

## ВЛИЯНИЕ КВАНТОВОГО РАЗМЕРНОГО ЭФФЕКТА ДЛЯ СКОЛЬЗЯЩИХ ЭЛЕКТРОНОВ НА ЭЛЕКТРОННУЮ ПРОВОДИМОСТЬ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК

Г.М.Михайлов<sup>1)</sup>, И.В.Маликов, А.В.Черных

*Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН  
142432 Черноголовка, Московской обл., Россия*

Поступила в редакцию 7 октября 1997 г.

После переработки 6 ноября 1997 г.

Исследована зависимость электронной проводимости тонких (5-150 нм) монокристаллических (100) пленок тугоплавких металлов от толщины при различных температурах, от 4.2К вплоть до комнатной. Обнаружены области корневой, квазилинейной и квадратичной зависимостей. Квазилинейная размерная зависимость объясняется влиянием квантовых эффектов на поперечное движение электронов в случае доминирующего рассеяния электронов на поверхностях пленок. При макроскопической толщине пленок 30-50 нм, существенно превышающей фермиевскую длину волны электрона, квантовые поправки к электронной проводимости достигают значений порядка 50%. Это является следствием квантового размерного эффекта для скользящих электронов, приводящего к аномалии в рассеянии электронов на поверхности пленки. Область квадратичной размерной зависимости соответствует квантовому пределу, а корневая – классическому. Объяснение эффекта проведено с использованием квазиклассической модели, учитывающей дифракционные угловые ограничения для скользящих электронов, в которой присутствуют два параметра – эффективный угол для малоугловых электронов  $\alpha^*$  и параметр  $\gamma$ , равный отношению этого угла к дифракционному. Наблюдаемый эффект проявляется при параметрах  $\alpha^* \ll 1$ ,  $\gamma \sim 1$ , и отличается от "обычного" квантового размерного эффекта.

PACS: 73.40.-c

**Введение.** Трактовка классического размерного эффекта в электронной проводимости пленок долгое время основывалась на модели Фукса [1,2], в которой соотношение диффузного и зеркального рассеяния всех электронов проводимости на поверхностях пленки определялось одним эффективным параметром – коэффициентом "зеркальности". Однако еще в работе [3] указывалось на отличие этого параметра для различных групп электронов и на необходимость учета зависимости коэффициента "зеркальности" от угла подлета электронов к поверхности. Развитие модели Фукса, а также исследование условий применимости этой модели в классическом пределе проводилось многими авторами [4 и ссылки в ней]. В работе [4], в том числе, было показано, что при достаточно большой объемной длине свободного пробега электронов  $l$  нельзя ввести средний коэффициент "зеркальности" для описания электронной проводимости в пленках. Проводимость пленок в этом случае определяется малоугловыми электронами, а электронная проводимость пленки коренным образом зависит от толщины. Размерный эффект в электронной проводимости совершенных монокристаллических пластинчатых вискероидов исследовался, например, в [5, см. там же ссылки], где наблюдалась квазилинейная размерная зависимость. Аналогичная зависимость была получена для монокристаллических пленок тугоплавких металлов

<sup>1)</sup> e-mail: Mikhail@nano.home.chg.ru

с большой длиной  $l$  [6-9]. Во всех этих случаях должна бы наблюдаться корневая размерная зависимость от толщины в классическом пределе [4], однако это не находит экспериментального подтверждения. До настоящего времени нет удовлетворительного объяснения этого противоречия между теорией и экспериментом.

Исследование тонких монокристаллических пленок платины показало, что для толщины  $d$ , меньшей 5 нм, наблюдается существенное отклонение от классического размерного эффекта [10], трактуемого на основе модели Фукса. В работах [11-14] были развиты теоретические модели, объясняющие эти экспериментальные результаты как проявление квантового эффекта при малой толщине пленки, приближающейся к фермиевской длине волны электрона. Случай, когда длина  $l$  много больше толщины пленки как в квантовом, так и в классическом пределе, не был исследован.

**Результаты эксперимента.** Тонкие (5-150 нм) монокристаллические (100) пленки тугоплавких металлов получали в процессе эпитаксиального роста в сверхвысоком вакууме методом импульсного лазерного испарения на плоскость  $r$  сапфира. Пленки с совершенной кристаллической структурой, состоящие из малоразориентированных монокристаллических блоков с размерами, много большими толщины пленки [8,9], имели малую, менее 1 нм, среднюю шероховатость как внутренней, так и внешней поверхности [9]. Внешняя поверхность пленок в результате взаимодействия с окружающей средой была покрыта тонким естественным окислом. Эффективная остаточная длина пробега электронов в выращенных пленках достигала нескольких микрон, а объемная, по оценке из уравнений Фукса, по крайней мере на порядок больше [6-9]. Измерения электронной проводимости пленок проводили при низких (4.2 К) и более высоких, вплоть до комнатных, температурах. Более подробно методика получения пленок и методика измерения электронной проводимости приведены в предыдущих публикациях [6, 7].

На рис.1 (точки) показана экспериментальная зависимость отношения проводимостей  $\sigma(d)/\sigma$  (150 нм) монокристаллических (100) пленок  $W$ , измеренных при 4.2 К (кривая 1), 40 К (2), 80 К (3) и 295 К (4) для толщины пленки  $d = 15 - 150$  нм. На этом же рисунке показана пунктирная линия, соответствующая корневой зависимости, и штриховая квадратичной зависимости проводимости от толщины. Как видно из рисунка, для толщины пленки  $d < 50$  нм (при  $T = 4.2$  К) экспериментальная зависимость квазилинейная, переходящая в квадратичную. Отклонение от корневой зависимости порядка 50%. При  $T = 40$  К и  $d > 50$  нм экспериментальная зависимость близка к корневой. При более высоких температурах показатель степени размерной зависимости от толщины уменьшается, а область перехода от малой к большей степени сдвигается к меньшей толщине. На рис. 2 представлены аналогичные экспериментальные результаты для монокристаллических (100) пленок Nb. Отклонение от корневой зависимости существенно при толщине менее 30 нм (для  $T = 4.2$  К), зависимость в этой области квазилинейная, переходящая в квадратичную. При  $T = 80$  К и  $d > 10$  нм экспериментальная зависимость близка к корневой. Экспериментальные размерные зависимости имеют общие закономерности: переход от большей толщины к малой сопровождается изменением показателя степени размерной зависимости, начиная от равной  $\sim 0.5$  (или меньшей) до 2. В переходной области толщины размерная зависимость квазилинейная. При уменьшении длины  $l$  (или при увеличении температуры) область перехода сдвигается к меньшей тол-

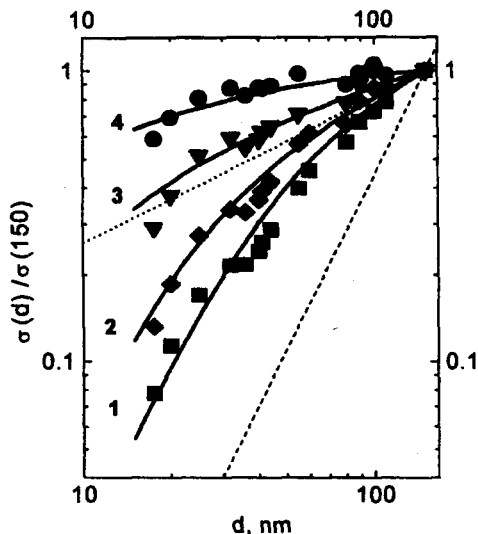


Рис.1. Экспериментальные нормированные размерные зависимости электронной проводимости монокристаллических (100) пленок W (точки) при  $T = 4.2$  К (кривая 1), 40 К (2), 80 К (3), 295 К (4). Сплошная линия – формула (4) при  $L_0 = 140000, 25000, 950, 70$ , соответственно нумерации, и  $\lambda_f = 2$  нм. Пунктирная линия – корневая зависимость, а штриховая – квадратичная зависимость проводимости от толщины пленки

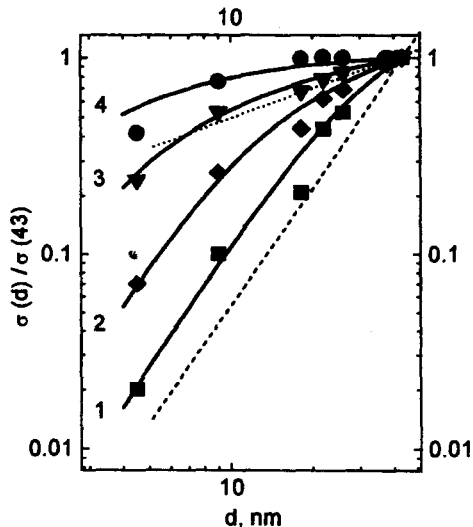


Рис.2. Экспериментальные нормированные размерные зависимости электронной проводимости монокристаллических (100) пленок Nb (точки) при  $T = 4.2$  К (кривая 1), 40 К (2), 80 К (3), 295 К (4). Сплошная линия – формула (4) при  $L_0 = 35000, 25000, 150, 15$ , соответственно нумерации, и  $\lambda_f = 2$  нм. Пунктирная линия – корневая зависимость, а штриховая – квадратичная зависимость проводимости от толщины пленки

щине. Значение отношения  $d/l$  в проведенных экспериментах лежит в диапазоне величин порядка  $10 - 10^{-4}$ , где для оценки  $l$  использованы результаты [6-8].

**Теоретическая модель и обсуждение результатов.** Отношение проводимости пленки  $\sigma_d$  к объемной проводимости  $\sigma_0$  при  $l \gg d$  коренным образом зависит от толщины и пропорционально  $\alpha^* = \sqrt{d/Ql}$  – эффективному углу, а параметр  $Q$  зависит от шероховатости поверхности пленки [4]. Однако поперечная компонента импульса в пленках квантуется из-за конечного поперечного движения электронов [12]. При малой шероховатости эта компонента импульса хорошо определена, по крайней мере, для нижних двумерных подзон, в которых "поперечная" длина волны электрона сравнима с толщиной. Из этого неминуемо следует, что угол подлета электрона к поверхности ограничен снизу. Далее, этот минимальный угол  $\alpha_d = \lambda_f/2d$ , где  $\lambda_f$  – фермиевская длина волны, для краткости будем называть дифракционным углом, введем также безразмерную толщину  $D = 2d/\lambda_f$ , эффективную длину пробега  $L_0 = 2Ql/\lambda_f$  и параметр

$$\gamma = \frac{\alpha^*}{\alpha_d} = \sqrt{\frac{D^3}{L_0}}. \quad (1)$$

При равенстве его единице, получаем следующую характерную толщину пленки:

$$D^* = \sqrt[3]{L_0}, \quad (2)$$

при которой эффективный угол равен дифракционному. Считая  $\lambda_f \sim 1$  нм, для некогерентных границ раздела  $Q \sim 1$ , а длину  $l \sim 100$  мкм [6-9], получаем следующую возможную оценку для характерной толщины пленки в металлах:  $D^* \sim 100 \gg 1$ . Характерная толщина (2) задает пространственный масштаб, и можно рассматривать как одно-, так и двумерные низкоразмерные объекты, в которых дифракционные ограничения существенны. Необходимо рассмотреть случай, когда как в квантовом, так и в классическом пределе  $l \gg d$ . Это соответствует описанию движения скользящих электронов и задача в этом смысле аналогична рассмотрению электронов на "скачущих" орбитах [15]. Для электронной проводимости воспользуемся формулой квазиклассического приближения (поскольку  $D^* \gg 1$ ) в изотропном случае и учтем дифракционное ограничение по углу для скользящих электронов. Рассматривая два канала рассеяния: в объеме с длиной пробега  $l$  и на поверхностях с длиной пробега  $l_s(\alpha)$ , зависящей от угла подлета  $\alpha$  электрона к поверхности, и вводя эффективную длину пробега  $(l^*)^{-1} = l^{-1} + l_s^{-1}$ , получаем следующее выражение:

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_0} = \int_{\notin K\alpha_d} \frac{d\Omega}{1 + l/l_s(\alpha)} \cos^2 \theta, \quad (3)$$

где  $S$  – нормировочный коэффициент, равный  $3/8\pi$  и  $3/4\pi$ , соответственно для двух- и одномерных объектов;  $K \sim 1$  – численный коэффициент (см. далее),  $\theta$  – угол между направлением движения электрона и направлением тока. Интегрирование по всему телесному углу ограничено для полярного угла величиной  $K\alpha_d$ . Выражение (3) справедливо для  $L_0 \gg D \gg 1$ . Кроме того, для упрощения считается, что длина корреляции для шероховатости поверхности достаточно мала [4], так что рассеяние электронов на поверхностях пленки может происходить и на большие углы. В формуле (3) предполагается, что длина  $l$  в правой части такая же, что и в объемной проводимости  $\sigma_0$ . Однако при малоугловом объемном рассеянии это не так. В (3) также не рассматривались процессы рассеяния электронов, приводящие к столкновительному уширению уровней поперечного квантования [12] и к сбою фазы электрона.

Для  $l_s$  воспользуемся следующей формулой [4,5]

$$l_s = \frac{d}{\sin \alpha (1 - P(\alpha))} \cong \frac{d}{Q \sin^2 \alpha},$$

где  $P(\alpha) = 1 - Q$ ,  $\alpha$  – коэффициент зеркальности для малых углов подлета электронов к поверхности [4]. Подставляя  $l_s$  в (3), получим окончательную формулу для электронной проводимости. Для пленок из (3) следует:

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_0} = \frac{3}{2} \alpha^{*2} \{ (\alpha^* + \alpha^{*-1}) \arctg \left( \frac{\gamma}{6/\pi^2 + \alpha^* \gamma} \right) - 1 \}, \quad (4)$$

где

$$\alpha^* = \sqrt{\frac{d}{L_0}} = \sqrt{\frac{d}{Ql}}, \quad \gamma = D \sqrt{\frac{D}{L_0}} = \frac{2d}{\lambda_f} \sqrt{\frac{d}{Ql}},$$

а численный коэффициент  $K \cong 6/\pi^2$  для правильного квантового предела в двумерном случае. Электронная проводимость пленок (4) определяется двумя параметрами:

эффективным углом  $\alpha^*$  и параметром  $\gamma$ . При  $\gamma \gg 1$  (классический предел) (4) переходит в известную формулу для проводимости пленок [4]. Можно рассматривать область толстых ( $\alpha^* \sim 1$ ) и тонких пленок ( $\alpha^* \ll 1$ ) в соответствии с классификацией [4]. При  $\alpha^* \ll 1$  и  $\gamma \sim 1$  (переходная область) в области макроскопических значений толщины пленки наблюдается квазилинейная размерная зависимость, при этом квантовые поправки ( $\sim 50\%$ ) существенны вследствие квантового размерного эффекта для скользящих электронов, приводящего к аномалии в рассеянии электронов проводимости на поверхностях пленки; при дальнейшем уменьшении параметра  $\gamma$  ( $\gamma \ll 1$ ) размерная зависимость становится квадратичной и соответствует квантовому пределу. При  $\alpha^* \sim 1$  и  $\gamma \leq 1$  характерные толщины пленок становятся порядка фермиевской длины волны, и при достаточно малой толщине необходимо также учитывать проявление "обычного" квантового размерного эффекта [12, 14, 16].

Предельные соотношения для (4) в интересующем нас случае большой длины  $l$  ( $\alpha^* \ll 1$ ) имеют следующий вид. Квантовый предел при  $\gamma \ll 1$

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_0} \xrightarrow{\lambda_f \rightarrow \infty} \frac{\pi^2 D^2}{4 L_0} = \frac{\pi^2}{4} \gamma \alpha^*, \quad (5)$$

что соответствует результатам [11-14] при  $D \gg 1$ . Классический предел при  $\gamma \gg 1$

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_0} \xrightarrow{\lambda_f \rightarrow 0} \frac{3\pi}{4} \sqrt{\frac{D}{L_0}} = \frac{3\pi}{4} \alpha^*, \quad (6)$$

в соответствии с результатом работы [4]. При  $\gamma \sim 1$  (переходная область) зависимость (4) имеет точку перегиба, в которой вторая производная по толщине равна нулю. Численное решение в результате приводит к следующей линеаризованной формуле:

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_0} \cong \frac{2.04}{D^{*2}} (d - 0.229D^*). \quad (7)$$

Как видно отсюда, линейная зависимость пересекает ось абсцисс при положительной толщине, которую можно интерпретировать как "мертвый" слой при произвольной квазилинейной аппроксимации размерной зависимости проводимости [6-9]. Однако происхождение этого "слоя" связано с квантовыми поправками. В общем случае нужно использовать формулу (4), которая сшивает зависимости (5)–(7), приводя к квазилинейной размерной зависимости в переходной области толщины. Это является следствием квантового размерного эффекта в проводимости для скользящих электронов, расположенных на *нижних* двумерных подзонах, приводящего к аномалии в рассеянии электронов на поверхностях и, соответственно, в размерной зависимости электронной проводимости пленки. Данный эффект отличается от "обычного" квантового размерного эффекта, в котором при уменьшении толщины пленок происходит периодическое изменение как плотности состояний электронов на уровне Ферми, так и, соответственно, электронной проводимости за счет выхода верхних двумерных подзон за уровень Ферми [16].

Качественно, предсказанная формулой (4), размерная зависимость проводимости пленок соответствует экспериментальным результатам (рис.1 и 2): при большой толщине показатель степени в размерной зависимости мал ( $\leq 0.5$ ), при уменьшении толщины (когда  $\alpha^* \ll 1$ ) размерная зависимость становится корневой (6), при характерной толщине (2) – линейной (7) и в пределе малой толщины стремится к

квадратичной (5). При уменьшении длины  $l$  (или увеличения температуры) область характерной толщины сдвигается к малым значениям в соответствии с (2). Для количественного описания экспериментальных результатов использована подгонка по формуле (4) с варьируемым параметром  $L_0$ . На рис.1 показана зависимость (4) (сплошная линия) при подгоночном параметре, равном соответственно  $L_0 = 140000, 25000, 950$  и  $70$ , а  $\lambda_f = 2$  нм как некоторое среднее, поскольку в вольфраме имеется набор значений фермиевских длин волн для поверхности (100) [17]. Для Nb (рис. 2) подгоночные параметры  $L_0$  составили: 1 – (4.2 К) 35000, 2 – (40 К) 2500, 3 – (80 К) 150, 4 – (295 К) 15, а  $\lambda_f = 2$  нм для всех подгонок. Как видно из представленных результатов, (4) правильно описывает (рис. 1 и 2) область перехода от классического к квантовому пределу, и находится в удовлетворительном согласии с экспериментом.

**Заключение.** Наблюдаемая квазилинейная размерная зависимость проводимости тонких (5 – 150 нм) монокристаллических пленок тугоплавких металлов от их толщины (в случае доминирующего рассеяния на границах раздела) объясняется существенным влиянием квантового размерного эффекта для скользящих электронов, расположенных на нижних двумерных подзонах энергетического спектра. Характерный размер (толщина) определяется формулой (2) и может значительно превышать фермиевскую длину. При этой толщине квантовые поправки к проводимости достигают значений порядка 50%, а найденные экспериментально значения характерной толщины составили 30-50 нм. Экспериментально наблюдается как квадратичная (квантовый предел), квазилинейная (переходная область), так и корневая (классический предел) размерные зависимости проводимости от толщины. Предложенная квазиклассическая модель, учитывающая дифракционные угловые ограничения для скользящих вдоль поверхности электронов, находится в удовлетворительном согласии с экспериментом.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 97-02-17031) и грантами научно-технических программ: "Физика твердотельных наноструктур" (грант 97-1059), и "Физика квантовых и волновых процессов" (направление "Статистическая Физика").

- 
1. K.Fuchs, Proc. Cambridge Philos. Soc. **34**, 100 (1938).
  2. H.Sondheimer, Adv. Phys. **1**, 1 (1952).
  3. S.Soffer, J. Appl. Phys. **38**, 1710 (1967).
  4. L.A.Falkovsky, Adv. Phys. **32**, 753 (1983).
  5. Ю.П.Гайдук, в кн. *Электроны проводимости*, под. ред. М.И.Каганова, В.С. Эдельмана, М.: Наука, 1985, гл. 12, стр. 372-400.
  6. G.M.Mikhailov, A.V.Chernykh, and V.T.Petrashov, J. Appl. Phys. **80**, 948 (1996).
  7. Г.М.Михайлов, И.В.Маликов, А.В.Черных, В.Т.Петрашов, ФТТ **38**, 3212 (1996).
  8. G.M.Mikhailov, I.V.Malikov, A.V.Chernykh, and V.T.Petrashov, Thin Solid Films **293**, 315 (1997).
  9. I.V.Malikov and G.M.Mikhailov, J. Appl. Phys., to be published in November 1997.
  10. G.Fisher and H.Hoffman, Solid State Commun. **35**, 793 (1980); H.Hoffman and G.Fisher, Thin Solid Films **36**, 25 (1976).
  11. Z.Tesanovic, M.V.Jaric, and S.Maekawa, Phys. Rev. Lett. **57**, 2760 (1986).
  12. N.Trivedi and N.W.Ashcroft, Phys. Rev. **B38**, 298 (1988).
  13. G.Fishman and D.Calecki, Phys. Rev. Lett. **62**(11), 1302, (1989).
  14. L.Sheng, D.Y.Xing, and Z.D.Wang, Phys. Rev. B **51**(11), 7325 (1995).
  15. М.С.Хайкин, УФН **96**, 409 (1968).
  16. В.В.Сандомирский, ЖЭТФ **52**, 1710 (1967).
  17. В.С.Цой, в кн.: *Электроны проводимости* под. ред. М.И.Каганова, В.С.Эдельмана, М.: Наука, 1985, гл. 10, стр. 329-343.