

ЗЕРНОГРАНИЧНОЕ РАССЕЯНИЕ ЭЛЕКТРОНОВ В ПЛЕНКАХ МЕДИ

Белоус Е. А., Черноус А. Н.

(Сумский государственный университет, г. Сумы)

Исследованы электрофизические свойства пленок меди, полученных в интервале толщины 45-580 нм методом термического испарения в вакууме. Проведен расчет параметров электропереноса в условиях зернограничного рассеяния в рамках модели Телье-Тосса-Пишара и Ухлинова-Косаковской.

Учет зернограничного рассеяния электронов в металлических пленочных образцах был впервые произведен Майаласом и Шанткесом [1]. Впоследствии идеи, предложенные в [1], были развиты Телье, Тосса и Пишаром (ТПП) в работах [2,3] для пленок с неизменным от толщины средним размером зерна. Кроме соотношений ТПП, которые получили широкое применение для определения параметров электропереноса, существует ряд моделей (смотри, например, [4,5]) для размерного эффекта в электрофизических свойствах поликристаллических пленочных образцов в различных приближениях.

Целью работы является апробация предложенных в [2-4] моделей, учитывающих внутренний размерный эффект в электропроводности, и расчет параметров электропереноса на примере пленок меди.

1. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ СООТНОШЕНИЯ

Линеаризованное соотношение для температурного коэффициента сопротивления (ТКС), представленное в работе [2], имеет следующий вид:

$$\beta \cdot d \equiv \beta_0 \cdot d - \beta_\infty \lambda_0 (1-p) \cdot H(\alpha), \quad (1)$$

где $\beta \cdot d$ – ТКС и толщина пленочного образца (индекс "x" относится к величинам, для которых выполняется условие $d \rightarrow \infty$), λ_0 – средняя длина свободного пробега электронов в массивном монокристалле, p – коэффициент зеркальности внешних поверхностей пленки, $\alpha = \lambda_0 \cdot L^{-1} \cdot R / (1-R)$ – параметр зернограничного рассеяния (L – средний размер зерна, R – коэффициент рассеяния электронов на границе зерна), $H(\alpha)$ – известная функция параметра α (смотри, например, [6]).

В рамках модели изотропного рассеяния [3] линеаризованное соотношение для ТКС имеет вид:

$$\beta^{-1} \cdot d \equiv \beta_0^{-1} \cdot d + \frac{3}{8} \beta_0^{-1} \cdot \lambda_0 \ln \left(\frac{1}{p} \right),$$

$$\beta_0 \cdot \beta_0^{-1} \equiv f(\alpha) = \left[1 + 1,45 L^{-1} \lambda_0 \cdot \ln \left(\frac{1}{r} \right) \right]^{-1}, \quad (2)$$

$$\frac{R}{1-R} \approx 0,97 \ln \left(\frac{1}{r} \right),$$

где r – коэффициент прохождения границы зерна электроном, $f(\alpha)$ – функция зернограничного рассеяния; β_0 – ТКС массивного монокристаллического образца (при расчетах можно использовать ТКС массивного, хорошо отожженного поликристалла).

В работе Ухлинова-Косаковской [4] (модель УК) рассматривается вопрос о влиянии размера и формы зерна на электропроводность поликристаллических образцов металлов с формразмерной текстурой. В предельном случае $L_x = L_y \gg L_z$ (L_x, L_y, L_z – средний размер зерна в направлении x, y, z соответственно) выражения для электропроводности имеют вид:

$$\sigma_x = \left[\frac{3}{2} K_{L_x} - 3K_{L_x}^2 + 3K_{L_x}^3 \ln \left(1 + \frac{1}{K_{L_x}} \right) \right] \sigma_0,$$

$$\sigma_x = \sigma_y = \left[\frac{3}{2} K_{L_x}^2 - \frac{3}{4} K_{L_x} - \frac{3}{2} K_{L_x} (1 - K_{L_x}^2) \times \right.$$

$$\left. \times \ln \left(1 + \frac{1}{K_{L_x}} \right) \right] \sigma_0, \quad (3)$$

В случае, когда $K_{L_x} > 1$, соотношения (3) упрощаются до вида:

$$\sigma_x \equiv \left(1 - \frac{3}{4K_{L_x}} \right) \sigma_0, \quad \sigma_x \equiv \sigma_y \equiv \left(1 - \frac{3}{8K_{L_x}} \right) \sigma_0, \quad (4)$$

где σ_0 – удельная электропроводность массивного монокристаллического образца, $K_{L_x} = \frac{L_x}{\lambda_0 (1-R)}$ – приведенная высота зерна в направлении x .

В случае пленочных образцов, для которых выполняются условия $L_x > L_z$ и $L_z = d$, соотношение для σ_x преобразуется к виду:

$$\sigma_x \equiv \left(1 - \frac{3\lambda_0 (1-p)}{8d} \right) \sigma_0. \quad (5)$$

Последнее выражение представим в форме, удобной для обработки данных эксперимента, с целью определения параметров электропереноса:

$$\sigma \cdot d \equiv \sigma_0 \cdot d - \frac{3}{8} \sigma_0 \cdot \lambda_0 (1-p). \quad (6)$$

Методика обработки экспериментальных результатов на основе соотношения (6) состоит в следующем. Экспериментальная зависимость σ от d пере-

страивается в координатах σ и d , по тангенсу угла наклона прямой определяется σ_x , а по отсекаемому отрезку на оси ординат - $\lambda_0(1-p)$.

Методика использования соотношений (1) и (2) описана в [7].

На основе теории Майлдаса-Шаттлеса можно также рассчитать удельное зернограничное сопротивление (ρ_{gb}^V) с помощью выражения:

$$\rho_{gb}^V \cong \frac{3}{2} \rho_0 \lambda_0 \frac{R}{1-R} \quad (7)$$

где ρ_0 - удельное сопротивление массивного монокристаллического образца (для расчетов можно использовать данные для массивного поликристалла), и оценить суммарное сопротивление границ зерен (ρ_{gb}^V), находящихся в единице объема пленки:

$$\rho_{gb}^V = \rho_{gb}^V - \rho_0 \quad (8)$$

2. МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Пленки в интервале толщин 45-580 нм были получены путем термического испарения в вакууме 10^{-7} Па, при $T_n=300$ К, со скоростью конденсации 1,5-3 нм/с. В качестве подложек использовались стеклянные полированные пластины. Измерение сопротивления проводилось с помощью 4-х точечного метода [8]. Пленки с целью стабилизации электрических свойств и рекристаллизации отжигались в вакууме по схеме "нагрев-охлаждение" (3 цикла) со скоростью 2-3 К/мин в интервале температур 290-680 К.

Изучение кристаллической структуры проводилось методом просвечивающей электронной микроскопии (микроскоп ЭММА-4). Образцы для структурных исследований предварительно подвергались химическому травлению по методике, описанной в [9].

Расчет среднего размера зерна проводится по микроскопическим снимкам (рис.1) путём построения гистограмм.



Рис.1. Структура рекристаллизованной плёнки меди ($d=55$ нм)
Fig.1. Structure of recrystallization copper film ($d=55$ nm)

По результатам исследования кристаллической структуры отметим следующее. В интервале толщин 45-130 нм величина среднего размера зерна L_x плавно изменяется от 150 до 300 нм и начиная с толщины 130 нм выходит на насыщение $L_x=320-350$ нм. Полученный результат неплохо согласуется с данными, представленными в [10-11].

3. ОБРАБОТКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис.2 представлены экспериментальные зависимости ТКС и удельного сопротивления от толщины плёнок с использованием которых был проведён расчёт параметров электропереноса в рамках рассмотренных выше моделей.

Рисунок 3 иллюстрирует зависимости ТКС и удельной электропроводности в различных спрямляющих координатах от толщины пленки.

Значения параметров, рассчитанных с использованием соотношений (1), (2) и (6), представлены в таблице.

Исходя из соотношений (7) и (8), $\rho_{gb}^V=0,1 \times 10^{-8}$ Ом·м, $\rho_{gb}^V=2,3 \times 10^{-10}$ Ом·м²

Согласно данным, представленным в [7,12], для плёнок меди в интервале толщин 40-100 нм со средним размером зерна 100 нм $\lambda_0(1-p)=38,7$ нм; $p=0$; $r=0,40-0,70$ и $R=0,30-0,60$, при температуре измерения 320 К. Для массивных образцов без остаточной пористости, полученных с использованием деформационно-термической обработки при температуре измерения 77К, $\lambda_0=330$ нм и $R=0,23$ [11].

Что касается полученных нами результатов необходимо отметить следующее. Расчёты, произведённые на основе изотропной модели ТПП дают заниженное значение коэффициента рассеяния на границах зерен по отношению к данным, полученным с использованием соотношений (1). Это связано, в первую очередь, с условиями применения соотношения (2) $L_x < L_z < d$.

В случае монокристаллических плёнок использование изотропной модели для определения параметров электропереноса является некорректным, в то время как линеаризованное соотношение (1) и модель УК (6) применимы для условия $L_x > L_z = d$, и примерно

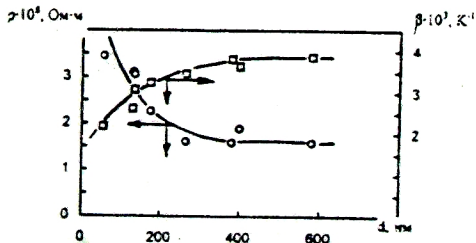


Рис.2. Зависимость температурного коэффициента сопротивления и удельного сопротивления от толщины пленки

Fig.2. The resistivity and temperature coefficient of resistivity as a function of thickness

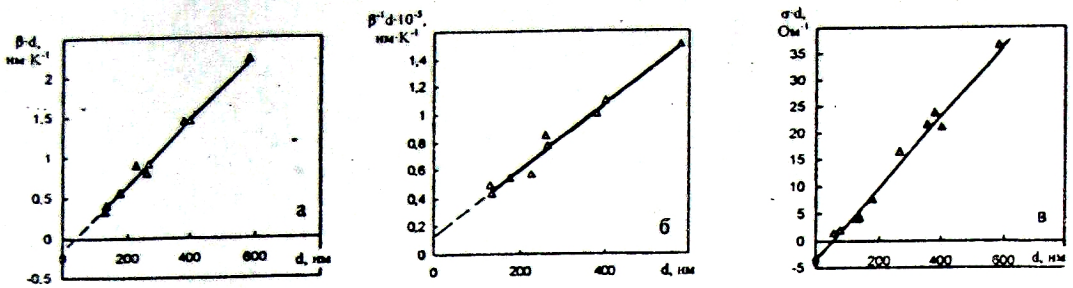


Рис. 3. Зависимость температурного коэффициента сопротивления и удельной проводимости от толщины пленки в различных прямых координатах: а) - $\beta \cdot d$ (д); б) - $\beta^1 \cdot d$ (д); в) - $\sigma \cdot d$ (д) для пленок меди
 Fig. 3. Temperature coefficient of resistivity and conductivity as a function of thickness in different straight coordinates: а) - $\beta \cdot d$ (д); б) - $\beta^1 \cdot d$ (д); в) - $\sigma \cdot d$ (д) for copper films

ПАРАМЕТРЫ ЭЛЕКТРОПЕРЕНОСА

Таблица

Модель	$\rho_{\infty} \times 10^2$, Ом·м	$\beta_{\infty} \times 10^3$, K ⁻¹	$\lambda_0(1-p)$, нм	R	r	p	Примечание
(1)	-	4,1	83	0,11	-	-	
(2)	-	4,2	-	0,05	0,93	0,14	при $\lambda_{gr} = 83$ нм
(6)	1,6	-	85	-	-	-	

одинаково описывают зернограничное рассеяние электронов в пленках меди.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Mayadas A.F., Shatzkes M. Electrical-Resistivity Model for Polycrystalline films: the Case of Arbitrary Reflection on External Surface //Phys. Rev. B. 1970. V.1. №4. P.1382-1389.
- Tellier G.R., Tossier A.F. Approximate Expression for the Polycrystalline Metallic Films // Thin Solid Films. 1976. V.33. №1. P.19-26.
- Tossier A.F., Tellier C.R., Pichard C.R. Thin Polycrystalline Metallic-Films Conductivity Under the Assumption of Isotropic Grain-Boundary Scattering //J.Mater.Sci. 1981. V.16.№3. P.944-948.
- Ухлинов Г.А., Косаковская З.Я. Электропроводность поликристаллических образцов металлов с формразмерной текстурой // ФММ. 1983. Т.53. Вып.1. С. 61-63.
- Стасюк З.В. Електронні явища переносу в тонких плівках перехідних d-металлів. Автореф. дис. д-ра фіз.-мат. Наук. Київ. 1994. 31с.
- Проценко І.Е. Расчет параметров электропереноса тонких поликристаллических пленок металлов // Известия вузов. Физика. №6. 1988. С.42-47.
- Проценко І.Ю., Шовкопляс О.В., Овчаренко Ю.М., Опанасюк Н.М. Електрофізичні властивості тонких полікристалічних плівок Cr, Cu, Ni та Ti //Журнал фізичних досліджень. 1998. Т.2. №1. С.105-108.

- Павлов Л.П. Методы измерения параметров полупроводниковых материалов. М.: Высшая школа 1987 250с.
- Беккерт К., Клемм Х. Способы металлографического травления. М.:Металлургия. 1988
- Опанасюк Н.Н., Проценко І.Е. Структурные изменения в пленках меди в процессе термического отжига // Труды Украинского вакуумного общества.Т.3. С. 502-504.
- Исламгалиев Р.К., Ахмадеев Н.А., Мулюков Р.Р., Валиев Р.З. Влияние субмикрозернистого состояния на электросопротивление меди // Металлофизика.1991. Т.13. №3. С.20-25.
- Овчаренко Ю.М., Опанасюк Н.М., Проценко І.Ю., Шовкопляс О.В. Розрахунок параметрів електропереносу тонких металевих плівок в умовах зовнішнього та внутрішнього розмірного ефектів // УФЖ. 1997.Т.42. №7. С.826-830.

Grain-boundary scattering of electrons in copper films
 Belous E., Chornous A.
 (Sumy State University, Sumy)

The results of investigating electrophysical parameters of copper films (thickness 45-580 nm) have been given. Copper films were deposited by vacuum evaporation. Experimental results were calculated in terms of Mayadas-Shatzkes theory, model of Tellier-Tossier-Pichard and Uhlinov-Kosacovskay equations.