженням енергії і тангенційної по відношенню до поверхні компоненти квазіімпульсу (параметри Фукса).

Функція $f(\alpha)$ у співвідношенні (1) визначає провідність масивного ($d \rightarrow \infty$) полікристалічного зразка і дорівнює [5]:

$$f(\alpha) = 1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \cong \begin{cases} 1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2, & \alpha \ll 1, \\ \frac{3}{4\alpha} - \frac{3}{5\alpha^2}, & \alpha \gg 1. \end{cases} \quad (2)$$

З формули (1) неважко бачити, що у моделі МШ вплив меж зерен на провідність провідника враховується за допомогою лише одного параметра $\alpha = \frac{l}{L} \frac{R}{1 - R}$ (L - середня ширина кристалітів у площині плівки, R - ймовірність дифузного розсіяння електронів міжкристалітними межами), який і визначає внесок меж зерен у сумарний опір тонкої плівки. Отримана Маядасом та Шацкесом формула для питомої провідності полікристалічної плівки переходить у формулу Лукаса [10] (у випадку, коли $q_1 \neq q_2$), або у

формулу Фукса [11] (за умови, коли $q_1 = q_2 = q$) при $\alpha \rightarrow 0$, тобто, коли або межі зерен абсолютно прозорі для носіїв заряду ($R \rightarrow 0$), або плівка "однозеренна" ($L \rightarrow \infty$).

Якщо нормована на довжину вільного пробігу електронів товщина плівки більше одиниці, то експонентами, які містяться у підінтегральному виразі формули (1) можна знехтувати [12] і для провідності полікристалічної плівки можна отримати наступний асимптотичний вираз [6]:

$$\frac{\sigma_{\delta}}{\sigma_0} = f(\alpha) - \frac{3(2 - q_1 - q_2)}{16k} \left\{ 1 - \frac{32}{3\pi} \alpha + 12\alpha^2 + \frac{16}{\pi} \{5 - (4 - 5\alpha^2)I\} \alpha^3 - 40\alpha^4 \right\}, \quad (3)$$

$$I = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{1 - \alpha^2}} \ln \frac{1 + \sqrt{1 - \alpha^2}}{\alpha}, & \alpha \leq 1, \\ \frac{\arccos\left(\frac{1}{\alpha}\right)}{\sqrt{\alpha^2 - 1}}, & \alpha > 1. \end{cases} \quad (4)$$

Аналітичний вираз (3) для провідності полікристалічної плівки можна використати для обробки експериментальних даних за методикою, яка вперше була запропонована у роботі [7]. Для

визначення залежності параметра дзеркальності Фукса та ймовірності дифузного розсіяння електронів на межі зерна від товщини провідника необхідно розв'язати наступну систему рівнянь [7]:

$$\begin{cases} \sigma_{\delta} = \sigma_{\delta\bar{a}\bar{e}\bar{n}}, \\ \sigma'_m = \frac{\partial \sigma_{\delta}}{\partial d} + \frac{\partial \sigma_{\delta}}{\partial L} L' + \frac{\partial \sigma_{\delta}}{\partial q} q' + \frac{\partial \sigma_{\delta}}{\partial R} R' = \sigma'_{\delta\bar{a}\bar{e}\bar{n}}, \end{cases} \quad (5)$$

де величина σ_{δ} визначена формулою (3).

Вважаючи, що похідні по товщині $q'(d)$ та $R'(d)$ малі у порівнянні з $\frac{\partial \sigma_{\delta}}{\partial d}$,

для величини σ'_m отримаємо наступний вираз, який виконується при довільних значеннях зерномежового параметра α та параметрів Фукса q_j :

$$\begin{aligned} \frac{\sigma'_{\delta}}{\sigma_0} d = f^*(\alpha) + \frac{3(2-q_1-q_2)}{16k} \times \\ \times \left\{ 1 - \frac{64}{3\pi} \alpha + 36\alpha^2 + \frac{16}{\pi} [20 - 2(8 - 15\alpha^2)I - \alpha(4 - 5\alpha^2)I^*] - 200\alpha^4 \right\} \end{aligned} \quad (6)$$

$$f^*(\alpha) = \frac{3}{2}\alpha - \frac{3\alpha^2(2+3\alpha)}{1+\alpha} + 9\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \cong \begin{cases} \frac{3}{2}\alpha - 6\alpha^2, & \alpha \ll 1, \\ \frac{3}{4\alpha} - \frac{6}{5\alpha^2}, & \alpha \gg 1. \end{cases} \quad (7)$$

$$I^* = \begin{cases} \frac{1}{1-\alpha^2} \left(\frac{\alpha}{\sqrt{1-\alpha^2}} \ln \frac{1+\sqrt{1-\alpha^2}}{\alpha} - \frac{1}{\alpha} \right), & \alpha \leq 1, \\ \frac{1}{\alpha(\alpha^2-1)} \left(1 - \frac{\alpha^2 \arccos\left(\frac{1}{\alpha}\right)}{\sqrt{\alpha^2-1}} \right), & \alpha > 1. \end{cases} \quad (8)$$

Якщо ширина кристалітів L у площині плівки значно більша за довжину вільного пробігу електронів l , у них ($L \gg l$), або міжкристалітні межі майже прозорі для носіїв заряду ($R \ll 1$), то параметр зерномежового розсіяння $\alpha \ll 1$. Якщо ж шар металу має дрібнозернисту

структуру ($L \ll l$), або межі зерен майже не прозорі для електронів ($1 - R \ll 1$), то параметр $\alpha \gg 1$. Для зазначених граничних випадків параметра α , формули для провідності (3) та похідної по товщині від неї (6) значно спрощуються та набувають вигляду:

$$\frac{\sigma_{\delta}}{\sigma_0} \cong \begin{cases} 1 - \frac{3}{2}\alpha - \frac{3(2-q_1-q_2)}{16k} \left(1 - \frac{32}{3\pi}\alpha \right), & \alpha \ll 1, \\ \frac{3}{4\alpha} \left\{ 1 - \frac{2-q_1-q_2}{4k\alpha} \left(1 - \frac{512}{105\pi\alpha} \right) \right\}, & \alpha \gg 1, \end{cases} \quad (9)$$

$$\frac{\sigma'_d}{\sigma_0} d \cong \begin{cases} \frac{3}{2} \alpha + \frac{3(2-q_1-q_2)}{16k} \left(1 - \frac{64}{3\pi} \alpha\right), & \alpha \ll 1, \\ \frac{3}{4\alpha} \left\{1 - \frac{2-q_1-q_2}{8k\alpha} \left(1 - \frac{1024}{105\pi\alpha}\right)\right\}, & \alpha \gg 1. \end{cases} \quad (10)$$

Як було зазначено вище, отримані плівки *Ni* мають моноблочну по товщині структуру і для них виконується нерівність $\alpha \ll 1$. Також зауважимо, що для плівки, зовнішні межі якої різним чином розсіюють носії заряду, можна ввести ефективний параметр дзеркальності [12]

$$q_{eff} = \frac{q_1 + q_2}{2}, \quad (11)$$

а коефіцієнт електропровідності та її похідну по товщині можна записати у вигляді:

$$\begin{cases} 1 - \frac{3}{2} \alpha - \frac{3(1-q_{eff})}{8k} \left(1 - \frac{32}{3\pi} \alpha\right) = \frac{\sigma_{exp}}{\sigma_0}, \\ \frac{3}{2} \alpha + \frac{3(1-q_{eff})}{8k} \left(1 - \frac{64}{3\pi} \alpha\right) = \frac{\sigma'_{exp}}{\sigma_0} d. \end{cases} \quad (12)$$

Шляхом розв'язання отриманої з використанням асимптотичних співвідношень системи рівнянь відносно q_{eff} і R , можна розрахувати залежність зазначених величин від товщини полікристалічної

плівки, які наведені на рис. 3 та 4. Необхідні данні для необмеженого нікелю ($d \rightarrow \infty$) визначалися зі співвідношення $l\sigma_0^{-1} = 0.75 \cdot 10^{-11}$ Ом·см [12, 13].

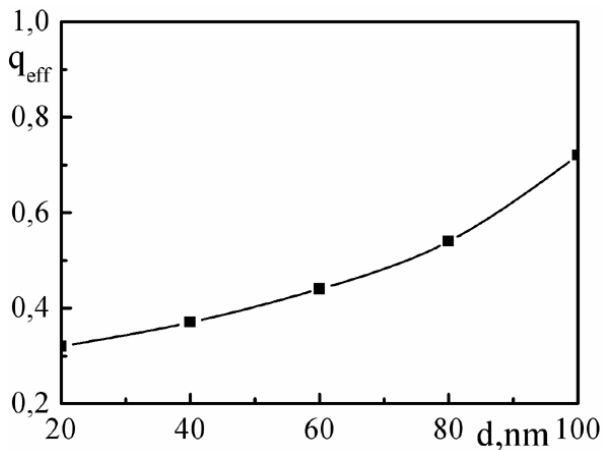


Рис. 3. Залежність ймовірності дзеркального відбиття електронів q_{eff} зовнішніми межами провідника від товщини плівки.

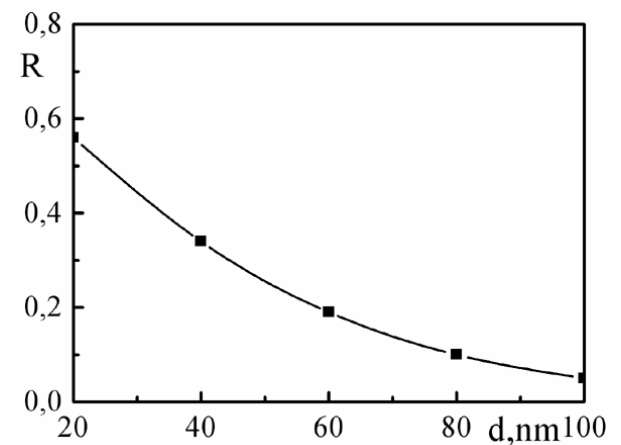


Рис. 4. Залежність ймовірності дифузного розсіяння носіїв заряду R міжкристалітними межами зразка від товщини плівки.

Із наведених кривих неважко бачити, що зі зростанням товщини полікристаліч-

ної плівки ймовірність дзеркального розсіяння електронів на межах провідника

зростає. Це зумовлено тим, що зі збільшенням товщини d зразка відбувається згладжування рельєфів зовнішніх поверхонь, зменшення їх шорсткості і, відповідно, збільшення ймовірності дзеркального відбиття електронів межами плівки. Зворотна тенденція спостерігається на залежності $R(d)$, оскільки зі збільшенням товщини плівки зменшується розорієнтація зерен, що і призводить до зменшення ймовірності дифузного розсіяння електронів на міжкристалітних межах.

Висновки

Таким чином, термічне випаровування металів у вакуумі дозволяє отримати суцільні моноблочні по товщині полікристалічні плівки, провідність яких можна адекватно описати у рамках моделі Маядаса та Шацкеса, у якій врахована залежність ймовірностей дзеркального (на зовнішніх межах) та дифузного (на межах зерен) розсіяння носіїв заряду від товщини провідника. Врахування цієї залежності при обробці експериментальних даних дозволяє розрахувати розмірну залежність зазначених величин.

Література

1. Стасюк З.В., Лопатинський А.І. Розмірні кінетичні явища в тонких плівках металів. Класичні ефекти // ФХТТ. – 2001. – Т. 2, № 4. – С. 521–542.
2. Проценко І. Ю., Саєнко В.А. Тонкі металеві плівки (технологія та властивості). – Суми: СумДУ, 2002. – 187 с.
3. Peschansky V.G. Kinetic size effects in metals in magnetic field // Soviet scientific reviews. – 1992. – V. 16, part 1. – P. 1–112.
4. Pippard A.B. The anomalous skin effect in anisotropic metals // Proc. Roy. Soc. – 1954. – V.224, №1157. – P. 273–282.
5. Mayadas A.F. and Shatzkes M. Electrical – resistivity model for polycrystalline films: the case of arbitrary reflection at external surfaces // Phys. Rev. B. – 1970. – V.1, № 4. – P. 1382–1389.
6. Білоус О.А., Дехтярук Л.В., Черноус А.М. Розмірно–кінетичні ефекти у полікристалічних металічних плівках Cu та Ni // Металлофиз. новейшие технол. – 2001. – Т. 23, № 1. – С. 43–50.
7. Верченко В.И., Колесниченко Ю.А., Гришаев В.И. Исследование размерного эффекта электропроводности сверхтонких пленок серебра // ФММ. – 1986. – Т. 62, вып. 5. – С. 923–927.
8. Лобода В.Б., Пирогова С.М., Шкурдода Ю.О. Структура та гальваномагнітні властивості плівок Ni // Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка. – 2002. – №13(46). – С. 150-158.
9. Физико–химические свойства элементов. Справочник / Под ред. В.Г. Самсонова. – Київ: Наукова думка, 1965. – 870 с.
10. Lucas M.S.P. Electrical conductivity of thin metallic films with unlike surfaces // J. Appl. Phys. – 1965. – V. 36, № 5. – P. 1632 – 1635.
11. Fuchs K. The conductivity of thin metallic films according to theory of metals // Proc. Phil. Cambr. Soc. – 1938. – V.34, №1. – P. 100–108.
12. Чопра К.Л. Электрические явления в тонких пленках. – М.: Мир, 1972. – 436 с.
13. Таблицы физических величин. Справочник. Под ред. А.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976, 1006 с.

SIZE EFFECT IN CONDUCTIVITY OF POLYCRYSTALLINE NICKEL FILMS

A.G. Basov¹, Yu. O. Shkurdoda², L.V.Dekhtyaruk³

¹Sumy State University, Rimsky-Korsakov Str., 2, 40007, Sumy, Ukraine
E-mail: agbasov@ukr.net

²Sumy State Pedagogical University, Romens'ka Str., 87
40002, Sumy, Ukraine

³Kharkiv State Technical University of Building and Architecture
Sumska Str., 40, 61002, Kharkiv, Ukraine

Dependence of conductivity of polycrystalline nickel films is observationally explored at room temperatures. By processing experimental data with use of model Mayadas and Shazkes the size dependences of probability of regular reflection of electron by external borders of the sample and probability of diffuse scattering of charge carries on borders of crystals are erected.

Key words: polycrystalline films, Mayadas and Shazkes model, thermal evaporation, parameter of smooth surface, internal and external size effects.

РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В ПРОВОДИМОСТИ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НИКЕЛЯ

А.Г. Басов¹, Ю.А. Шкурдода², Л.В. Дехтярук³

¹Сумский государственный университет, ул. Римского-Корсакова, 2, 40007, Сумы, Украина
E-mail: agbasov@ukr.net

²Сумский государственный педагогический университет, ул. Роменская, 87
40002, Сумы, Украина

³Харьковский государственный технический университет строительства и архитектуры
ул. Сумская, 40, 61002, Харьков, Украина

Экспериментально исследована зависимость проводимости поликристаллических пленок никеля при комнатных температурах. Путем обработки экспериментальных данных с использованием модели Маядаса и Шацкеса установлены размерные зависимости вероятности зеркального отражения электронов внешними поверхностями образца и вероятности диффузного рассеяния носителей заряда на границах кристаллов.

Ключевые слова: поликристаллические пленки, модель Маядаса-Шацкеса, температурное испарение, параметр зеркальности, внутренний и внешний размерные эффекты.