

PACS numbers: 61.72.Hh, 72.10.Fk, 73.25.+i, 73.50.Bk, 73.50.Lw, 73.61.At, 73.63.Bd

## Електропровідність дрібнокристалічних плівок міді нанометрової товщини

М. Д. Бучковська, Р. І. Бігун, З. В. Стасюк, Д. С. Леонов\*

*Львівський національний університет імені Івана Франка,  
вул. Драгоманова, 50,  
79005 Львів, Україна  
\*Технічний центр НАН України,  
вул. Покровська, 13,  
04070 Київ, Україна*

В умовах надвисокого вакууму вивчено електропровідність ультратонких плівок міді, нанесених на поверхню обтопленого полірованого скла та поверхню підшару германію субатомової товщини. Результати експерименту трактовано в межах сучасних теоретичних моделей квантового та класичного розмірних ефектів. Проаналізовано деякі недоліки наявних модельних уявлень, які не ураховують особливості будови реальних плівок металів, що не уможливило досягнути надійного кількісного опису експериментальних даних.

Under ultrahigh vacuum conditions, the electrical conductivity of ultrathin copper films (with thickness  $d < 15$  nm) deposited on glass surface or on glass surface predeposited with germanium underlayer is investigated. Some difficulties of contemporary size-effect theories of electron-transport phenomenon are analysed. If the peculiarities of real metal-film structure are not taken into account, quantitative description of experimental data cannot be achieved.

В условиях сверхвысокого вакуума изучена электропроводность ультратонких плёнок меди, сформированных на поверхности оплавленного полированного стекла и поверхности подслоя германия субатомной толщины, предварительно нанесённого на поверхность стекла. Результаты эксперимента рассмотрены в рамках современных теоретических моделей квантового и классического размерных эффектов. Проанализированы некоторые недостатки существующих модельных представлений, которые не учитывают особенности строения реальных плёнок металлов, что не позволяет достичь надёжного количественного описания экспериментальных данных.

**Ключові слова:** тонкі металеві плівки, поверхнєве та зерномежове розсіяння, напівпровідникові підшари субатомової товщини, електропровідність.

(Отримано 1 серпня 2013 р.)

## 1. ВСТУП

Розробка методів препарування провідних плівкових зразків товщиною в декілька десятків атомних шарів з наперед заданими структурою та електричними властивостями зумовлено потребами прогресу сучасної мікро- та наноелектроніки. Труднощі у формуванні дуже тонких суцільних металевих шарів на поверхні діелектричних підкладок у першу чергу виникають внаслідок коагуляції зародків кристалізації конденсату, оскільки енергія взаємодії між атомами металу переважає енергію взаємодії атомів металу з атомами чи молекулами підкладки. У плівках дуже малих товщин кристаліти не дотикаються між собою і перенесення заряду в таких плівках існує за рахунок активаційних механізмів. Металевий характер електропровідності в дуже тонких плівках металів починає виявлятися з деякої мінімальної товщини  $d_c$  — порогу протікання ('percolation threshold'), при якій виникає перший канал протікання електричного струму по містках безпосереднього дотику кристалітів між собою. При товщині плівок  $d \sim (1,5-2)d_c$  завершується перехід до чисто металеві електропровідності, і плівка є електрично суцільною. При товщині  $d$ , яка перевищує згадану величину, можливе використання теорій квантового та класичного розмірних ефектів для кількісного опису електропровідності плівок.

Проблема зменшення товщини плівки  $d_c$ , що відповідає порогу перколяції, детально обговорюється в літературі. Одним з методів послаблення процесу коагуляції зародків кристалізації (зменшення величини  $d_c$ ) при формуванні плівок металів на аморфних діелектричних підкладках було запропоновано попереднє нанесення на підкладку підшарів субатомної товщини речовини, яка протидіяла би цьому процесу. В наших попередніх роботах (наприклад, в [1]) детально обговорена проблема керування лінійними розмірами кристалітів металу при попередньому нанесенні на скляну підкладку аморфного підшару германію масовою товщиною в декілька нанометрів. Цей метод використано і в даній роботі при вивченні електричних властивостей плівок міді масовою товщиною меншою за 15 нм, щойнонанесених на аморфну підкладку, яка охолоджена до 78 К. У роботі обговорено можливість використання квазикласичних [2, 3] та квантових [4-8] теорій явищ перенесення заряду в металевих зразках обмежених розмірів для кількісного опису розмірних залежностей електропровідності плівок міді.

## 2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Нанесення плівок міді і дослідження їхньої електропровідності виконували при тиску залишкових газів, що не перевищував  $10^{-7}$  Па, у відпаяних скляних експериментальних приладах. Для формування плівок міді і германію використовували метод термічного випаровування матеріалів.

Методика експерименту в цілому є аналогічною методикам, яких використовували у наших попередніх роботах (див., наприклад, [1, 9]).

Досліджувались електричні властивості щойноконденсованих на охолоджених до 78 К обтоплених полірованих скляних підкладках плівок. Швидкість конденсації пари металу не перевищувала 0,01 нм/с. Підшари германію товщиною в декілька атомових шарів наносили на підкладку безпосередньо перед конденсацією міді. Масову товщину плівок оцінювали за зсувом резонансної товщини п'езокварцового вібратора з чутливістю не гіршою за 0,2 нм. Опір плівок металу вимірювали за допомогою двозондової методики цифровим приладом В7-34А, спряженим з комп'ютером. Опір підшару германію завжди перевищував  $10^8$  Ом.

## 3. ОСОБЛИВОСТІ КВАЗИКЛАСИЧНОГО ТА КВАНТОВОГО ПІДХОДІВ ДО ОПИСУ РОЗМІРНИХ КІНЕТИЧНИХ ЯВИЩ У ТОНКИХ ПЛІВКАХ МЕТАЛІВ

Теорії класичного та квантового розмірних ефектів базуються на припущенні, що металева плівка в площині, паралельній підкладці, є суцільним однорідним ізотропним шаром деякої товщини  $d$ . Зовнішні поверхні плівки, одна з яких контактує з підкладкою, а інша — з вакуумом або газовим середовищем, можуть бути атомово-гладкими (підхід Фукса–Зондгаймера та моделі внутрішнього розмірного ефекту Майадаса–Шацкеса і Тельє–Тоссе–Пішар [2]) або на цих поверхнях наявні неоднорідності більших розмірів, однак лінійні параметри цих неоднорідностей (середня амплітуда нерівностей, середньоквадратична неоднорідність товщини і т.ін.) є величинами малими в порівнянні з товщиною  $d$  пласкопаралельної частини шару (моделі Намби, Віссмана та квантові моделі).

У даному аналізі зупинимось на моделях, які трактують плівку як шар, структура якого не змінюється із зміною товщини плівки. Зауважимо, що всі квантові моделі побудовано саме на такому підході і не враховують існування зерен різних розмірів, розривів, тріщин, лабіринтових структур і інших дефектів, які звичайно присутні в реальних плівках.

Виходимо з того, що плівка є однорідним ізотропним шаром Зоммерфельдового вільноелектронного металу.

### 3.1. Квазикласичні підходи [2, 3]

Перша послідовна теорія, яка враховує вплив поверхневого розсіювання носіїв струму на кінетичні коефіцієнти тонких плівок металів (теорія Фукса–Зондгаймера) базується на розв'язку Больцманового кінетичного рівняння для пласкопаралельного шару вільноелектронного газу Друде–Зоммерфельда. Теорія протягом десятків років використовувалась для пояснення розмірних залежностей кінетичних коефіцієнтів плівок металів. Для плівок, структура яких не залежить від товщини плівки  $d$ , залежність питомого опору плівки від  $d$  описується відомим наближеним виразом (для  $d > \lambda$ ):

$$\rho(d) = \rho_{\infty} \left( 1 + \frac{3}{8} \frac{\lambda(1-p)}{d} \right), \quad (1)$$

в якому використано величину  $\rho_{\infty}$  — питомий опір плівки безмежної товщини ( $d \rightarrow \infty$ ), структура якої ідентична структурі плівки довільної товщини  $d$ . Інші дві величини:  $\lambda$  — середня довжина вільного пробігу носіїв струму в плівці даної структури та  $p$  — коефіцієнт дзеркальності відбивання носіїв струму зовнішніми поверхнями плівки ( $p = 1$  при дзеркальному відбиванні та  $p = 0$  при повністю дифузному розсіюванні носіїв, коли при зіткненні з поверхнею електрон повністю втрачає напрямлену вздовж електричного поля складову свого імпульсу). Очевидно, що величини  $\rho_{\infty}$  і  $\lambda$  відрізняються від своїх аналогів  $\rho_0$  та  $\lambda_0$ , які є характеристиками масивного монокристала ( $\rho_{\infty} > \rho_0$ ,  $\lambda < \lambda_0$ ), оскільки структура монокристала досконаліша за структуру плівки. Зокрема, співвідношення між цими величинами є в певному сенсі характеристикою ступеня досконалості плівки. Величина  $p$  ( $0 \leq p \leq 1$ ) вважається сталою і незалежною від  $d$ . Останнє припущення є суттєвим недоліком даного підходу, оскільки для конкретного зіткнення електрона з поверхнею  $p$  залежить від кута падіння на поверхню. При зменшенні  $d$  суттєво зростає кількість ковзних зіткнень з поверхнею. Зауважимо щодо роботи Родеріка [2], де було показано, що вираз (1) може з достатнім ступенем точності (декілька відсотків) використовуватись до товщин  $d \geq (0,1-0,2)\lambda$ .

Реальна полікристалічна плівка не може вважатись пласкопаралельним шаром, бо на її поверхнях є неоднорідності більших розмірів, ніж прийняті за основу Фуксової моделі, неоднорідності атомового масштабу. Тому уточнення Фуксової моделі виконувалися різними дослідниками, і найбільш відомими є моделі Намби [2] та Віссмана [3].

В моделі Намби вважається, що в напрямку протікання електричного струму на поверхні плівки наявні неоднорідності, параметри

яких можна описати гармонічною функцією, середня амплітуда якої  $h < d$ . Для залежності  $\rho(\bar{d})$ , (тут  $\bar{d}$  — середня товщина плівки) одержують наближений вираз:

$$\rho(\bar{d}) = \rho_{\infty} \left[ 1 - \left( \frac{h}{\bar{d}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \left[ 1 + \frac{3\lambda(1-p)}{8d} \left[ 1 - \left( \frac{h}{\bar{d}} \right)^2 \right]^{-1} \right], \quad (2)$$

Зауважимо, що при  $h \ll \bar{d} \approx d$  вираз (2) трансформується у вираз (1).

За припущеннями Віссмана [3] плівка складається з моноблоків із стінками, перпендикулярними поверхні підкладки. Вважається, що середня товщина кристалітів розподілена за Гауссовим законом із амплітудою відхилю  $H$  від середньої товщини  $\bar{d}$ . Усереднене значення питомого опору плівки товщиною  $d = \bar{d}$  розраховують з допомогою співвідношення, одержаного при умові  $H \ll d$  та  $p = 0$ :

$$\rho(d, H) = \rho_{\infty} \left[ 1 + \frac{3\lambda}{8d} \left\{ 1 + \frac{H^2}{d^2} + \frac{H^4}{d^4} + \dots \right\} \right]. \quad (3)$$

Величина  $H$  в певному сенсі є аналогом  $h$  у моделі Намби (можна вважати, що  $h \approx 0,707H$ ). Для плівок великих товщин  $d \gg \lambda$  та  $d \gg H$  вираз (3) також трансформується у вираз (1).

Основним недоліком даного підходу є виставлена умова  $H \ll d$ , оскільки в реальних задачах при середній товщині плівки в декілька нанометрів амплітуда поверхневих неоднорідностей  $H$  сумірна  $d$ , а тому величина  $(H/d)^4$  не може вважатись дуже малою в порівнянні з  $(H/d)^2$ .

### 3.2. Квантові моделі явищ перенесення заряду в металевих плівках

Теорії квантового перенесення заряду в металевих плівках виходять із сприйняття надійності класичних виразів для розмірних залежностей кінетичних коефіцієнтів, одержаних на основі розв'язку Больцманного кінетичного рівняння для плівок відносно великих товщин, (принаймні, для  $d > \lambda$ ), однак вносять коректні квантові поправки в оператор розсіювання носіїв струму. З цією метою у Гамільтоніан для електронів вводять ще один доданок, який враховує вплив поверхневого потенціалу.

Поверхневий потенціал, обумовлений існуванням неоднорідностей поверхні, вважають збуренням до Гамільтоніана, а тому задачі розв'язують у межах теорії збурень. Внаслідок у виразах для енергії частинок виникає дискретний доданок:

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\pi^2 \hbar^2}{2md} n^2. \quad (4)$$

У теоріях [4, 5, 6] одержано вирази, придатні для опису експериментальних даних. Ці квантово-механічні теорії базуються на теорії лінійного відгуку Кубо, і основна увага в них звертається на ефекти, що пояснюють зростання питомого опору плівок, коли товщина  $d$  стає меншою за середню довжину вільного пробігу електронів провідності.

Геометричні особливості поверхневих неоднорідностей звичайно характеризують величинами:  $H_{\text{RMS}}$  — середньоквадратична амплітуда поверхневих неоднорідностей та  $\zeta$  — латеральна кореляційна довжина. Зауважимо, що згадані величини для конкретних плівок можна знайти експериментально з допомогою сканівної тунельної мікроскопії.

З метою створення можливості порівняння результатів розрахунку внеску поверхневого розсіювання в сумарний опір плівкового зразка в межах квазикласичних та квантових підходів використаємо аналіз розмірних залежностей величини залишкової провідності

$$\sigma_{\text{res}} = 1/[\rho(d) - \rho_{\infty}], \quad (5)$$

яка повинна б враховувати внесок поверхневого розсіювання в чистому вигляді. Аналіз виразів (1)–(3) показує, що при великій товщині  $d \gg h, H$  та при  $d > \lambda$  залежність  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$  лінійна:

$$\sigma_{\text{res}}(d) \sim d. \quad (6)$$

Квантові теорії, які буде проаналізовано нижче, також передбачають лінійну залежність  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$  у цьому діапазоні товщин.

При переході до балістичного перенесення заряду, коли  $\lambda > d$ , а електрони не зазнають зіткнень в об'ємі плівки і розсіюються лише поверхнею, залежність  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$  значно сильніша і, як показують результати експерименту (наприклад, [1]), ця залежність може бути записана у вигляді:

$$\sigma_{\text{res}}(d) \propto d^{\alpha} \quad (7)$$

(тут  $\alpha \geq 2, 1$ ).

До подібного вигляду (7) можна звести вирази для розмірної залежності провідності металевих плівок, одержані за теоріями [4–6]. Зокрема, в [4] показано, що при зменшенні товщини плівки існує певна точка зламу на залежності  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$ , в якій існує перехід від переважного об'ємного розсіювання носіїв струму, коли  $\sigma_{\text{res}}(d) \propto d$ , до переважного поверхневого розсіювання, коли  $\sigma_{\text{res}}(d) \propto d^{\alpha}$ . Показник степеня найчастіше  $\alpha > 1$ , а саме  $\alpha = 2, 1$ .

В теорії [5] показано, що провідність плівки в площині, паралельній підкладці, пропорційна квадрату відношення середньої тов-

щини плівки  $d$  до  $H_{\text{RMS}}$ :  $\sigma \propto (d/H_{\text{RMS}})^2$ . До кінця встановлено:  $\sigma_{\text{res}}(d) \propto d^\alpha$ .

В теорії [6] для залежності  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$  одержано вираз:

$$\sigma_{\text{res}} \propto d^2 \left( 1 - \frac{6}{(3n\pi^5)^{1/3}} \frac{1}{d} \right), \quad (8)$$

в якому  $n$  — концентрація носіїв струму в плівці. Вираз (8) справедливий для металевих та напівпровідникових плівок. Зокрема, для напівпровідникових плівок  $\sigma_{\text{res}}(d) \propto d^6$ . Для металевих плівок товщиною  $1 \text{ нм} < d < 20 \text{ нм}$  при концентрації носіїв струму  $n \cong 3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$  вираз (8) спрощується до вигляду  $\sigma_{\text{res}} \propto d^{2,1}$ .

Теорія m(SXW) [7, 8] створена як квантова версія теорії Фукса–Зондгаймера з квантовим коефіцієнтом відбивання  $R$ , залежним від товщини плівки, а відповідно від числа електронних станів, залежного від  $d$ . Відношення питомої провідності плівки  $\sigma(d)$  до питомої провідності масивного металу  $\sigma_0$  розраховують у вигляді:

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \frac{3\lambda}{2d} \frac{1}{X_0 N_c} \sum_{n=1}^{N_c} u_n (1 - u_n^2) \frac{(1 - R(u_n))(1 - E_d(u_n))}{1 - R(u_n)E_d(u_n)}. \quad (9)$$

Тут  $X_c = dk_F/\pi$ ,  $N_c = \text{int}X_c$ ,  $X_0 = 3[1 - (N_c/X_c)^2(1 + 1/N_c)(1 + 1/2N_c)/3]/2$ ,  $u_n = q_n/k_F = \cos\Theta_n = n\pi/(dk_F)$  та  $E_d = \exp(-d/u_n l)$ ,  $N_c$  — максимальна густина станів у плівці.

Вираз (9) має достатньо добре відтворювати експериментальні результати в трьох основних розмірних областях:

а) у наближенні товстої плівки ( $h \ll d$ ), коли квантовими ефектами можна знехтувати, а об'ємне розсіювання є переважним в порівнянні з поверхневим, рівняння (9) відтворює класичний результат Фукса–Зондгаймера[2];

б) у межах, коли внески поверхневого та об'ємного розсіювання в сумарне розсіювання носіїв струму є сумірними ( $h \approx d$ ), рівняння (9) відтворює результат Трівіді і Ашкрофта [5];

в) у межах ультратонких плівок, де поверхнєве розсіювання переважає над об'ємним розсіюванням ( $H \geq d$ ), рівняння (9) відтворює результат Фішмана і Цалецькі [6].

Використання проаналізованих вище квазикласичних та квантових теорій явищ перенесення заряду в умовах прояву розмірних ефектів для пояснення конкретних експериментальних даних можливе для суцільних металевих плівок. Тому для вияснення мінімальних товщин плівок, при яких плівка стає електрично суцільною з металевим характером електропровідності, необхідно використати підходи перколяційних теорій. Згідно з перколяційною моделлю [10, 11] в околі переходу від острівцевої плівки до елект-

рично суцільної плівки, опір  $R$  плівки металу можна представити універсальною функцією товщини  $d$ :

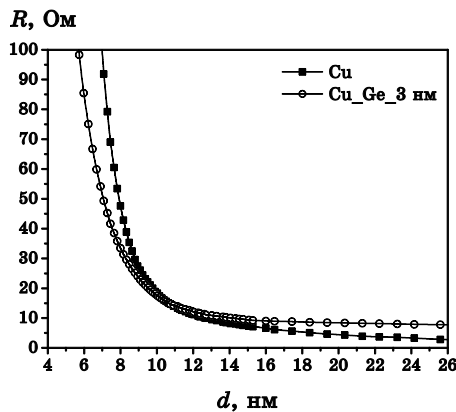
$$R \propto (d - d_c)^{-\nu}. \quad (10)$$

Вираз (10) одержано на основі припущення, що  $(d - d_c) \propto (x - x_c)$ , де  $x$  — параметр, що характеризує ступінь заповнення поверхні підкладки металом;  $x_c$  — параметр перколяції, який дорівнює ступеню заповнення поверхні підкладки, при якому кристаліти (острівці) сформують перший провідний канал. Величина  $x_c$  залежить від форми та розмірів кристалітів. Степеневий показник  $\nu$  у виразі (10) залежить від механізму росту плівки [10]. Зокрема, при двовимірному рості плівки (2D-перколяція) степеневий показник  $\nu$  змінюється від 1 до 1,3, тоді як для 3D-перколяції характерні величини, більші за 1,5. Відповідно ступінь заповнення поверхні, що відповідає '2D-percolation threshold'  $x_c > 0,31$ , а для 3D-режиму росту  $x_c \geq 0,5$ . Згідно із зазначеним вище, залежність опору плівки від її товщини лінійна на графіку функції залежності  $R = R(d)$ , побудованому в логарифмічному масштабі  $R \propto (d - d_c)^{-\nu}$ . Одержану величину  $d_c$  можна використати для оцінки мінімальної товщини плівки, при якій металевий характер провідності стає переважним. Як вже згадувалось вище, ця товщина в 1,5–2 рази більша за  $d_c$ .

#### 4. ОБГОВОРЕННЯ РЕЗУЛЬТАТІВ ЕКСПЕРИМЕНТУ

Типові розмірні залежності опору щойнонанесених на охолоджену до 78 К підкладку плівок міді наведено на рис. 1. Як видно з рисунка, поведінка величини опору плівок міді однакових розмірів, нанесених на чисту поверхню обтопленого полірованого скла (крива 1) та на поверхню скла, покритого підшаром германію масовою товщиною 3 нм, відрізняються між собою. У ділянці малих товщин опір плівки, нанесеної на підшар германію, менший за опір плівки, нанесеної на чисту поверхню скла. При товщині плівок міді, більшої за 10 нм, опір плівок, нанесених на поверхню підшару германію, більший за опір плівок, нанесених на чисту поверхню скла. Причиною цього є різні умови виникнення зародків кристалізації в цих випадках. Вищезгадане стане зрозумілим з аналізу одержаних залежностей. Графіки наведених на рис. 1 залежностей, побудовані в логарифмічному масштабі, показано на рис. 2. З рисунка видно, що залежності  $R$ , побудовані в масштабі  $R \propto (d - d_c)^{-\nu}$ , лінійні з показниками степеня відповідно  $\nu = 1,3$  для плівок міді, нанесених на чисту поверхню скла, та  $\nu = 1,1$  для плівок, нанесених на поверхню підшару германію масовою товщиною 3 нм. Для плівок міді, нанесених на поверхню підшарів германію менших товщин, величина  $\nu$  приймає значення між 1,3 та 1,1.

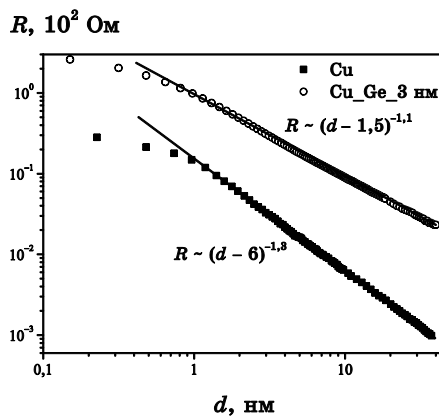




**Рис. 1.** Розмірні залежності опору плівок міді, щойнонанесених на поверхню скла або поверхню підшарів германію масовою товщиною.

Перколяційна товщина  $d_c = 6$  нм для плівки міді, нанесеної на чисту поверхню скла, а для плівок, нанесених на підшари германію різних товщин, ця величина суттєво менша. Зокрема, якщо  $d_{Ge} = 1$  нм  $d_c = 3,1$  нм і  $d_c = 1,5$  нм, якщо  $d_{Ge} = 3$  нм.

На основі аналізу даних рис. 1, 2 можна стверджувати, що щойнонанесені на поверхню скла плівки міді є електрично суцільними, починаючи з товщин біля 8–10 нм, а плівки, щойнонанесені на поверхню підшару германію масовою товщиною 3 нм, суцільні при  $d \geq 3-4$  нм. Якісно подібний висновок було зроблено в [12, 13] при дослідженні низькотемпературної електропровідності і термо-е.р.с. плівок міді на основі аналізу температурного коефіцієнта

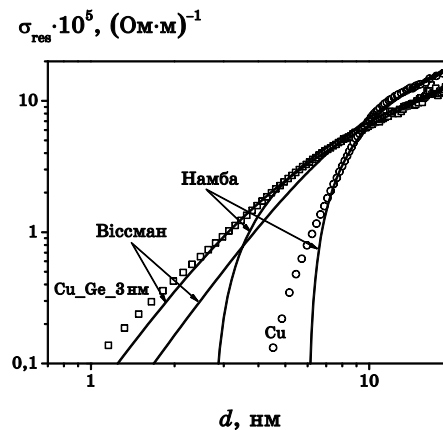


**Рис. 2.** Дані рис. 1, перераховані в координатах  $R = R(d - d_c)$ , поданих у логарифмічному масштабі. Точки — експериментальні дані, відрізки прямих — лінійна апроксимація.

опору плівок у діапазоні температур 78–90 К та визначення перколяційної товщини  $d_c$  плівок, нанесених на скло та на підшар германію. Величини  $d_c$ , одержані в [12], виявились дещо вищими від одержаних нами в даній роботі внаслідок використання в [12] більших швидкостей нанесення плівок міді.

Наведені на рис. 1, 2 експериментальні дані можна кількісно описати з допомогою виразів теорій Намби та Віссмана. Для прикладу на рис. 3 показано результати порівняння відповідних розрахункових кривих з експериментальними даними, одержаними для плівок міді, зображеними на рисунку у вигляді точок. Теоретичні криві побудовано для плівок міді, нанесених на чисту поверхню скла при  $\rho_\infty = 10,6 \cdot 10^{-8}$  Ом·м та  $\lambda = 15$  нм і для плівок міді, нанесених на поверхню підшару германію масовою товщиною у 3 нм  $\rho_\infty = 12,7 \cdot 10^{-8}$  Ом·м та  $\lambda = 11$  нм. Параметри поверхневих неоднорідностей  $h$  та  $H_{\max}$  за значеннями величин добре узгоджуються між собою, при умові, що  $h \approx 0,7H_{\max}$ . Для  $h$  одержано величини відповідно 6 нм та 2,7 нм, а для  $H_{\max} = 7,6$  нм та 3,7 нм.

Існування відмінностей між наведеними вище параметрами плівок, нанесених на поверхню скла та поверхню підшару германію, зрозуміле, якщо врахувати особливості формування плівок: на поверхні підшару германію формуються більш дрібнозернисті конденсати міді в порівнянні з плівками, нанесеними на чисту поверхню скла. Результатом цього є відмінність у величинах  $d_c$ ,  $\rho_\infty$  та  $\lambda$ . З рисунка 3 також видно, що модель Намби, на відміну від Віссманової моделі, краще описує розмірну залежність  $\sigma_{\text{res}}$  крупнозернистих плівок. Віссманова модель добре описує розмірну залежність  $\sigma_{\text{res}}$

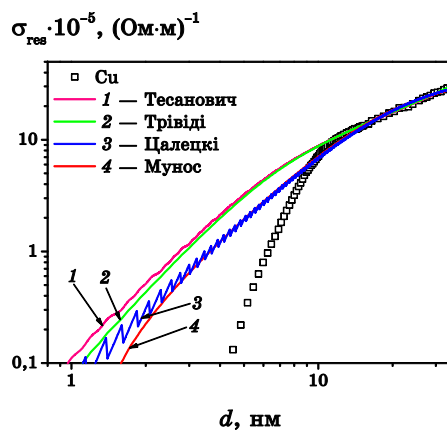


**Рис. 3.** Розмірні залежності залишкової електропровідності щойнонанесених на поверхню скла та підшару германію товщиною 3 нм плівок міді. Точки — експериментальні дані, суцільні криві — результат розрахунку з допомогою теоретичних виразів моделей Віссмана та Намби.

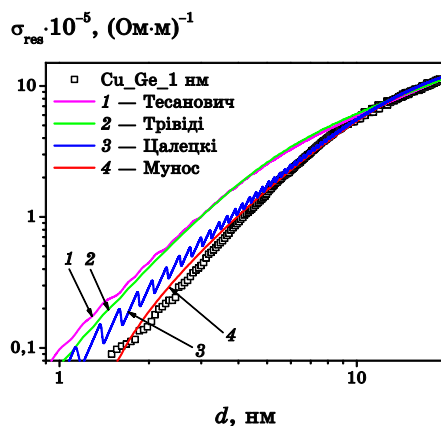
плівок з меншим розміром зерна. Даний висновок підтверджує аналіз даних, одержаних для плівок міді, нанесених на поверхню підшарів германію інших товщин.

Використання теорій квантового перенесення заряду в плівках металів для кількісного опису електропровідності плівок міді, нанесених на поверхню полірованого скла та поверхні підшарів германію різних товщин, підтверджує часткову придатність теорій [4–8]. Для ілюстрації вищезгаданого на рис. 4–6 показано результати розрахунку розмірних залежностей залишкової провідності плівок металу з допомогою виразів згаданих теорій з використанням величин  $\rho_{\infty}$  та  $\lambda$ , розрахованими з допомогою виразів квазикласичних теорій з розмірних залежностей  $\rho(d)$  плівок міді, нанесених на чисту поверхню скла (рис. 4) та на поверхню підшарів германію масовою товщиною 1 нм та 3 нм (відповідно рис. 5, 6). Узгодження теоретичних залежностей (суцільні лінії) з експериментальними даними (на рисунках — точки) здійснювали шляхом підбору величин, що характеризують параметри поверхневих неоднорідностей  $H_{\text{RMS}}$  та  $\zeta$ .

З рисунка 4 видно, що для плівок міді, нанесених на чисту поверхню скла, всі теоретичні залежності лише якісно відтворюють тенденцію зменшення  $\sigma_{\text{res}}$  при зменшенні товщини плівки. Для плівок, нанесених на поверхню підшарів германію, спостерігається краще узгодження розрахункових кривих із експериментальними залежностями. В першу чергу це стосується теоретичних кривих, розрахованих з використанням теорій [6] та [7, 8]. Теоретичні криві, розраховані в межах теорій [4] та [5], лише наближаються до експериментальних величин, однак одержані числові величини суттєво ві-



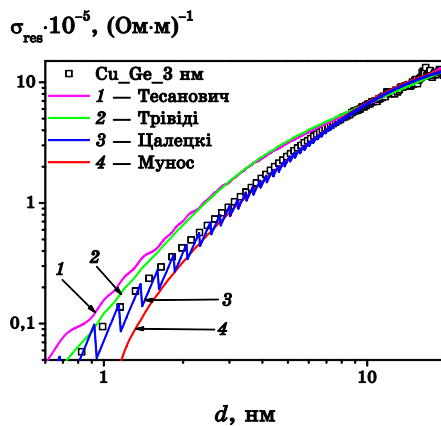
**Рис. 4.** Розрахункові (суцільні) та експериментальні (точки) залежності залишкової провідності плівок міді, нанесених на чисту поверхню скла від товщини плівки.



**Рис. 5.** Розмірні залежності залишкової провідності щойнонанесених на поверхню підшару германію масовою товщиною 1 нм плівок міді. Точки експериментальні дані. Суцільні криві — результати теоретичного розрахунку.

дрізняються від експериментальних даних.

Мінімальна товщина плівки міді, для якої теоретичні залежності, розраховані за допомогою виразів теорій [6] та [7, 8], надійно узгоджуються з експериментальними даними, залежить від товщини попередньо нанесеного підшару германію. Зокрема, для плівок, нанесених на підшар германію масовою товщиною 1 нм, таке узгодження існує, принаймні до масових товщин плівок міді  $d_{\min} = 4\text{--}5$



**Рис. 6.** Розмірні залежності залишкової провідності щойнонанесених на поверхню підшару германію масовою товщиною 3 нм плівок міді. Точки експериментальні дані. Суцільні криві — результати теоретичного розрахунку.

нм, а для плівок міді, нанесених на підшар германію масовою товщиною 3 нм,  $d_{\min} = 3$  нм. Оскільки лінійні розміри кристалітів у конденсаті міді на поверхні підшарів германію зменшуються із збільшенням товщини підшару Ge, то очевидно, що із збільшенням товщини підшару зменшуються і параметри, які характеризують неоднорідності поверхні плівок міді. Згідно з оцінкою, зробленою для плівок міді, нанесених на поверхню підшарів германію товщиною 1 нм,  $H_{\text{RMS}} = 5$  нм та  $\zeta = 2$  нм, а для плівок Cu, нанесених на підшар германію товщиною 3 нм  $H_{\text{RMS}} = 3$  нм та  $\zeta = 1,5$  нм. Наведені значення  $H_{\text{RMS}}$  не суперечать величинам, визначеним розрахунками за виразами квазикласичних моделей.

На завершення обговорення результатів дослідження залишкової провідності ультратонких плівок міді (в діапазоні товщин, що відповідають балістичному перенесенню заряду  $\lambda > d$ ) зауважимо наступне. Модельні розрахунки теорій квантового перенесення заряду в плівках металів [4–8], виконано для ідеальної однорідної ізотропної в площині паралельній підкладці плівки з поверхневими неоднорідностями, характеристики яких  $H_{\text{RMS}}$  та  $\zeta$  суттєво малі в порівнянні з товщиною плівки  $d$ , не відповідають структурі реальної дрібнокристалічної плівки металу. При розвитку теорії квантового перенесення заряду в дрібнокристалічній плівці необхідно врахувати кластерну будову шару, існування в плівці розривів та порожнин, результатом цього є невідповідність реальної товщини плівки її масовій товщині (реальна товщина плівки більша за її масову товщину). Крім того, при розв'язку задач у межах теорій збурень трактування параметрів поверхневих неоднорідностей, як малих величин в порівнянні з товщиною плівки  $d$  в області малих товщин, в більшості випадків некоректне. Згадане спрощення справедливе лише при розгляді властивостей вирощених епітаксіально плівок у режимі росту шар за шаром. В останньому випадку поверхневі неоднорідності є реально атомного масштабу [14, 15].

## 5. ВИСНОВКИ

1. Кількісний опис розмірних залежностей питомої провідності ультратонких плівок міді підтверджує придатність сучасних теорій класичного та квантового розмірних ефектів для пояснення цих залежностей. Зокрема, підтверджено можливість надійного узгодження результатів розрахунків, виконаних у межах квазикласичних та квантових підходів, в ділянці товщин плівок, при яких має місце перехід до балістичного перенесення заряду, коли розсіяння носіїв струму поверхнею стає переважним.

2. Використання теорій квантового розмірного ефекту для пояснення розмірних залежностей провідності плівок металів у припеколяційній області товщин ускладнено внаслідок спрощеного мо-

дельного трактування плівки як однорідного ізотропного шару в площині, паралельній підкладці, і таким чином неможливістю врахувати вплив особливостей морфології плівок на перенесення заряду.

3. Підтверджено придатність квантових теоретичних моделей [6] і [7, 8] для кількісного опису електропровідності дрібнодисперсних плівок міді в умовах балістичного перенесення заряду для товщин плівок близьких до перколяційної теорії.

## ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. А. П. Шпак, Р. І. Бігун, З. В. Стасюк, Ю. А. Куницький, *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*, **8**, вип. 2: 339 (2010).
2. З. В. Стасюк, А. І. Лопатинський, *ФХТТ*, **2**, № 4: 521 (2001).
3. Z. Tešanović, M. Jarić, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, No. 21: 2760 (1986); Z. Tesanovic, *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **20**, No. 6: 829 (1987).
4. P. Wißmann and H.-U. Finzel, *Springer Tracts in Modern Physics* (Berlin: Springer: 2007), vol. **223**, p. 128; H. U. Finzel and P. Wissman, *Annalen der Physik*, **498**, H. 1/2: 5 (1986).
5. N. Trivedi and N. W. Ashcroft, *Phys. Rev. B*, **38**, No. 17: 12298 (1988).
6. G. Fishman and D. Calecki, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, No. 11: 1302 (1989); D. Calecki and G. Fishman, *Surf. Sci.*, **220**: 110 (1990); G. Fishman and D. Calecki, *Phys. Rev. B: Condens. Matter*, **43**, No. 14: 11581 (1991).
7. L. Sheng, D. Y. Xing, and Z. D. Wang, *Phys. Rev. B*, **51**, No. 11: 7325 (1995).
8. R. Munoz, *J. Molecular Catalysis A: Chemical*, **228**: 163 (2005); R. C. Munoz, G. Vidal, G. Kremer, L. Moraga, C. Arenas, and Andres Concha, *J. Phys: Cond. Matter*, **12**: 2903 (2000).
9. Р. І. Бігун, З. В. Стасюк, *ФХТТ*, **6**, № 3: 414 (2005).
10. K. H. Han, Z. S. Lim, and S.-I. Lee, *Physica B: Condensed Matter*, **167**: 185 (1990).
11. M. Walther, D. G. Cooke, C. Sherstan, M. Hajar, M. R. Freeman, and F. A. Hegmann, *Phys. Rev. B*, **76**: 125408-1-9 (2007).
12. Р. І. Бігун, М. Д. Бучковська, Н. С. Колтун, З. В. Стасюк, Д. С. Леонов, *Металлофиз. новейшие технол.*, **35**, № 1: 85 (2013).
13. З. В. Стасюк, Р. І. Бігун, Ю. А. Куницький, Н. С. Колтун, О. Є. Кравченко, *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*, **9**, вип. 3: 599 (2011).
14. R. C. Munoz, R. Finger, C. Arenas, G. Kremer, and L. Moraga, *Phys. Rev. B*, **66**: 1 (2002).
15. M. Jalochowski and E. Bauer, *Phys. Rev. B*, **37**: 8622 (1988).