

PACS numbers: 72.10.Fk, 73.23.-b, 73.25.+i, 73.40.Qv, 73.50.Bk, 73.61.At, 85.40.Xx

## **Перехід від квантового до класичного перенесення заряду в плівках золота 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 золота (товщиною  $d < 15$  нм), нанесених на поверхню оплавленого полірованого скла та поверхню підшару германію субатомової товщини. Результати експерименту трактовано в рамках сучасних теоретичних моделей квантового та класичного розмірних ефектів. Проаналізовано деякі недоліки наявних модельних уявлень, які не враховують особливостей будови реальних плівок металів, що не уможливило досягнути надійного кількісного опису експериментальних даних.

Under high-vacuum conditions, the electrical conductivity of ultrathin gold films (the film 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 reviewed. If do not taking into account the peculiarities of real metal-films' structure the unreliable comparison with experimental data were obtained.

В условиях сверхвысокого вакуума изучена электропроводность ультратонких плёнок золота (толщиной  $d < 15$  нм), 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 имеющихся модельных представлений, которые не учитывают особенностей строения реальных плёнок металлов, что не позволяет достичь надёжного количественного описания экспериментальных данных.

**Ключові слова:** тонкі металеві плівки, поверхнєве та зерномежеве розсі-

яння, напівпровідникові підшари субатомної товщини, розмірні ефекти.

(Отримано 1 жовтня 2013 р.)

## 1. ВСТУП

Проблема кількісного опису розмірних кінетичних явищ у металевих плівках нанометрової товщини достатньо актуальна в зв'язку з широкими можливостями використання таких шарів у різних пристроях сучасної мікро- та наноелектроніки і можливістю одержання інформації про фундаментальні властивості речовини при обмеженні розмірів системи. Надійне узгодження експериментальних даних з результатами теоретичного розрахунку досягається лише при вдалому виборі математичної моделі досліджуваного фізичного явища.

Опис явищ перенесення заряду в суцільних плівках відносно великих товщин  $d$  ( $d > 15$  нм) достатньо добре здійснюється з допомогою квазикласичних моделей класичного та внутрішнього розмірних ефектів [1]. На противагу цьому, в області менших товщин плівок використання згаданих моделей ускладнюється особливостями будови плівок (існування поверхневих неоднорідностей сумірних товщині плівки, наявність розривів, тріщин, виникнення лабіринтних структур та ін.), вплив яких не можна врахувати в рамках квазикласичних теорій, створених для суцільних однорідних шарів. У діапазоні малих товщин носії струму практично не зазнають зіткнень всередині матеріалу плівки і їх релаксація відбувається лише при зіткненні із зовнішніми поверхнями шару (балістичне перенесення); внаслідок інтерференції електронних хвиль реалізується квантове перенесення заряду.

На даний час розвинуто ряд теорій квантового перенесення заряду в плівках металів [2–5], широке використання яких для пояснення експериментальних даних обмежене як складністю співставлення результатів теоретичного розрахунку з експериментом, так і недостатньою кількістю відомих з літератури експериментальних досліджень.

У даній роботі зроблено спробу певним чином зіставити результати розрахунків, виконаних на основі квазикласичних та квантових теорій, з експериментальними даними, одержаними нами для плівок золота. Вибір металу зумовлений необхідністю використання моделі вільних електронів Друде–Зоммерфельда, оскільки згадані вище теоретичні моделі розвинуто саме для вільноелектронного газу. Іншою особливістю даного аналізу буде використання моделі ізотропного однорідного шару (без врахування можливого впливу зерномежового розсіювання носіїв струму), оскільки теорії квантового перенесення заряду в металевих плівках не розглядають тако-

го механізму релаксації носіїв струму. У рамках квазикласичного підходу це буде означати, що морфологія плівки не змінюється при зміні її товщини  $d$ , а тому для масивного зразка такої будови можна використовувати величини  $\rho_\infty$  — питомий опір плівки безмежної товщини та  $\lambda$  — середня довжина вільного пробігу електрона в плівці при  $d \rightarrow \infty$ .

## 2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Приготування і дослідження плівок золота здійснювали в умовах надвисокого вакууму (тиск залишкових газів не перевищував  $10^{-7}$  Па) у відпаяних скляних експериментальних приладах. У цілому методика, використана в цій роботі, аналогічна методикам, що використовувалась у наших попередніх роботах [6]. Плівки золота наносили на охолоджену до 78 К підкладку з оплавленого полірованого скла (чисту або покриту щойно нанесеним підшаром германію масовою товщиною в декілька атомних шарів) зі швидкістю не вищою за 0,1 нм/с шляхом конденсації пари термічно випаруваного металу. Нанесення підшару германію здійснювали також шляхом конденсації пари термічно випаруваного Ge. Контроль товщини підшару германію та плівки золота здійснювали за зсувом резонансної частоти п'езокварцового вібратора, розміщеного в потоці пари випаруваного матеріалу (Ge або Au). Як відомо із наших попередніх робіт [6], використання підшару германію є чисто технологічним і дозволяє зміною товщини цього підшару керувати режимом росту кристалітів в плівці металу (має місце зменшення лінійних з розмірів кристалітів в плівці металу в порівнянні з плівками, нанесеними на чисту поверхню скла, запобігаючи коагуляції зародків кристалізації при нанесенні плівки металу). Вимірювання електричного опору плівок здійснювали двозондовим методом з допомогою цифрового приладу В7-34А, спряженого з комп'ютером.

## 3. МОДЕЛЬНИЙ ОПИС ЕЛЕКТРОПРОВІДНОСТІ ПЛІВОК МЕТАЛУ В РЕЖИМІ ПРОЯВУ РОЗМІРНОГО ЕФЕКТУ

### 3.1. Квазикласичний опис

#### 3.1.1. Моделі Фукса–Зондгаймера та Намба [1]

Зростання питомого опору плівки  $\rho$  із зменшенням її товщини обумовлене збільшенням відносного внеску поверхневого розсіювання носіїв струму. Плівка вважається однорідним ізотропним плоскопаралельним шаром, на поверхнях якого є розсіювальні центри атомного масштабу, аналогічні точковим дефектам в об'ємі матері-

алу. Залежність питомої провідності  $\sigma$  такого ідеального шару від його товщини дається виразом:

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \frac{3\lambda_0}{2d} (1-p) \int_0^{\pi/2} \frac{\cos \vartheta \sin^3 \vartheta \left[ 1 - \exp\left(-\frac{d}{\lambda_0 \cos \vartheta}\right) \right]}{1 - p \exp\left(-\frac{d}{\lambda_0 \cos \vartheta}\right)} d\vartheta, \quad (1)$$

де  $p$  — коефіцієнт дзеркальності поверхневого відбивання носіїв струму, який змінюється у діапазоні  $0 \leq p \leq 1$  ( $p = 1$  при дзеркальному відбиванні;  $p = 0$  при дифузному розсіюванні носіїв, коли при зіткненні з поверхнею електрон повністю втрачає напрямлену складову своєї швидкості). Два параметри  $\sigma_0$  (питома провідність масивного зразка) та  $\lambda_0$  (середня довжина вільного пробігу носіїв струму в масивному зразку) також невідомі. Для опису властивостей реальних плівок вважають, що структура плівки не залежить від її товщини і ідентична структурі деякої модельної плівки безмежної товщини із згаданими вище параметрами  $\rho_\infty$  та  $\lambda$ , відмінними від аналогічних характеристик масивного монокристала  $\rho_0$  та  $\lambda_0$ . Для залежності питомого опору від товщини плівки теорія Фукса–Зондгаймера дає два наближені вирази, придатні для порівняння з експериментом:

$$\rho(d) = \rho_\infty \left( 1 + \frac{3}{8} \frac{\lambda(1-p)}{d} \right) \text{ при } d > \lambda \quad (2)$$

та

$$\rho(d) = \frac{4}{3} \rho_\infty \frac{1-p}{1+p} \frac{\lambda}{d \log(\lambda/d)} \text{ при } d \ll \lambda. \quad (3)$$

Модель пласкопаралельного шару не враховує можливості існування на поверхні плівки неоднорідностей макроскопічного масштабу. Спробу подолати цей недолік моделі зробив Намба [1], який запропонував врахувати вплив геометричних неоднорідностей товщини плівки у напрямку поширення струму шляхом апроксимації цих неоднорідностей  $\lambda$  у вигляді гармонійної функції (рис. 1). Локальна товщина плівки  $d(x)$  у напрямку  $x$  протікання струму представлено у вигляді:

$$d(x) = \bar{d} + h \sin(2\pi x/L), \quad (4)$$

де  $\bar{d}$  — середня товщина плівки,  $h$  — середня амплітуда відхилення  $d(x)$  від  $\bar{d}$ ,  $L$  — період повторюваності макроскопічних неоднорідностей товщини у напрямку протікання струму.

Усереднений опір плівки товщиною  $\bar{d}$  одержують у вигляді:

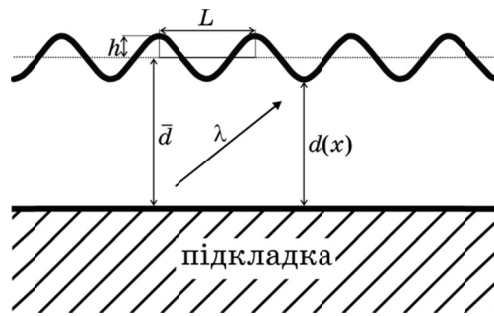


Рис. 1. Модель плівки металу Намба [1].

$$\rho(\bar{d}) = \rho_{\infty} \frac{\bar{d}}{L} \int_0^L \frac{\rho(d(x))}{d(x)} dx. \quad (5)$$

Наближений вираз для  $\rho(\bar{d})$  при  $\bar{d} > h$  можна записати у вигляді подібному до (2):

$$\rho(\bar{d}) = \rho_{\infty} \left[ 1 - \left( \frac{h}{\bar{d}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \left[ 1 + \frac{3\lambda(1-p)}{8d} \left[ 1 - \left( \frac{h}{\bar{d}} \right)^2 \right]^{-1} \right], \quad (6)$$

який при  $h \ll \bar{d} \approx d$  переходить у вираз (2).

Співставлення експериментальних даних з виразом (6) проводять з використанням результатів визначення  $h$  з СТМ-досліджень морфології поверхні плівок металів або шляхом підбору величини параметра  $h$ . Моделі Фукса–Зондгаймера та Намба протягом багатьох років використовувались для пояснення експериментальних результатів, незважаючи на суттєві недоліки моделей. Більш детально ці недоліки проаналізовано в [1].

### 3.2. Модель Віссмана [7]

Модель Віссмана була створена як альтернатива моделям Фукса–Зондгаймера та Намба з метою кращого опису розмірних залежностей питомого опору дуже тонких плівок при товщинах плівок, що незначно перевищують перколяційну товщину  $d_c$ .

Оскільки модель Віссмана менш відома, ніж моделі Фукса–Зондгаймера та Намба, проаналізуємо її більш детально.

Віссман вважав, що повний опір плівки металу є результатом накладання внесків трьох механізмів розсіювання електронів (на об'ємних дефектах зразка, на межах кристалітів та поверхневими неоднорідностями). За припущенням Віссмана плівка складається з

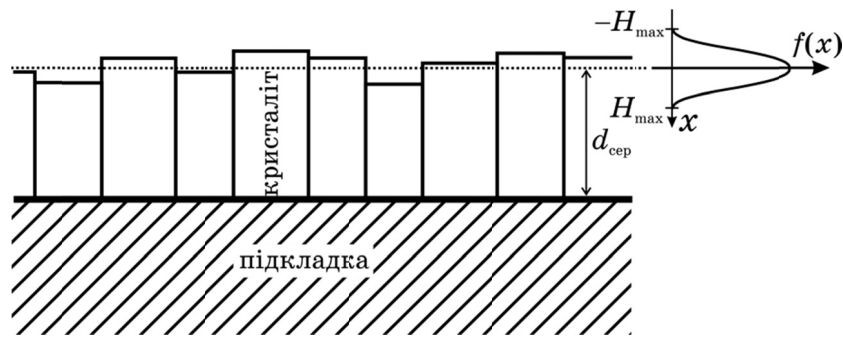


Рис. 2. Модель плівки металу згідно з припущенням Віссмана.

моноблоків із стінками, перпендикулярними до поверхні підкладки (рис. 2).

Вважається, що середня товщина кристалітів розподілена за Гаусовим законом із амплітудою відхилення  $H$  відносно середньої товщини  $\bar{d}$ . Таке припущення підтверджується результатами дослідження поверхні плівок з використанням сканувальної тунельної мікроскопії. Усереднене значення питомого опору плівки товщиною  $d = \bar{d}$  розраховують з допомогою наступного співвідношення:

$$\rho = \frac{\int \rho(x)f(x)dx}{\int f(x)dx}, \quad (7)$$

де  $x$  — відхилення товщини плівки від середнього значення  $d$  (рис. 2),  $f(x)$  — функція розподілу поверхневих неоднорідностей у напрямку протікання струму. Оскільки цей розподіл вважається квазігаусовим (повна ширина  $2H$ ), то інтегрування проводять у межах від  $-H$  до  $H$ . При повністю дифузному поверхневому розсіюванні носіїв струму ( $p = 0$ ) одержують:

$$\rho(d, \lambda, H) = \rho_{\infty} + \frac{3\lambda}{8d}\rho_{\infty} + \frac{3\lambda}{8d}\rho_{\infty} \frac{\int_{-H}^{+H} \frac{x/d}{1-x/d} f(x) dx}{\int_{-H}^{+H} f(x) dx}. \quad (8)$$

За умови  $H \ll d$  вираз (8) спрощується до наступного вигляду:

$$\rho(d, H) = \rho_{\infty} \left[ 1 + \frac{3\lambda}{8d} \left\{ 1 + \frac{H^2}{d^2} + \frac{H^4}{d^4} + \dots \right\} \right]. \quad (9)$$

Вираз (9) може використовуватися для кількісного опису експериментальних залежностей  $\rho(d)$ . Основними недоліками модельно-

го розрахунку є припущення про перпендикулярність меж кристалітів до поверхні підкладки, а також поставлена умова  $H \ll d$ . У реальних задачах при середніх товщинах плівки в декілька нанометрів амплітуда поверхневих неоднорідностей  $H$  сумірна  $d$ , а тому величина  $(H/d)^4$  не може вважатися дуже малою в порівнянні  $(H/d)^2$ . Зауважимо, що для великих товщин плівок  $d > \lambda$ ,  $d \gg H$  вираз (9), подібно як вираз (6) моделі Намба, можна звести до виразу (2) моделі Фукса–Зондгаймера.

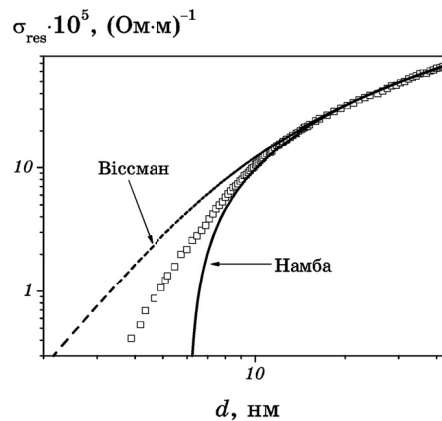
Як ілюстрацію можливостей використання моделей Намба та Віссмана для опису розмірних залежностей електропровідності дуже тонких плівок на рис. 3 наведено результати експериментального дослідження електропровідності плівок золота свіжонанесених на охолоджену до 78 К чисту поверхню оплавленого полірованого скла, а на рис. 4 — плівок золота, свіжонанесених в ідентичних умовах на поверхню скла, попередньо покриту підшаром германію масовою товщиною 3 нм. На рисунках 3, 4 показано залежності від середньої товщини плівки  $d$  залишкової провідності плівок  $\sigma_{\text{res}}$ . Величину  $\sigma_{\text{res}}$  розраховують як

$$\sigma_{\text{res}} = 1 / [\rho(d) - \rho_{\infty}]. \quad (10)$$

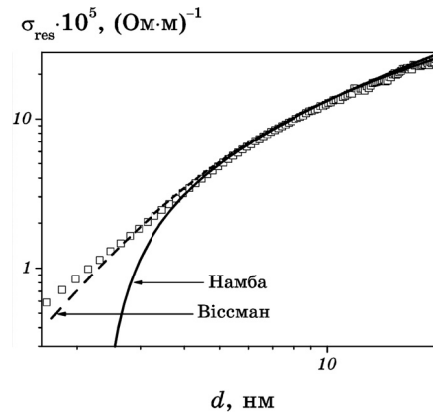
У виразі (10)  $\rho(d)$  — питомий опір плівки товщиною  $d$ ,  $\rho_{\infty}$  — питомий опір плівки безмежної товщини, розрахований з експериментальних даних з допомогою (2).

Величина  $\sigma_{\text{res}}(d)$  реально враховує внесок поверхневого розсіювання в сумарний опір плівки товщиною  $d$  при умові достовірності правила Матіссена про адитивність внесків механізмів статичного розсіювання носіїв струму. На рисунках 3, 4 експериментальні дані показано точками, а теоретичні залежності Намба та Віссмана показані відповідно суцільною та штриховою лініями.

Як відомо з [6], на підшарі германію формуються більш дрібнозернисті плівки металу в порівнянні з плівками, нанесеними на чисту поверхню скла. Це зумовлює відмінності в ході розмірних залежностей  $\sigma_{\text{res}}$  плівок, нанесених на чисту поверхню скла та на поверхню скла, покриту підшаром германію. Як видно з рисунків у діапазоні великих товщин обидві теоретичні моделі в межах точності експерименту та розрахунків описують  $\sigma_{\text{res}}(d)$  майже однаково. В області малих товщин теорія Віссмана краще описує  $\sigma_{\text{res}}(d)$  для дрібнозернистих плівок (рис. 4). Розрахунок величин, які впливають на  $\sigma_{\text{res}}$ , виконаний з використанням обох моделей, він дає достатньо близькі результати, що підтверджує можливість їхнього надійного використання принаймні до товщин 8–10 нм. Зауважимо, що якісно подібні розмірні залежності  $\sigma_{\text{res}}$  було одержано для плівок золота, свіжонанесених на підшари германію інших товщин. Розбіжності виникають при менших товщинах, що зумовлене як недосконалістю



**Рис. 3.** Розмірні залежності залишкової провідності  $\sigma_{\text{res}} = \sigma_{\text{res}}(d)$  свіжонанесених плівок золота ( $T = 78$  К) на скляну підкладку. Модель Фукса–Зондгаймера:  $\rho_{\infty} = 10,1 \cdot 10^{-8}$  Ом·м,  $\lambda = 10$  нм. Модель Намба:  $h = 6$  нм. Модель Віссмана:  $H = 8$  нм ( $h \approx 0,707H \approx 5,7$  нм).



**Рис. 4.** Розмірні залежності залишкової провідності  $\sigma_{\text{res}} = \sigma_{\text{res}}(d)$  свіжонанесених плівок золота ( $T = 78$  К) на підшар германію 3 нм. Модель Фукса–Зондгаймера:  $\rho_{\infty} = 12,1 \cdot 10^{-8}$  Ом·м,  $\lambda = 8$  нм. Модель Намба:  $h = 2,3$  нм. Модель Віссмана:  $H = 3,7$  нм ( $h \approx 0,707H \approx 2,6$  нм).

моделей, так і особливостями балістичного перенесення заряду, які вимагають квантово-механічного підходу.

#### 4. КВАНТОВО-МЕХАНІЧНІ МОДЕЛІ ПЕРЕНЕСЕННЯ ЗАРЯДУ В МЕТАЛЕВИХ ПЛІВКАХ

Розгляд впливу поверхневого розсіювання на квантове перенесення



заряду в тонких металевих плівках приводить до результатів, якісно відмінних від результатів розрахунків виконаних в межах класичних моделей. Займан [8] першим, зауважив, що введення стало-го феноменологічного параметра  $p$ , який характеризує ймовірність дзеркального відбивання поверхнею плівки електрона провідності, є некоректним. Даний параметр для окремого акту розсіювання повинен залежати від кута падіння електрона на поверхню, а усереднена величина цього параметра по всьому ансамблю вільних електронів повинна залежати від товщини плівки  $d$ . Ідеї Займана були розвинуті в роботах Пранґа і Ні [9] при розгляді скін-ефекту в металах.

Теорії квантового перенесення заряду в металевих плівках виходять із сприйняття надійності класичних виразів для перенесення заряду, одержаних на основі розв'язку Больцманового кінетичного рівняння, однак вносять у даний підхід коректні квантові поправки в оператор розсіювання. З цією метою у Гамільтоніян для електронів вводять ще один доданок, який вважається збуренням до Гамільтоніяна. Це дозволяє здійснювати розрахунки в рамках теорії збурень.

Вважається, що в площині  $XOY$ , паралельній підкладці, металевий шар однорідний, а тому вільноелектронний газ незбурений. Вплив поверхні на електронну систему враховується введенням поверхневого потенціалу, що призводить до появи дискретного члена в енергії частинок

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\pi^2 \hbar^2}{2md} n^2 . \quad (11)$$

Поверхневий потенціал шорсткої поверхні плівки найчастіше моделюють у вигляді квазігаусової або експоненціальної функції. На основі такого підходу і були створені найбільш відомі теорії квантового розмірного ефекту в плівках металів.

При перенесенні заряду в ультратонких плівках ( $d < \lambda$ ) реалізується лише поверхневе розсіювання носіїв струму, а внесок об'ємного (домішкового) розсіювання достатньо малий і результатом цього є відхилення від правила Матіссена, основою якого є адитивність всіх статичних процесів розсіювання носіїв струму. Внаслідок цього при трактуванні експериментальних даних з допомогою величини  $\sigma_{\text{res}}$ , залежної від  $d$ , можливі суттєві відхилення експериментальних величин від величин, розрахованих на основі теорій.

У теоріях [2, 3, 4] одержано вирази, придатні для опису експериментальних даних. Ці квантово-механічні наближення базуються на теорії лінійного відгуку Кубо, в яких вплив шорсткості поверхні вводиться в Гамільтоніян. Основна увага звертається на квантові розмірні ефекти, що описують зростання питомого опору плівки, коли товщина  $d$  стає меншою за середню довжину вільного пробігу

електронів провідності.

Геометричні параметри поверхневих неоднорідностей характеризують величинами:  $H_{RMS}$  — середньоквадратична амплітуда поверхневих неоднорідностей та  $\zeta$  — латеральна кореляційна довжина. Зауважимо, що згадані величини можна знайти експериментально з допомогою сканувальної тунельної мікроскопії.

#### 4.1. Модель Тесанович–Ярич–Маєкава [2]

Розглянуто розсіювання електронів провідності випадково розміщеними поверхневими неоднорідностями, що спричиняють середньоквадратичні флуктуації товщини плівки, рівні  $H_{RMS}$ . У результаті розрахунку з допомогою формули Кубо одержують взаємозв'язок між залишковою провідністю плівки  $\sigma_{res}$ , обумовленою лише поверхневим розсіюванням, та питомою провідністю плівки безмежної товщини  $\sigma_{\infty}$ , з якого випливає, що перехід від домінуючого поверхневого розсіювання до домінуючого об'ємного розсіювання носіїв струму характеризується певною точкою зламу  $d_{крит}$ . У даній точці має місце перехід від класичної апроксимаційної залежності  $\sigma_{res} \sim d$  до квантової  $\sigma_{res} \sim d^{\alpha}$  ( $\alpha > 1$ , найчастіше  $\alpha = 2$ ), яка спостерігається при дуже малих  $d$ .

#### 4.2. Модель Тривіді–Ашкрофта [3]

Вивчено вплив поверхневих неоднорідностей на стан електронної системи в однорідній плівці, на поверхні якої наявні поверхневі неоднорідності, середньоквадратична амплітуда яких  $H_{RMS}$ . Згадані неоднорідності слабо впливають одна на одну і їх розміщення може бути описане  $\delta$ -функцією. У Гамільтоніян системи вноситься додатковий збурювальний потенціал, дія якого призведе до розсіювання електронів між незбуреними енергетичними рівнями. Провідність плівки в площині, паралельній підкладці, пропорційна до квадрату відношення середньої товщини плівки  $d$  та  $H_{RMS}$ :

$$\sigma_{xy} \sim (d/H_{RMS})^2. \quad (12)$$

У плівках відносно великих товщин крім поверхневого розсіювання має місце домішкове розсіювання носіїв. Тому в результаті виникає перехід від домінуючого поверхневого розсіювання до домінуючого об'ємного розсіювання. Такий перехід існує при

$$d \sim \left[ \pi (H_{RMS})^2 \lambda_0 / 6 \right]^{1/3},$$

де  $\lambda_0 = v_F \tau_0$  — домішкова середня довжина вільного пробігу. Насам-

кінець одержують залежність залишкової провідності  $\sigma_{\text{res}}$  від  $d$  у вигляді степеневі функції:

$$\sigma_{\text{res}} \sim d^{\alpha}. \quad (13)$$

#### 4.3. Модель Фішмана—Цалецкі [4]

Розглянута зміна енергетичного спектру електронів у плівці внаслідок впливу поля поверхневих неоднорідностей квазігаусової та експоненціальної форми при зміні товщини плівки. Теоретично вивчено вплив на провідність плівки  $\sigma$  автокореляційної функції різної форми, пов'язаної з шорсткістю. Для плівок напівпровідників, для яких число підзон електронних станів  $N = 1$ , одержано добре відому залежність  $\sigma_{\text{res}} \sim d^6$ , а для металевих плівок, у яких число зайнятих підзон  $N \gg 1$ ,  $\sigma_{\text{res}}$  залежить від товщини плівки:

$$\sigma_{\text{res}} \sim d^2 \left( 1 - \frac{6}{(3n\pi^5)^{1/3}} \frac{1}{d} \right), \quad (14)$$

де  $n$  — концентрація електронів у плівці. Оцінка, здійснена для  $1 \text{ нм} < d < 20 \text{ нм}$  при  $n \cong 3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ , спрощує вираз (14) до вигляду  $\sigma_{\text{res}} \sim d^{2,1}$ .

#### 4.4. Моделі (SXW) та (MSXW) [10, 11]

У формалізмі, запропонованому SXW, зростання питомого опору, зумовлене розсіюванням носіїв струму на шорсткій поверхні, також розраховується з використанням теорії лінійного відклику Кубо. Провідність плівки розраховують із спектральної функції, яка характеризує одночастинкову Грінову функцію, що описує електронний газ у плівці. Вплив шорсткої поверхні зводиться до зміни (модифікації) власної енергії електронного газу. Власну енергію розраховують з наближення збурення Фейнмана–Дайсона. Відношення питомої провідності плівки  $\sigma$  до питомої провідності масивного зразка  $\sigma_0$  рахують при квантовому відбиванні  $R(k_{\parallel})$ , що задається наступним виразом:

$$R(k_{\parallel}) = \left( \frac{1 - k_z Q(k_{\parallel})}{1 + k_z Q(k_{\parallel})} \right)^2, \quad (15)$$

де  $Q(k_{\parallel})$  — дисипативна частина власної енергії електронного газу, зумовлена електрон-поверхневим розсіюванням,  $(k_z)^2 = (k_F)^2 - (k_{\parallel})^2$ ,

де  $k_F$  — Ферміїв імпульс електрона і  $k_{\parallel} = (k_x, k_y)$  — імпульс електрона в площині (ХОУ). Відношення  $\sigma$  плівки до  $\sigma_0$  розраховують у термінах  $R$ :

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \frac{3}{2} \frac{\lambda}{d} \frac{1}{X_0 N_c} \sum_{n=1}^{N_c} u_n (1 - u_n^2) \frac{(1 - R(u_n))(1 - E_d(u_n))}{1 - R(u_n) E_d(u_n)}. \quad (16)$$

Тут  $d$  — товщина плівки,  $\lambda$  — середня довжина вільного пробігу носіїв струму в масивному зразку,  $u_n = q_n/k_F = \cos\theta_n = n\pi/(dk_F)$ ,  $X_c = dk_F/\pi$ ,  $N_c = \text{int}(X_c)$ , де  $\text{int}(M)$  — ціла частина величини  $M$ ,  $X_0 = 3[1 - (N_c/X_c)^2(1 + 1/N_c)(1 + 1/(2N_c))]/3$ ,  $E_d(u_n) = \exp(-d/(u_n l))$ ,  $N_c$  — максимальна густина станів у плівці.

Вираз (16) є квантовою версією виразу теорії Фукса–Зондгаймера (1), в якому інтегрування по неперервному кути ( $d\Omega \propto \sin\theta d\theta$ ) в (1) замінено скінченною (дискретною) сумою по  $N_c$  електронних станів частинки в заповненому ящику. Перпендикулярна до поверхні складова квазіімпульсу  $q_n = n\pi/d$  є квантованою в результаті обмеження електронного газу двома паралельними потенціальними бар'єрами.

Перевагою квантового формулювання даної проблеми є те, що у випадку дуже тонких плівок ( $\lambda/d \rightarrow \infty$ ) вираз для  $\sigma(d)$  не зазнає стрибка, як це було у випадку моделі Фукса (співвідношення (1)). Теорія SXW при  $\lambda/d \rightarrow \infty$  дає вираз для провідності плівок, обмеженої лише поверхневим розсіюванням:

$$\sigma_s = \sigma_0 \frac{3d}{4\lambda} \frac{1 - R}{1 + R} \ln(N_c). \quad (17)$$

Завершимо презентацію SXW результатів поданням виразу для  $Q(k_{\parallel})$ :

$$Q(k_{\parallel}) = \text{Im} \int \frac{d^2 q_{\parallel}}{(2\pi)^2} F(k_{\parallel} - q_{\parallel}) \bar{q} \cos(d\bar{q}), \quad (18)$$

де  $\text{Im}(C)$  уявна частина комплексного числа  $C$ , а  $\bar{q} = (q_z^2 + ik_F/\lambda)^{1/2}$  є комплексне хвильове число (введене для врахування скінченної провідності масивного зразка), а  $F(k_{\parallel})$  — Фур'є перетворення автокореляційної функції  $f(k_{\parallel})$ :

$$f(r_{\parallel}) = f(x, y) = S^{-1} \int_S h(a_{\parallel}) h(a_{\parallel} + r_{\parallel}) d^2 a_{\parallel}, \quad (19)$$

де  $r_{\parallel} = f(x, y)$  — координати у площині  $(x, y)$ ,  $h(r_{\parallel})$  — характеризує

відхилення поверхневих неоднорідностей в точці  $(x, y)$  по відношенню до  $z = d$  або  $z = 0$ .

Модифікація SXW теорії зводиться до використання конкретних функцій  $f(x, y)$  — Гаусіан або експонента [11], оскільки дисипативна функція  $Q(k_{\parallel})$  включає в себе інформацію про параметри поверхневих неоднорідностей. Загальний вигляд функції залежить від профілю цих неоднорідностей. Явний вигляд дисипативної функції в наближенні  $\zeta k_F \ll 4\lambda$  розраховано в [11].

Згідно формалізму SXW, вираз (16) повинен достатньо добре відтворювати експериментальні результати в трьох основних розмірних областях:

а) в наближенні товстої плівки ( $h \ll d$ ), коли квантовими ефектами можна знехтувати, а об'ємне розсіювання є домінуючим в порівнянні з поверхневим, рівняння (16) відтворює класичний результат Фукса-Зондгаймера [1];

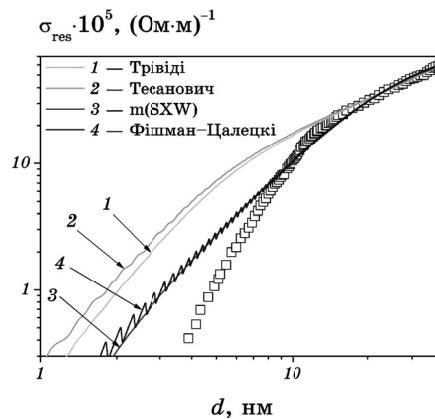
б) в межах, коли внески поверхневого та об'ємного розсіювання у сумарне розсіювання носіїв струму є співмірними ( $h \approx d$ ), рівняння (16) відтворює результат Трівіді і Ашкрофта [3];

в) у межі ультратонких плівок, де поверхнєве розсіювання переважає над об'ємним розсіюванням ( $H \geq d$ ), рівняння (16) відтворює результат Фішмана і Цалецькі [4].

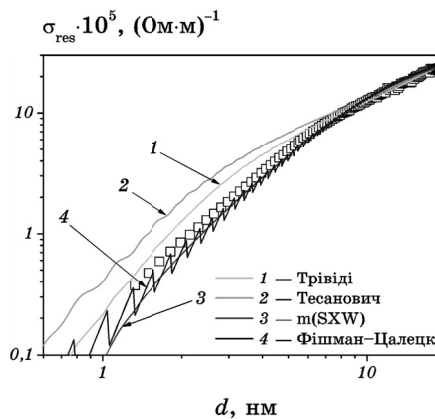
Співставлення розрахункових розмірних залежностей  $\sigma_{\text{res}}$ , одержаних на основі теорій [2–4, 10, 11], з експериментальними даними, показаними на рис. 3, 4 здійснюємо з використанням параметрів, розрахованих з допомогою квазикласичного підходу. Зокрема для плівок золота свіжонанесених при  $T = 78$  К на чисту поверхню скла вважаємо, що  $\rho_{\infty} = 10,1 \cdot 10^{-8}$  Ом·м, а  $\lambda = 10$  нм. Для плівок золота, нанесених на підшар германію масовою товщиною в 3 нм, беремо  $\rho_{\infty} = 12,1 \cdot 10^{-8}$  Ом·м і  $\lambda = 8$  нм. Підбором величин параметрів  $H_{\text{RMS}}$  та  $\zeta$  були одержані теоретичні залежності, розраховані в рамках згаданих теоретичних моделей, які найкраще узгоджуються з експериментальними даними. На рисунках 5, 6 точками показано експериментальні дані, одержані для плівок золота, нанесених відповідно на чисту поверхню скла та на підшар германію, а суцільними лініями — розрахункові криві.

З рисунку 5 видно, що для плівок золота, нанесених на скло, теоретичні криві узгоджуються з експериментальними даними в основному за характером зміни  $\sigma_{\text{res}}$  при зменшенні  $d$ . У межах точності теоретичного розрахунку та точності експерименту для товщин плівок  $d > 7$  нм можна вважати задовільним узгодження експериментальних даних із залежностями, одержаними з допомогою теорій [4] та [10, 11].

У випадку плівок золота, нанесених на підшар германію (рис. 6), графіки всіх розрахункових залежностей наближаються до експериментальних даних, а залежності, одержані в рамках теорій Фіш-



**Рис. 5.** Розмірні залежності залишкової провідності свіжонанесених на чисту поверхню скла плівок золота. Точки — експериментальні дані. Суцільні криві — результати теоретичного розрахунку.



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

мана–Цалецькі [4] та mSXW [10, 11], достатньо добре описують хід експериментальної залежності  $\sigma_{\text{res}}(d)$  до товщин  $d > 1,5\text{--}2$  нм. При цьому в рамках всіх теоретичних кривих одержуються розумні значення параметрів  $H_{\text{RMS}} = 2,5\text{--}2,9$  нм та  $\zeta \cong 1,1$  нм.

Для плівок, нанесених на чисту поверхню скла, згадані величини були вищими:  $H_{\text{RMS}} = 7\text{--}7,5$  нм та  $\zeta \cong 2\text{--}3$  нм. Зауважимо, що величини параметра  $H_{\text{RMS}}$ , одержані при розрахунках у рамках теоретичних моделей, достатньо близькі до параметрів  $h$  та  $H_{\text{max}}$ , визначених з розрахунків, виконаних в рамках квазикласичних моделей.

На завершення аналізу рис. 5, 6 відзначимо, що одержані величини  $H_{\text{RMS}}$  не можуть вважатися малими в порівнянні з масовою товщиною шару металу  $d$ , а тому сподіватись на краще узгодження теоретичних залежностей з експериментальними даними не варто. Умова  $H_{\text{RMS}} < d$  може виконуватись лише при епітаксійному нарощуванні плівки металу в режимі шар за шаром і лише для товщин, більших за 1–2 нм.

У випадку дрібнокристалічних шарів металу в моделі квантового перенесення заряду слід внести поправки, які б врахували кластерну будову плівки та перколяційні явища, що мають місце при зародженні і рості шару. Тому варто зазначити, що існуючі теорії квантового перенесення заряду в плівках металів придатні для створення лише якісної картини змін залишкової провідності плівок металів при зміні їхньої товщини. У кількісному плані краще узгодження спостерігається для плівок, в яких розміри зерна менші, в порівнянні з плівками, в яких зерно має більші лінійні розміри.

## 5. ВИСНОВКИ

1. На прикладі кількісного опису розмірних залежностей питомої провідності ультратонких плівок золота підтверджено придатність сучасних теорій класичного та квантового розмірних ефектів для пояснення цих залежностей. Зокрема, підтверджена можливість надійного узгодження результатів розрахунків, виконаних в рамках квазикласичних та квантових підходів в ділянці товщин плівок, при яких має місце перехід до балістичного перенесення заряду, коли розсіяння носіїв струму поверхнею стає домінуючим.
2. Використання теорій квантового розмірного ефекту для пояснення розмірних залежностей провідності плівок металів в приперколяційній області товщин ускладнене внаслідок спрощеного модельного трактування плівки як однорідного ізотропного шару в площині паралельній підкладці і таким чином неможливістю врахувати вплив особливостей морфології плівок на перенесення заряду.

## ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. З. В. Стасюк, А. І. Лопатинський, *Фіз.-хім. тверд. тіла*, **2**, № 4: 521 (2001).
2. 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).
3. N. Trivedi and N. W. Ashcroft, *Phys. Rev. B*, **38**, No. 17: 12298 (1988).
4. 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).
5. R. Munoz, *J. Molecular Catalysis A: Chemical.*, **228**: 163 (2005).
6. А. П. Шпак, Р. І. Бігун, З. В. Стасюк, Ю. А. Куницький, *Наносистеми*,

- наноматеріали, нанотехнології*, **8**, вип. 2: 339 (2010).
7. P. Wißmann and H.-U. Finzel, *Springer Tracts in Modern Physics. Vol. 223. Electrical Resistivity of Thin Metal Films* (2007), p. 128; H. U. Finzel, and P. Wissman, *Annalen der Physik*, **498**, Iss. 1–2: 5 (1986).
  8. J. M. Ziman, *Electrons and Phonons* (London: Oxford University Press: 1963).
  9. R. E. Prange and Tsu-Wei Nee. Quantum, *Phys. Rev.*, **168**: 779 (1968).
  10. L. Sheng, D. Y. Xing, and Z. D. Wang, *Phys. Rev. B*, **51**, No. 11: 7325 (1995).
  11. R. C. Munoz, G. Vidal, G. Kremer, L. Moraga, and C. Arenas, *J. Phys: Cond. Matter*, **12**: 2903 (2000).