УДК 539.216.2; 537.311.31

© 1998 р. Л.В. Дехтярук, Ю.О. Колесніченко*

Харківський державний технічний університет будівництва та архітектури, Харків
*Фізико–технічний інститут низьких температур ім.Б.І.Вєркіна НАН України, Харків

ПРОВІДНІСТЬ МЕТАЛЕВИХ МУЛЬТИШАРІВ З ПОЛІКРИСТАЛІЧНОЮ СТРУКТУРОЮ

У рамках моделі провідності полікристалічних зразків, запропонованої Маяадасом і Шацкесом [6], теоретично досліджено коефіцієнт питомої провідності мультишарів з полікристалічною структурою. Отримано його точний вираз для довільних значень параметрів, які характеризують взаємодію носіїв заряду з межами поділу шарів, та асимптотичні значення для товстих і тонких, в порівнянні з довжиною вільного пробігу електронів, шарів металу. Передбачено немонотонну залежність провідності мультишару від відношення товщин су-сідніх шарів.

The conductivity coefficient of multilayers with a polycrystalline structure is theoretically investigated in the context of polycrystalline conductivity model, offered by Mayadas and Shatzkes [6]. Its exact expression is received for any values of parameters, which characterize interaction of carriers with layer interfaces, as well as asymptote values for thick and thin metal layers, in comparison with a length of free run. Is assumed unmonotonically dependence of multilayer conductivity on thickness ratio of neighbouring layers.

Металеві мультишари (МШ) – це періодичні багатошарові структури (штучні гратки), які широко використовуються в якості елементів сучасних мікроелектронних приладів, що визначає значний інтерес до вивчення їх фізичних властивостей. З іншої сторони, за допомогою методу штучних граток можна синтезувати нові провідники, які мають особливі електрофізичні властивості. Підбираючи матеріали шарів і їх товщини, можна одержати мультишар з потрібними якостями.

Інтерес до дослідження мультишарів пов'язаний не тільки із постійним пошуком нової елементної бази мікроелектроніки, але і з можливістю одержання внаслідок таких досліджень важливої з фундаментальної точки зору інформації щодо взаємодії носіїв заряду з межами поділу (МП) шарів металів з різними характеристиками.

Як правило, мультишари, які використовуються у мікроелектроніці та в реальних фізичних експериментах, мають полікристалічну структуру. Якщо довжина вільного пробігу носіїв заряду l_i співпадає із характерним розміром кристалітів L_i в площині МШ і товщиною шарів мультишару d_i, виникає конкуренція процесів розсіювання електронів в об'ємі, на межах поділу шарів та міжкристалітних межах багатошарового зразка. Це й приводить до нетривіальної залежності коефіцієнта питомої провідності МШ від їх товщини в порівнянні з аналогічною залежністю для одношарового зразка [1,2].

Якщо товщина шарів d_i значно більша дебройлівської хвилі електрона, провідність МШ може бути описана за допомогою квазікласичної функції розподілу для носіїв заряду. Такий підхід до цієї проблеми був реалізований у роботах [3-5] і присвячений аналізу провідних властивостей МШ структур у різних ситуаціях. У роботі [3] теоретично було проаналізовано провідність мультишару з полікристалічною структурою у випадку, коли тунелювання носіїв заряду через МП шарів відсутнє. Проте навіть у цьому окремому випадку було отримано досить громіздку аналітичну формулу, яка не дозволяє зробити висновок про залежність провідності від співвідношення товщин шарів і параметрів, що характеризують розсіювання електронів як в об'ємі, так і на межах поділу шарів МШ.

У даній роботі у рамках моделі Маяадаса і Шацкеса [6] отримана загальна аналітична формула для провідності МШ при самих загальних допущеннях про характер взаємодії носіїв заряду із межами поділу шарів. Отримане її асимптотичне значення для товстих і тонких шарів у порівнянні з довжиною вільного пробігу носіїв заряду для МШ з великими та малими кристалітами. Передбачено немонотонну поведінку коефіцієнта питомої провідності мультишару із зміною відношення товщин сусідніх шарів, яка обумовлена конкуренцією вище вказаних процесів релаксації електронів.

Розглянемо періодичну багатошарову структуру (рис.1), яка складається з полікристалічних шарів металу, що чергуються, різної товщини ($d_1 \neq d_2$) і з різною концентрацією дефектів ($l_1 \neq l_2$). Припустимо, що в мультишарі створено зовнішнє електричне поле, яке направлене паралельно межам поділу шарів МШ.

Для того, щоб обчислити провідність МШ, необхідно розв'язати лінеаризоване по електричному полю $\vec{E} = (E,0,0)$ кінетичне рівняння для нерівноважної добавки $-(\partial f_0 / \partial \varepsilon_i)\Psi_i(\vec{r},\vec{p})$ до фермієвської функції розподілу $f_0(\varepsilon_i)$:

$$\vec{v}\frac{\partial \Psi}{\partial \vec{r}} + \frac{\Psi_i}{\tau_i} = e\vec{v}_i\vec{E}\,. \qquad (1)$$

Тут $e, \vec{p}, \vec{r}$ – заряд, імпульс і координата носія заряду, $\vec{v}$, $\varepsilon(\vec{p})$ – його швидкість і енергія, τ_i – ефективний час релаксації, який враховує розсіювання носіїв заряду як в об'ємі МШ, так і на міжкристалітних межах, і в рамках моделі МШ [6] може бути записаний у вигляді:

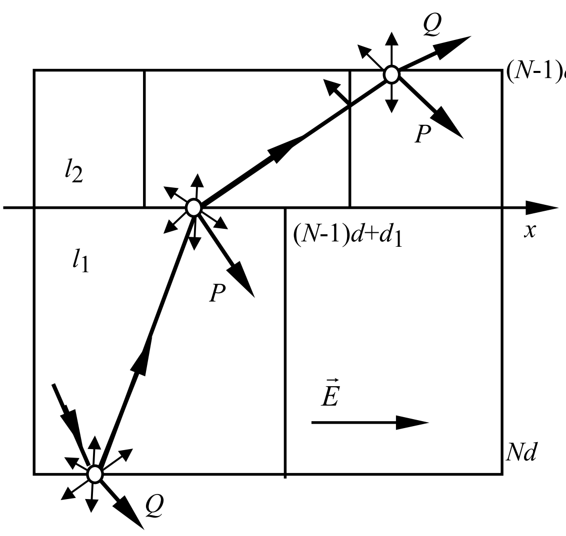

Рис.1 Модель МШ, який складається з полікристалічних шарів металу, що чергуються, різної товщини $d_1 \neq d_2$ і ступеня чистоти $l_1 \neq l_2$. Ламаною лінією схематично показано можливу траєкторію руху носія заряду на елементі періодичності мультишару.

$$\frac{1}{\tau_i} = \frac{1}{\tau_{0i}}\left\{1 + \alpha_i \frac{p_{0i}}{\left|p_{yi}\right|}\right\}, \qquad (2)$$

де τ_{0i} – середній час вільного пробігу електронів відносно їх пружніх зіткнень в об'ємі зразка, p_{0i} – фермієвський імпульс, p_{yi} – перпендикулярна міжкристалітним межам компонента квазіімпульсу електронів, $\alpha_i = (l_i / L_i) \times (R_i /(1 - R_i))$, l_i – довжина вільного пробігу носіїв заряду, L_i – середній розмір кристалітів у площині МШ, R_i – ймовірність розсіювання електронів на міжкристалітній межі.

Загальним розв'язком кінетичного рівняння (1) є функція

$$\Psi(\vec{r},\vec{p}) = \Phi_i \cdot e^{\frac{\lambda - t}{\tau_i}} + \int_{\lambda}^{t} dt' \cdot e\vec{v}_i\vec{E} \cdot e^{\frac{t' - t}{\tau_i}}\,, \qquad (3)$$

де t - час руху електрона по траєкторії, λ – момент часу останнього відбиття носія заряду межею поділу шарів в точці

$$x_s = (d(N-1), d(N-1) + d_1, Nd)\,,$$

$$\lambda = t - \left|\frac{x - x_s}{v_{xi}}\right|, \qquad (4)$$

де N - номер подвійного шару товщиною $d = d_1 + d_2$, який виступає елементом періодичності мультишару. Довільну функцію Φ_i, яка описує характер взаємодії носіїв заряду із межами поділу шарів мультишару, слід визначити з граничних умов.

Для спрощення припустимо, що закон дисперсії для електронів у кожному шарі МШ квадратичний та ізотропний. У цьому випадку перенормування хімічного потенціалу носіїв заряду після взаємодії із межами поділу відсутнє [7,8] і періодичні граничні умови мають вигляд [9]:

$$\begin{aligned}&\Psi_i^{S_j}(Nd - d_2, \vec{p}) = \\ &= P\Psi_i^{S_i}(Nd - d_2, \vec{p}\,') + Q\Psi_j^{S_j}(Nd - d_2, \vec{p}\,''),\end{aligned} \qquad (5)$$

$$\begin{aligned}\Psi_i^{S_i}(Nd - d(2-i), \vec{p}) &= P\Psi_i^{S_j}(Nd - d(2-i), \vec{p}\,') + \\ &+ Q\Psi_j^{S_i}(Nd - d(2-i), \vec{p}\,'').\end{aligned} \qquad (6)$$

Тут P - ймовірність дзеркального відбиття електрона межею поділу, Q - ймовірність проходження носіїв заряду у сусідній шар зразка без розсіювання, $(P+Q)\le 1$. Імпульси $\vec{p}, \vec{p}'$ і $\vec{p}''$ зв'язані умовами збереження енергії і тангенціальної відносно межі поділу шарів компоненти квазіімпульсу, $S_i = \pm$ і вказує знак нормальної до міжшарової межі складової швидкості v_{xi} носіїв заряду.

Підставляючи функції $\Psi_i(\vec{r}, \vec{p})$ у формі (3) у граничні умови (5) і (6), отримаємо систему лінійних алгебраїчних рівнянь відносно функції Φ_i. Знаючи функцію розподілу електронів $\Psi_i(\vec{r}, \vec{p})$, можна обчислити коефіцієнт питомої електропровідності мультишару:

$$\sigma = \frac{1}{d}\sum_{i=1}^{2}\int_0^{d_i} dx \left\langle v_{yi}\Psi_i(|x|, \vec{p})\right\rangle, \tag{7}$$

де кутовими дужками позначено інтегрування по поверхні Фермі.

Після відповідних перетворень отримаємо:

$$\sigma = \frac{1}{d}\sum_{i=1}^{2} d_i \sigma_{0i} F_i\,, \tag{8}$$

де d_i – товщина i-го шару елемента періодичності МШ, σ_{0i} – коефіцієнт електропровідності безмежового металевого зразка з монокристалічною структурою. Розмірна функція F_i, яка визначає вплив розмірів шарів МШ на провідність зразка, може бути записана у вигляді:

$$F_i = T(\alpha_i) - \frac{6}{\pi k_i}\int_0^{\pi/2} d\varphi \cos^2(\varphi)\int_0^1 dx \frac{(x - x^3)(1-\varepsilon_i)}{H_i^2(x,\varphi)} G_i\,;$$

$$G_i = 1 - \frac{1}{\Delta}\left\{(1+P\varepsilon_i)(1+P\varepsilon_j) - Q^2\varepsilon_i\varepsilon_j\right\}\times$$
$$\times\left\{C_i(1-P\varepsilon_j) + Q\tau_{j,i}\varepsilon_j C_j\right\};$$

$$C_i = P(1-\varepsilon_i) + Q\tau_{j,i}(1-\varepsilon_j);$$

$$\Delta = 1 - P^2(\varepsilon_i^2 + \varepsilon_j^2) - 2Q^2\varepsilon_i\varepsilon_j +$$
$$+ (Q^2 - P^2)^2\varepsilon_i^2\varepsilon_j^2; \tag{9}$$

$$k_i = d_i / l_i;\ H_i = 1 + \frac{\alpha_i}{\cos(\varphi)\sqrt{1-x^2}};$$

$$\tau_{j,i} = \tau_{0j,i}\frac{H_i}{H_j};\quad \tau_{0j,i} = \frac{\tau_{0j}}{\tau_{0i}};$$

$$\varepsilon_i = \exp(-\frac{k_i H_i}{x}).$$

Функція $T(\alpha_i)$ характеризує провідність безмежового полікристалічного зразка і в рамках моделі Маяадаса і Шацкеса дорівнює [6]:

$$T(\alpha_i) = 1 - \frac{3}{2}\alpha_i + 3\alpha_i^2 - 3\alpha_i^3\ln(1 + 1/\alpha_i) \approx$$
$$\approx \begin{cases} 1 - \frac{3}{2}\alpha_i + 3\alpha_i^2, & \alpha_i \ll 1 \\ \frac{3}{4\alpha_i} - \frac{3}{5\alpha_i^2}, & \alpha_i \gg 1 \end{cases} \tag{10}$$

Значення α_i<<1 відповідає ситуації, коли розмір кристалітів L_i>>l_i, або міжкристалітні межі майже прозорі для електронів (R_i<<1). Відповідно, α_i>>1 відповідає дрібнозернистій структурі (L_i<<l_i) або значенням коефіцієнта відбиття носіїв заряду міжкристалітними межами 1- R_i<<1.

Якщо межі мультишару не прозорі для носіїв заряду (Q=0), то параметр P має зміст параметра дзеркальності Фукса і провідність МШ описується формулою Маяадаса і Шацкеса [6]. Іншими словами, мультишар формально можна розглядати як шар полікристалічного металу, межі якого розсіюють носії заряду із ймовірністю q_{ef}=P. При відсутності розсіювання електронів на межах поділу (P+Q=1) і однаковому ступені концентрації дефектів (l_1=l_2) числове значення провідності МШ збігається із своїм об'ємним значенням. Якщо ж мультишар складається із шарів металу рівної товщини (d_1=d_2) і однакового ступеня чистоти (l_1=l_2), то коефіцієнт електропровідності мультишару знову ж описується формулою Маяадаса і Шацкеса [6] і мультишар формально можна розглядати як одношаровий полікристалічний зразок, зовнішні межі якого описуються ефективним параметром дзеркальності q_{ef}=P+Q.

Отриманий точний вираз для коефіцієнта електропровідності полікристалічного мультишару може бути спрощений для випадку, коли МШ складається із товстих (k_i>>1) або тонких (k_i<<1) шарів металу. Якщо товщина шару d_i значно більша довжини вільного пробігу електронів l_i, то для провідності МШ може бути одержаний наступний вираз, який справедливий при довільних значеннях параметрів q_i і α_i:

$$F_i = T(\alpha_i) - \frac{6(1-P)}{16k_i}\left\{1 - \frac{32}{3\pi}\alpha_i + 12\alpha_i^2 + \right.$$
$$\left. + \frac{80}{\pi}\alpha_i^3 - 40\alpha_i^4 + \frac{16}{\pi}\alpha_i^3(5\alpha_i^2 - 4)I_i\right\} +$$
$$+ \frac{3}{8k_i}Q\tau_{0j,i}\left\{1 - \frac{16}{\pi}\sum_{i\neq j}\frac{\alpha_i^2}{\alpha_i - \alpha_j} \times \right. \qquad (11)$$
$$\left. \times\left(\frac{1}{3} - \frac{\pi}{4}\alpha_i - \alpha_i^2 + \frac{\pi}{2}\alpha_i^3 - \alpha_i^2(\alpha_i^2 - 1)I_i\right)\right\},$$

$$I_i = \begin{cases} \dfrac{1}{\sqrt{1-\alpha_i^2}}\ln\left|\dfrac{1+\sqrt{1-\alpha_i^2}}{\alpha_i}\right|, & \alpha_i \le 1 \\ \dfrac{\arccos(1/\alpha_i)}{\sqrt{\alpha_i^2 - 1}}, & \alpha_i > 1 \end{cases}. \qquad (12)$$

Отримані асимптотичні співвідношення для розмірної функції F_i можуть бути суттєво спрощені для МШ з великими (α_i<<1) і малими (α_i>>1) кристалітами:

$$F_i = 1 - \frac{3}{2}\alpha_i - \frac{3}{8k_i}\left\{(1-P)\left(1 - \frac{32}{3\pi}\alpha_i\right) - \right.$$
$$\left. - Q\tau_{0j,i}\left(1 - \frac{16}{3\pi}(\alpha_i + \alpha_j)\right)\right\}, \ \alpha_i << 1, \qquad (13)$$

$$F_i = \frac{3}{4\alpha_i}\left\{1 - \frac{1}{4k_i\alpha_i}\left[(1-P)\left(1 - \frac{512}{105\pi\alpha_i}\right) + \right.\right. \qquad (14)$$
$$\left.\left. + Q\tau_{0j,i}\alpha_i^2\sum_{i\neq j}\frac{1}{\alpha_i(\alpha_i - \alpha_j)}\left(1 - \frac{256}{105\pi\alpha_i}\right)\right]\right\}, \alpha_i >> 1$$

Якщо ж товщина шарів d_i МШ значно менша довжини вільного пробігу електронів l_i і виконується нерівність $k_i\alpha_i$<<1 для питомої провідності багатошарових структур, то можуть бути отримані наступні наближені вирази:

$$F_i = \frac{3}{4}\frac{1 - P^2 + Q^2 + 2Qd_{j,i}}{(1-P)^2 - Q^2}k_i \times$$
$$\times \begin{cases} \ln(\dfrac{1}{k_i}), & \alpha_i \le k_i \qquad (15а) \\ \ln(\dfrac{1}{k_i}) - \dfrac{4}{\pi}\alpha_i, & \alpha_i > k_i \qquad (15б) \end{cases}$$

Із формули (15а) слідує, що у випадку $\alpha_i \le k_i$ розсіюванням носіїв заряду на міжкристалітних межах можна знехтувати і, відповідно, асимптотичний вираз для провідності МШ із великими кристалітами співпадає з відповідним виразом для провідності мультишару із монокристалічною структурою [4]. При виконанні нерівності α_i>k_i електропровідність МШ описується наближеним виразом (15б), в якому множник $(4/\pi)\alpha_i$ визначає внесок міжкристалітних меж в сумарний опір зразка.

Якщо α_i>1 (але $k_i\alpha_i$<<1), то провідність МШ наближено дорівнює:

$$F_i = \frac{3}{4}\frac{1 - P^2 + Q^2 + 2Qd_{j,i}}{(1-P)^2 - Q^2}k_i \ln(\frac{1}{k_i\alpha_i}), \qquad (16)$$

де $d_{j,i}=d_j/d_i$ - відношення товщин сусідніх шарів мультишару.

В іншому граничному випадку $k_i\alpha_i$>>1 основним механізмом релаксації носіїв заряду є їх розсіювання на міжкристалітних межах і провідність МШ з малими зернами описується асимптотичним виразом (14).

Для проведення числового розрахунку коефіцієнт провідності МШ зручно записати таким чином:

$$\frac{\sigma}{\sigma_{01}} = \frac{F_1}{1 + d_{2,1}}\{1 + R_{2,1}\}, \qquad (17)$$

який у разі виконання нерівності $d_{j,i}$<<1 наближено можна представити у вигляді:

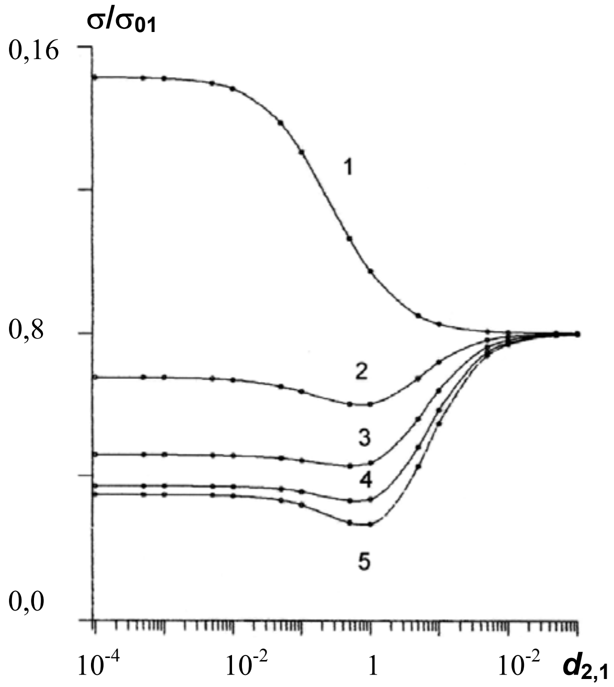

Рис.2 Залежність провідності багатошарового зразка σ/σ_{01} від відношення товщин сусідніх шарів металу $d_{2,1}$ для таких значень параметрів: P=0,2; $k_1=10^{-2}$; $l_2/l_1=10^{-1}$; $\alpha_1=10^{-1}$;
Q=0,8 (1), Q=0,6 (2), Q=0,4 (3), Q=0,2 (4), Q=0 (5).

$$\sigma \approx \sigma_{0i} F_i \{1 - d_{j,i} + R_{j,i}\},$$
$$R_{j,i} = \frac{d_j \sigma_{0j} F_j}{d_i \sigma_{0i} F_i}. \quad (18)$$

Криві, наведені на рис.2, отримано числовим розрахунком за точною формулою (8) і показують залежність σ/σ_{01} від співвідношення товщин сусідніх шарів МШ $d_{2,1}$ для різних значень параметрів, які характеризують МШ. Крива 5 відповідає випадку, коли межі поділу мультишару "не прозорі" (Q=0) для носіїв заряду:

$$\sigma(Q = 0) = \sigma_1 + \frac{1}{1 + d_{1,2}}(\sigma_2 - \sigma_1), \quad (19)$$

де σ_i - провідність i-го шару товщиною d_i. Із формули (19) випливає: якщо σ_1>σ, то добавка до σ_1 від'ємна і провідність МШ в області малих значень $d_{2,1}$<<1 із зростанням товщини шару d_2 зменшується. Якщо параметр Q<<1, то електрон, тунелюючи у сусідній шар, в змозі знову розсіюватися на межі поділу шарів, що і приводить до зменшення провідності. Із зростанням параметра Q вказаний мінімум вироджується і коефіцієнт питомої провідності монотонно зменшується із зростанням $d_{2,1}$.

Таким чином, ми проаналізували залежність коефіцієнта електропровідності металевих мультишарів із полікристалічною структурою від співвідношення товщин $d_{2,1}$ сусідніх шарів. В області малих значень $d_{2,1}$<<1 величина σ/σ_{01} визначається характером взаємодії носіїв заряду з МП зразка, в той час як при $d_{2,1}$>>1 провідність σ/σ_{01} асимптотично прямує до відношення своїх об'ємних значень. В області $d_1 \cong d_2$ коефіцієнт електропровідності досягає свого мінімального значення.

Експериментальне дослідження залежності провідності МШ від $d_{2,1}$ дозволяє отримати детальну інформацію про характер взаємодії носіїв заряду з межами поділу шарів.

На закінчення автори висловлюють щиру подяку В.Г.Песчанському за обговорення результатів роботи.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Sasaki T., Kaneko T., Sakuda M.* The electrical resistivity of Cu/Mo multilayered films// J. Appl. F.– 1988.- **18**.– P.L113–L117.
2. *Kaneko T., Sasaki T., Sakuda M., Yamamoto R.* Structures and electrical properties of Cu/Mo metallic multilayered films // J.Appl.F.–1988.- **18**.– P.2053–2060.
3. *Dimmich R.* Electronic transport properties of metallic multi–layer films // J.Phys.F.: Met. Phys.– 1985.– **15**.– P.2477–2487.
4. *Дехтярук Л.В., Колесніченко Ю.О.* Кінетичні коефіцієнти металевих мультишарів// УФЖ.–1997.– **42**.–С.1094–1101.
5. *Дехтярук Л.В., Колесниченко Ю.А.* Температурный коэффициент сопротивления металлических мультислоев // ФММ.-1997.–**84**, No2.– С.37–42.
6. *Mayadas A., Shatzkes M.* Electrical-resistivity model for polycrystalline films: the case of arbitrary reflection at external surfaces // Phys.Rev. B.: Cond.Matter.– 1970.– **1**, No4.– P.1382–1389.
7. *Песчанский В.Г., Азбель М.Я.* Магнитосопротивление полуметаллов // ЖЭТФ.–1968.– **55**, вып.1.– С.1980–1996.
8. *Устинов В.В.* Вклад плоских дефектов в электросопротивление металла // ФММ.–1980.– **49**, №1.- С.31–38.
9. *Каганов М.И., Фикс В.Б.* К теории электромеханических сил в металлах // ЖЭТФ.–1977.– **73**, вып.2.– С.753–760.