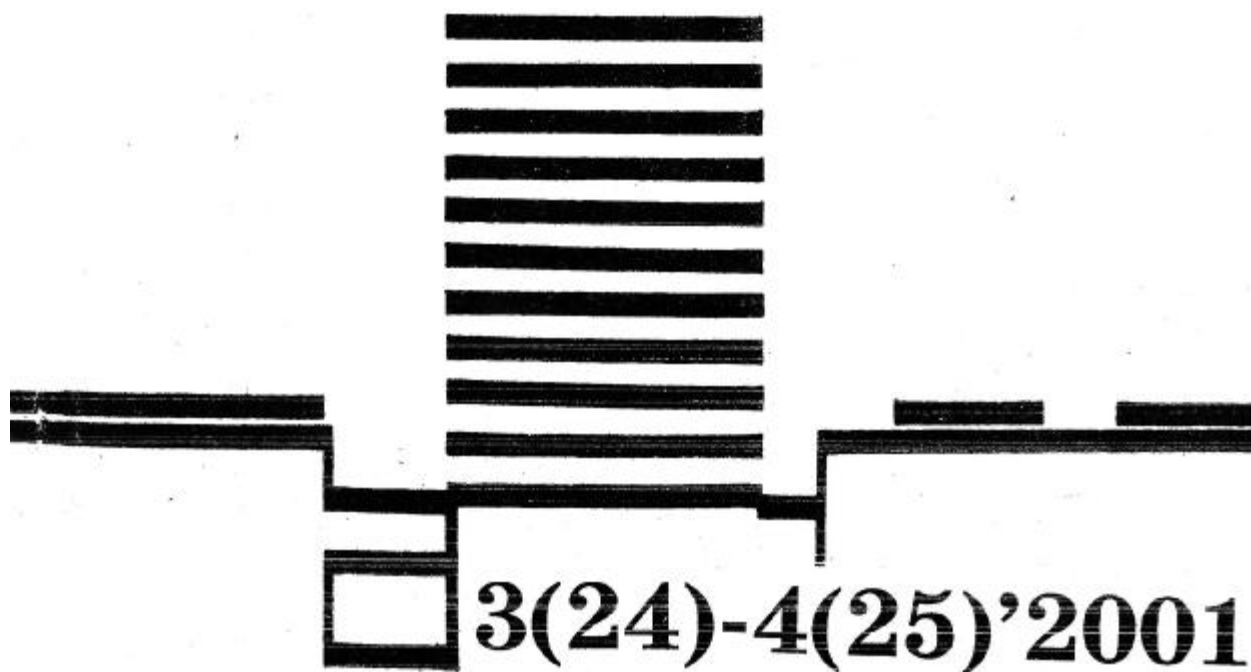


# ВІСНИК

Сумського  
державного  
університету

*Серія*

*Фізика, математика, механіка*



**3(24)-4(25)'2001**

---

## РОЗМІРНІ ЕФЕКТИ В ТЕРМІЧНОМУ КОЕФІЦІЕНТІ ОПОРУ ТА КОЕФІЦІЕНТІ РОЗСІЮВАННЯ ЕЛЕКТРОНІВ НА МЕЖІ ЗЕРЕН У ТОНКИХ МЕТАЛЕВИХ ПЛІВКАХ

*О.А.Білоус, асист.; Л.В.Дехтярук\*, доц.; С.І.Проценко, студ.;  
А.М.Чорноус, доц.*

*(\*Харківський державний технічний університет будівництва та  
архітектури)*

### ВСТУП

Процеси релаксації носіїв заряду на зовнішніх поверхнях шару металу (зовнішній розмірний ефект) і міжкристалічних межах (внутрішній розмірний ефект) обумовлюють зменшення електропровідності і температурного коефіцієнта опору (ТКО) тонких плівок у порівнянні з їх значеннями для масивних зразків.

Вперше провідність плоскопаралельного полікристалічного шару металу в умовах розмірного ефекту була розглянута Майядасом і Шацкесом (теорія МШ) [1]. Автори роботи [1] розглянули модель плівки, в якій межі кристалітів є перпендикулярні до зовнішньої поверхні зразка, а розсіювання електронів на них описується ефективним часом релаксації  $\tau$ , який залежить від ширини зерна  $L$ , довжини вільного пробігу електронів  $\lambda$  та ймовірності розсіювання носіїв заряду на міжкристалічних межах  $R$ .

Найбільшого поширення з метою визначення параметрів електропереносу набули лінеаризована та ізотропна моделі Тельє, Тоссе та Пішара (модель ТТП) [2-4], робочі співвідношення яких є наслідком апроксимації теорії МШ. Співвідношення в моделі ТТП мають ряд обмежень стосовно параметрів, які у них входять. Зокрема, лінеаризована модель ТТП відповідає експериментальній умові, коли середній розмір зерна  $L$  у напрямку протікання струму є більшим або дорівнює товщині плівки  $d$ .

У даній роботі в рамках теорії МШ проведено узагальнення виразу для ТКО полікристалічного шару металу, зовнішні поверхні якого порізно розсіюють носії заряду з урахуванням температурної зміни середнього розміру зерна та товщини зразка. Отримані асимптотичні співвідношення для товстих ( $d \gg \lambda$ ) і тонких ( $d \ll \lambda$ ) плівок, які виконуються при довільних значеннях параметрів дзеркальності та розсіювання на межі зерен, що описують релаксацію електронів на зовнішніх і внутрішніх межах плівки відповідно. Проведено розрахунок коефіцієнта розсіювання на міжкристалічній межі у плівках Ni, Cu, Cr та Co, розмірна залежність ТКО яких була досліджена експериментально.

### ТЕОРЕТИЧНІ СПІВВІДНОШЕННЯ

Температурний коефіцієнт опору полікристалічного шару металу може бути визначений так [5]:

$$\beta = \frac{d \ln R_T}{dT}, \quad (1)$$

де  $R_T$  визначає повний опір плівки і дорівнює

$$R_T = \frac{1}{\sigma_0} \cdot \frac{b}{a \cdot d \cdot F}, \quad (2)$$

де  $\sigma_0$  – питома провідність безмежового зразка з монокристалічною структурою;  $a$ ,  $b$  і  $d$  – ширина, довжина і товщина плівки. Розмірна функція  $F$ , яка визначає провідність тонкого полікристалічного шару металу в рамках теорії МШ, може бути записана у вигляді [1]

$$F \equiv \frac{\sigma}{\sigma_0} = f(\alpha) - \frac{3}{\pi k} \int_0^{\pi/2} d\Phi \cos^2 \Phi \int_0^1 dt \frac{(t-t^3)(1-\varepsilon)}{H^2(\Phi, t)} \times \frac{2-p_1-p_2+(p_1+p_2-2p_1p_2) \cdot \varepsilon}{1-p_1p_2\varepsilon^2} \quad (3)$$

$$H(\Phi, t) = 1 + \frac{\alpha}{\cos \Phi \sqrt{1-t^2}}; \quad \varepsilon = \exp\left(-\frac{kH}{t}\right); \quad k = \frac{d}{\lambda},$$

де  $p_i$  ( $i=1, 2$ ) – параметр дзеркальності Фукса, який визначає ймовірність відбиття носіїв заряду із збереженням енергії та тангенціальної відносно поверхні складової квазіімпульсу;

$\alpha = \frac{\lambda}{L} \frac{R}{(1-R)}$  – параметр зерномежового розсіювання.

Функція  $f(\alpha)$  визначає провідність полікристалічного зразка великої товщини ( $d \rightarrow \infty$ ) і в рамках моделі МШ виражається

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

Підставляючи (2) в (1), отримуємо загальний аналітичний вираз для ТКО із урахуванням температурної залежності геометричних розмірів зразка, коефіцієнтів  $p_i$  і  $R$ , а також температурної зміни середнього розміру кристалітів

$$\beta = \beta_0 - (\chi_d - \chi_\lambda) \frac{\partial \ln F}{\partial \ln k} - \left( \chi_\lambda - \chi_L + \frac{1}{1-R} \chi_R \right) \frac{\partial \ln F}{\partial \ln \alpha} - \chi_p \frac{\partial \ln F}{\partial \ln p}, \quad (5)$$

де  $\chi_\lambda = \frac{d \ln \lambda}{dT}$ ,  $\chi_L = \frac{d \ln L}{dT}$ ,  $\chi_R = \frac{d \ln R}{dT}$ ,  $\chi_p = \frac{d \ln p}{dT}$  – коефіцієнти, які визначають температурну зміну довжини вільного пробігу електронів, середнього розміру зерна, коефіцієнта розсіювання носіїв заряду на межах зерна та параметра дзеркальності Фукса відповідно.

Зміна товщини пластини з температурою із урахуванням властивостей підкладки, на яку напильється плівка, визначається співвідношенням [6]

$$\chi = \chi_d \left\{ 1 + \frac{2\mu}{1-\mu} \left( 1 - \frac{\chi_s}{\chi_d} \right) \right\}, \quad (6)$$

де  $\chi_d = \frac{d \ln d}{dT}$  – температурна зміна товщини шару металу;  $\mu$  – коефіцієнт Пуассона;  $\chi_s$  – температурний коефіцієнт розширення матеріалу підкладки.

Температурний коефіцієнт питомого опору безмежового зразка може бути визначений так [5]:

$$\beta_0 = -\frac{d \ln \sigma_0}{dT} - \chi_d, \quad (7)$$

де враховано, що коефіцієнти які визначають температурну зміну ширини і довжини плівки, збігаються внаслідок того, що розміри плівки вздовж осей  $y$  і  $z$  нескінченно великі.

В області низьких температур коефіцієнти відбиття електронів від зовнішніх і внутрішніх меж практично не залежать від температури [7]. В області проміжних температур еволюція межі зерна обумовлює залежність від температури коефіцієнта  $R$ , але його зміна є незначною [8, 9]. Нехтуючи температурною залежністю коефіцієнтів  $p$  і  $R$  і підставляючи формулу (3) в (5) для температурного коефіцієнта опору, отримуємо

$$\frac{\beta}{\beta_0} = 2 - \left(1 + \frac{2\chi}{\beta_0}\right) \frac{J}{F} - \left(1 + \frac{\chi}{\beta_0} + \frac{\chi_L}{\beta_0}\right) \frac{J_\alpha}{F} + \frac{2\chi}{\beta_0}, \quad (8)$$

де

$$J = f(\alpha) - \left\langle \frac{k\varepsilon H}{t} \left\{ G(1-\varepsilon)^{-1} - B \right\} \right\rangle, \quad (9)$$

$$J_\alpha = f^*(\alpha) + \left\langle \frac{k\varepsilon}{t} (H-1) \left\{ G(1-\varepsilon)^{-1} - B - \frac{t}{k\varepsilon H} 2G \right\} \right\rangle, \quad (10)$$

$$f^*(\alpha) = \frac{3}{2}\alpha - \frac{3\alpha^2 \cdot (2+3\alpha)}{1+\alpha} + 9\alpha^2 \ln \left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \cong \begin{cases} \frac{3}{2}\alpha - 6\alpha^2, & \alpha \ll 1, \\ \frac{3}{4\alpha} - \frac{6}{5\alpha^2}, & \alpha \gg 1, \end{cases} \quad (11)$$

$$B = \frac{1}{\Delta^2} \left\{ 2p_1 p_2 (2 - p_1 - p_2) \varepsilon + (p_1 + p_2 - 2p_1 p_2) (1 + p_1 p_2 \varepsilon^2) \right\}, \quad (12)$$

$$\Delta = 1 - p_1 p_2 \varepsilon^2. \quad (13)$$

Функція  $G$  і кутові дужки визначені формулою (3).

Співвідношення (8) визначає точно (в рамках даної моделі) значення температурного коефіцієнта повного опору тонкої полікристалічної плівки, зовнішні межі якої різним способом розсіюють електрони. Інтеграли, які містяться в (8), не можуть бути виражені через елементарні функції, і тому подальший теоретичний аналіз ТКО можливий лише на основі числового розрахунку. Однак при великих і малих значеннях параметрів  $p_1$  і  $\alpha$  можна отримати досить прості аналітичні вирази для ТКО, які дозволять провести порівняння теорії з експериментом.

Якщо полікристалічний шар металу товстий ( $d \gg \lambda$ ), то для довільних значень параметрів  $p_1$  і  $\alpha$  ТКО товстого зразка знову визначається формулою (8), у якій асимптотичні значення функцій  $F$ ,  $J$  і  $J_\alpha$  можуть бути записані у вигляді

$$F = f(\alpha) - \frac{3(2-p_1-p_2)}{16\pi} \left\{ 1 - \frac{32}{3\pi} \alpha + 12\alpha^2 + \frac{80}{\pi} \alpha^3 - 40\alpha^4 + \frac{16\alpha^3}{\pi} (4-5\alpha^2) \cdot I \right\}, \quad (14)$$

$$J = f(\alpha), \quad (15)$$

$$J_\alpha = f^*(\alpha) - \frac{2(2-p_1-p_2)}{\pi k} \alpha \times \left\{ 1 - \frac{9\pi}{4} \alpha - 30\alpha^2 + 15\pi\alpha^3 + 6\alpha^2(3-5\alpha^2) \cdot I + \frac{3\alpha^2(1-\alpha^2 I)}{2(1-\alpha^2)} \right\}, \quad (16)$$

$$I = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{1-\alpha^2}} \ln \frac{1+\sqrt{1-\alpha^2}}{\alpha}, & \alpha \leq 1, \\ \frac{\arccos 1/\alpha}{\sqrt{\alpha^2-1}}, & \alpha > 1. \end{cases}$$

Отримана асимптотична формула (8) для довільних значень  $p_1$  і  $\alpha$  у випадку, коли  $d \gg \lambda$  може бути значно спрощена для полікристалічних зразків із великозернистою ( $\alpha \ll 1$ ) і дрібнозернистою ( $\alpha \gg 1$ ) структурою:

$$\frac{\beta}{\beta_0} = 1 - \frac{3}{2} \alpha - \frac{3(2-p_1-p_2)}{16k} \left( 1 - \frac{12}{\pi} \alpha \right) - \left\{ \frac{3}{2} \alpha + \frac{3(2-p_1-p_2)}{8k} \left( 1 - \frac{9}{\pi} \alpha \right) \right\} \frac{\chi}{\beta_0} - \frac{3}{2} \alpha \left\{ 1 - \frac{3(2-p_1-p_2)}{4\pi k} \left( 1 - \frac{13}{2} \alpha \right) \right\} \frac{\chi_L}{\beta_0}, \quad \alpha \ll 1; \quad (17)$$

$$\frac{\beta}{\beta_0} = \frac{4}{5\alpha} - \frac{3(2-p_1-p_2)}{32k\alpha^2} \left( 1 - \frac{3}{2\alpha} \right) - \left\{ 1 - \frac{4}{5\alpha} - \frac{3(2-p_1-p_2)}{8k\alpha} \left( 1 - \frac{1}{\alpha} \right) \right\} \frac{\chi}{\beta_0} - \left\{ 1 - \frac{4}{5\alpha} - \frac{2-p_1-p_2}{8k\alpha} \left( 1 - \frac{3}{2\alpha} \right) \right\} \frac{\chi_L}{\beta_0}, \quad \alpha \gg 1. \quad (18)$$

Із асимптотичних співвідношень (17) і (18) випливає, що урахування теплового розширення товщини шару металу і середньої ширини кристалітів зменшує величину значення температурного коефіцієнта повного опору полікристалічних плівкових зразків.

Якщо шар металу тонкий ( $d \ll \lambda$ ) і  $k\alpha \ll 1$ , то для ТКО можуть бути отримані такі формули, які дозволяють оцінити порядок величини температурного коефіцієнта повного опору полікристалічної плівки:

$$\frac{\beta}{\beta_0} \equiv \begin{cases} \frac{1}{\ln\left(\frac{1}{k}\right)} \left( 1 + \frac{2\chi}{\beta_0} \right) - \frac{2\chi}{\beta_0}, & \alpha \leq k; \quad (19) \\ \frac{1}{\ln\left(\frac{1}{k}\right) - \frac{4}{\pi} \alpha} \left[ 1 + \frac{2\chi}{\beta_0} - \frac{4}{\pi} \alpha \left( 1 + \frac{\chi}{\beta_0} + \frac{\chi_L}{\beta_0} \right) \right] - \frac{2\chi}{\beta_0}, & \alpha > k; \quad (20) \\ -\frac{1}{\ln\left(\frac{1}{k\alpha}\right)} \left[ \frac{3}{4\alpha^2} \left( 1 + \frac{\chi}{\beta_0} + \frac{\chi_L}{\beta_0} \right) + \frac{\chi_L}{\beta_0} - \frac{\chi}{\beta_0} \right] - \frac{2\chi}{\beta_0}, & \alpha \ll \frac{1}{k}. \quad (21) \end{cases}$$

Як слідує з асимптотичної формули (21), якщо зразок має дрібнозернисту структуру, то числове значення ТКО від'ємне. Ці

обумовлене тим, що основним механізмом релаксації електронів є їх розсіювання на міжкристалічних межах [10].

#### МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

З метою апробації запропонованих співвідношень була одержана залежність ТКО від товщини для плівок *Ni*, *Cu*, *Cr* та *Co*. Плівкові зразки були отримані методами електронно-променевого та термічного випаровування у вакуумі  $\sim 10^{-3} - 10^{-4}$  Па на підкладках із полірованого скла (дослідження електрофізичних властивостей) та тонкої плівки вуглецю (дослідження кристалічної структури). З метою рекристалізації зразків та стабілізації їх електричних властивостей плівки відпалювалися у вакуумі в інтервалі температур 300 – 700 К за схемою "нагрівання→охолодження" зі сталою швидкістю протягом трьох циклів. Кристалічна структура плівок вивчалася за допомогою просвічувального електронного мікроскопа ПЕМ-125К. Середній розмір зерен розраховувався за електронно-мікроскопічними знімками шляхом побудови гістограм, параметр решітки – на основі електронограм, отриманих при роботі ПЕМ у режимі дифракції електронів. Згідно з електронографічними даними параметр решітки плівок *Ni*, *Cu* (ГЦК), *Cr* (ОЦК) та *Co* (ГЦП) дуже близький до величини, яка відповідає масивним зразкам. Останнє є якісним підтвердженням того, що в об'ємі плівки домішкові атоми майже відсутні.

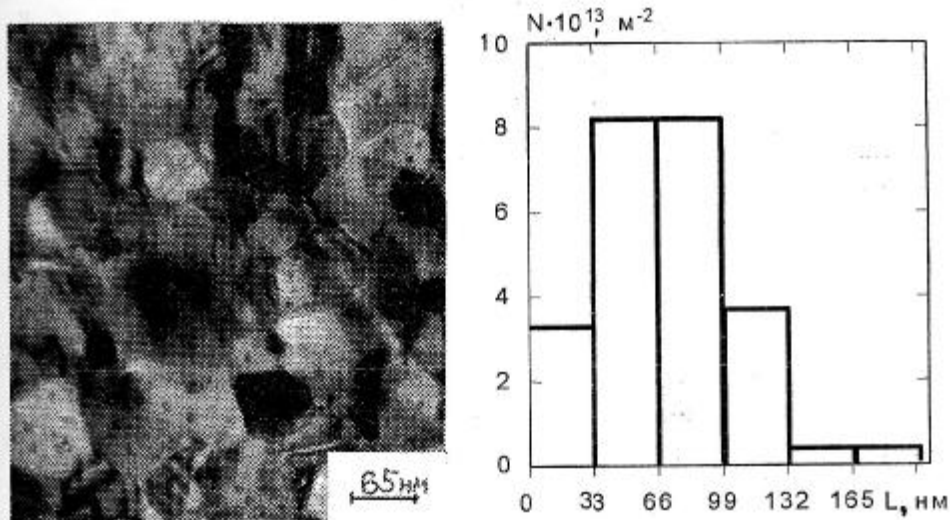


Рисунок 1 - Мікроструктура плівки *Ni* товщиною 80 нм та відповідна гістограма

Результати мікроскопічних досліджень (рис. 1) дали можливість встановити характер залежності середнього розміру зерна від товщини. Так, для плівок *Cr* та *Co* при товщинах більше 30 нм  $L \approx 0,5d$ , для плівок *Ni*  $L$  дорівнює порядку товщини, а у зразках *Cu*  $L \approx (1,5 - 2)d$ .

#### РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕННЯ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Для обробки експериментальних результатів з розмірної залежності ТКО нами було використано співвідношення (17), оскільки плівкові зразки задовольняють вимогу  $\alpha \ll 1$ . У зв'язку з тим, що фактично неможливо розділити вклад розсіювання носіїв на різних зовнішніх поверхнях плівки, ми розглянули випадок рівності коефіцієнтів



дзеркальності. Оскільки величини  $\chi_d$  та  $\chi_L$  - порядку  $10^{-6} K^{-1}$ , а  $\beta \sim 10^{-3} K^{-1}$ , то у співвідношенні (17) можна знехтувати двома останніми доданками. Поряд з цим замість  $\beta_0$  необхідно використовувати  $\beta_\infty$  - ТКО півки при  $d \rightarrow \infty$ . Подібний підхід є загально визнаний при роботі з асимптотичними моделями теорії МШ (див., наприклад, [11]).

Враховуючи вищесказане, співвідношення (17) можна перетворити до вигляду

$$\frac{\beta}{\beta_\infty} = 1 - \frac{3}{2}\alpha - \frac{3\lambda(1-p)}{8d} \left\{ 1 - \frac{12}{\pi}\alpha \right\}. \quad (17')$$

Найбільший інтерес при обробці результатів досліджень становлять величина та характер зміни з товщиною (розміром зерна) СДВП та коефіцієнта розсіювання на межі зерна. З цих двох параметрів найбільш чутливим до зміни середнього розміру зерна є останній. Поряд з цим змінювання СДВП електронів у досліджуваному нами інтервалі товщин (розмірів зерен) перекривається похибкою її визначення. У зв'язку з цим нами пропонується така методика оцінки коефіцієнта розсіювання електронів на межі зерен.

Оскільки в досліджених зразках неможливо реалізувати умову [1]  $L \cong const$  для всього інтервалу товщин (між іншим дана умова не витримується і в дослідженнях інших авторів), то рівняння (17') ми розглядаємо як функцію точки. Це дає можливість, допускаючи умови  $\lambda \approx const$  і дифузного розсіювання зовнішніх поверхонь та змінюючи величину  $\alpha$ , реалізувати збіг розрахункових і експериментальних значень ТКО в даній точці. На рис. 2 подані експериментальні (точками) та розрахункові (суцільними лініями) дані ТКО. Визначивши параметр  $\alpha$  та враховувавши реальний розподіл зерен за розмірами (рис.1) для кожної товщини, ми обчислювали статистичне значення коефіцієнта  $R$  за співвідношенням

$$R = \sum_{i=1}^n R_i \omega_i, \quad (22)$$

де  $R_i$  - величина коефіцієнта розсіювання для  $i$ -го інтервалу розміру зерен;  $\omega_i$  - статистична вага зерен  $i$ -го інтервалу (знаходилася як відношення площі на гістограмі для  $i$ -го інтервалу розміру зерен до всієї площі гістограми).

Як приклад наведемо розрахунок для півок Ni товщиною  $d \cong 100$  нм:  $R = 0,19 \cdot 0,11 + 0,31 \cdot 0,32 + 0,41 \cdot 0,31 + 0,48 \cdot 0,19 + 0,54 \cdot 0,07 = 0,38$ .

У таблиці 1 наведені обчислені таким чином статистичні величини  $R$  для півок різних металів, із яких впливає незначна розмірна залежність (від величини  $L$ ) параметра  $R$ .

Таблиця 1 - Розрахунок параметрів електроперенесення для півок

Півка	Інтервал товщин, нм	$\lambda(1-p)$ , нм	$\beta_\infty \cdot 10^3$ , $K^{-1}$	R
Ni	50-180	32	3,94	0,37-0,40
Cu	55-175	83	4,10	0,35-0,42
Cr	40-100	127	1,52	0,03-0,10
Co	30-110	37	2,50	0,04-0,13

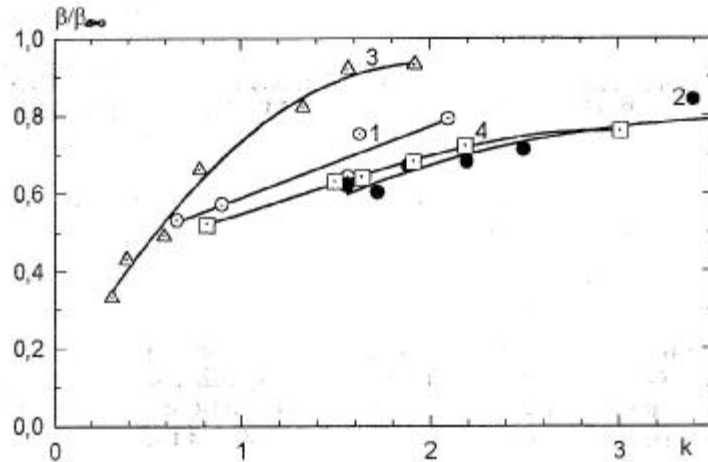


Рисунок 2 - Експериментальна залежність ТКО від зведеної товщини для плівок Cu (1), Ni (2), Cr(3), Co (4)

Результати роботи полягають у такому:

- у рамках теорії МШ одержані асимптотичні вирази для температурного коефіцієнта опору полікристалічних плівок для різних граничних випадків зведеної товщини ( $k \gg 1$ ,  $k \ll 1$ ) та параметра зерномежового розсіювання ( $\alpha \gg 1$ ,  $\alpha \ll 1$ ), які можна використати як функцію точки при обробці результатів експерименту;
  - запропонована методика визначення статистичного значення коефіцієнта розсіювання електронів на межі зерен за умови  $\lambda \approx \text{const}$ .
- Автори виражають подяку Проценку І.Ю. та Колісниченку Ю.О. за обговорення результатів роботи та цінні зауваження.

## SUMMARY

Utilizing experimental dependences of a thermal resistance coefficient on thickness for films Ni, Cu, Cr and Co, the approbation of asymptotic relations for a size effect is realized.

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Mayadas A., Shatzkes M.// Phys. Rev. B.: Cond. Matter.- 1970.- V.1, № 4.- P. 1382-1389.
2. Tellier C., Tossier A.// Thin Solid Films.- 1976.- V.33. - № 1.- P. 19 - 26.
3. Pichard C., Tellier C.// Phys. Stat. Sol. (a).- 1981.- V. 61. - №1.- P. 327 - 334.
4. Tossier A., Tellier C., Pichard C.// J. Mater. Sci.- 1981.- V. 16, № 3.- P. 944 - 948.
5. Чопра К.Л. Электрические явления в тонких пленках.- Москва: Мир, 1972.- 435 с.
6. Hall P.M.// Appl. Phys. Lett. - 1968. -V.12, №6. -P. 212-214.
7. Беловцев Б.Н., Комник Ю.Ф., Кокина В.Е., Яцук Л.А.// ФНТ.- 1980.- Т. 6.- № 6.- С. 754 - 764.
8. Проценко И.Е.// Изв. вузов. Физика.- 1988.- Вып 6.- С.42 - 47.
9. Волков Ю.А., Волкова Р.П.// ФТТ.- 1999.- Т. 37. - № 12.- С. 3687 - 3693.
10. Singh A.// J. Appl. Phys.- 1974.- V.45.- P. 1908 - 1915.
11. Овчаренко Ю.М. Опанасюк Н.М., Проценко І.Ю. та інші// УФЖ.- 1997.- Т. 42. - № 7.- С. 826 - 830.

Надійшла до редколегії 24 жовтня 2000 р.