

УДК 534.28; 539.2

## АКУСТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИОННЫХ ПРОЦЕССОВ В ОСТРОВКОВЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ

И.Г. Симаков, Д.З. Батлаев, Е.И. Серебрякова

### ACOUSTIC RESEARCH INTO RELAXATION PROCESSES IN ISLAND METALLIC FILMS

I.G. Simakov, D.Z. Batlaev, E.I. Serebryakova

Акустическим методом исследованы акустоэлектронное взаимодействие и процессы перестройки в островковых металлических пленках. Выявлено, что физические свойства пленок после прерывания напыления на какой-либо стадии роста продолжают изменяться, релаксируя к равновесному состоянию. Например, изменение затухания поверхностных волн и проводимости островковых пленок практически прекращается в течение 1.5–2 мин. Установлено, что после прерывания напыления характер релаксационных изменений затухания и проводимости пленки разный. Показано, что в островковой пленке в процессе роста и после прерывания напыления имеют место различные одновременно протекающие процессы релаксации. Изучение релаксации затухания и проводимости позволяет выявлять стадии роста тонкой пленки.

Acoustic electronic interaction and processes of restructuring in island metallic films are researched by acoustic method. It is revealed that film physical properties after spraying interruption at any growth stage keep on changing relaxing to a balance state. For example, attenuation changes of surface waves and conductivity of island films terminate within 1.5–2 min. It is determined that after spraying interruption characteristics of relaxation changes in attenuation and conductivity are different. It is shown that island films during the growth period and after spraying interruption is characterized by different simultaneously running processes of relaxation. Analysis of attenuation relaxation and conductivity allows us to reveal growth stages of a thin film.

Известно, что на ранних стадиях роста тонкие металлические пленки состоят из трехмерных зародышевых образований – островков. Электрофизические свойства островковых пленок существенно отличаются от свойств массивных материалов и сплошных металлических пленок. По мере роста и морфологической эволюции островковых металлических пленок их проводимость изменяется на порядки [1–4].

В случае пьезоэлектрической подложки для изучения высокочастотной проводимости удобно использовать поверхностные акустические волны (ПАВ), которые в пьезоэлектрике сопровождаются переменным электрическим полем, способным взаимодействовать с носителями заряда (электронами) в металлической пленке на поверхности подложки [5]. При малой толщине пленки механическая нагрузка незначительна, а основной вклад в изменение затухания и скорости ПАВ вносит изменение проводимости островковой пленки. Показано [6], что затухание ПАВ в зависимости от сопротивления металлических пленок, напыляемых на поверхность пьезоэлектрических подложек, имеет характерный максимум, а скорость ПАВ изменяется от скорости на «свободной» поверхности  $v_0$  до  $v_\infty$  – скорости на «закороченной» поверхности.

Образование различного рода структурных дефектов, ответственных за аномальные свойства тонких пленок, как правило, происходит на самых ранних стадиях их роста [1, 4]. Для самых тонких пленок характерно наличие подсистем крупных и мелких островков. Из анализа структурных и морфологических превращений на ранних стадиях формирования тонкой пленки следует, что эволюция плотности, размера, формы островков и промежутков между ними осуществляется за счет индивидуального изменения формы каждого островка, а также за счет взаимодействия между островками.

Дальнейшее напыление и рост пленки сопровождается изменением крупной подсистемы, вызван-

ном ростом и коалесценцией островков. Коалесценция (процесс соединения друг с другом и увеличения в размерах островков-зародышей, сопровождаемый поворотами, изменением формы и их рекристаллизацией) имеет место при физическом соприкосновении, сильном взаимодействии между островками и достаточно высокой температуре подложки. Затем изменение крупной подсистемы приостанавливается и изменение всей системы островков происходит за счет мелкой подсистемы [1].

Процесс коалесценции, контролируемый изменением поверхностной энергии, протекает тем интенсивнее, чем больше удельная поверхность пленки, следовательно, чем меньше ее средняя толщина. Поскольку наиболее важными параметрами, определяющими механизм переноса зарядов в островковой пленке, являются высота потенциального барьера и расстояние между островками, естественно, что структурная перестройка приводит к существенному изменению поверхностной проводимости пленки [4].

Если прервать напыление при каком-либо значении поверхностного сопротивления, соответствующего району эффективного взаимодействия ПАВ со свободными электронами, то свойства островковой пленки не стабилизируются мгновенно, а медленно приближаются к состоянию равновесия. Это объясняется тепловым движением адсорбированных атомов по поверхности подложки, коалесценцией и другими сопутствующими явлениями.

На рис. 1 представлена экспериментальная зависимость электронного затухания ПАВ от поверхностного сопротивления островковой пленки золота, полученная в режиме прерывистого (дискретного) напыления. Эксперимент проводился следующим образом. На первом этапе, вплоть до сопротивления пленки  $R_s \approx 10^7$  Ом/□, напыление производили по стандартной методике. Затем напыление прерывалось. После остановки напыления наблюдалось релаксационное изменение поверхностного сопротивления и электронного затухания от достигнутых при

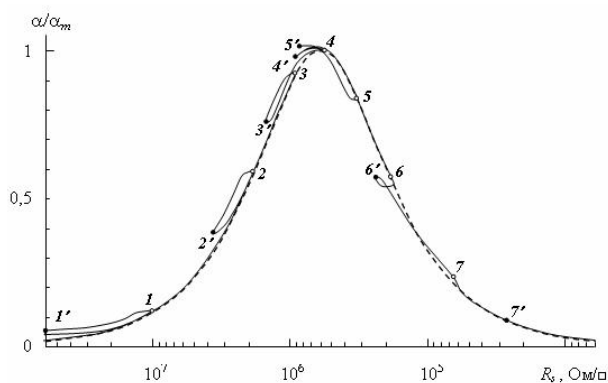


Рис. 1. Изменение поверхностного сопротивления и электронного затухания ПАВ при прерывистом напылении островковой пленки золота: о – остановка напыления, • – окончание релаксационного изменения в пленке.

остановке напыления значений до новых равновесных значений. Увеличение толщины пленки достигалось методом последовательного добавочного напыления. Точки зависимости  $\alpha/\alpha_m(R_s)$ , в которых прерывалось напыление, отмечены маркером «о» и цифрами от 1 до 7 для каждого выделенного участка кривой. Соответственно точки окончания релаксационного изменения в пленке, происходящего после каждого прерывания напыления, отмечены маркером «•» и цифрами от 1' до 7'. Эти точки соответствуют также началу напыления очередной порции металла. Особенность структурной перестройки островковой пленки проявляется в том, что на стадиях формирования, на которых растет эффективность акустоэлектронного взаимодействия, поверхностное сопротивление пленки после прекращения поступления атомов металла на поверхность подложки увеличивается. Изменение сопротивления, измеренного с помощью пленочных электродов, носит релаксационный характер и практически прекращается в течение 1.5–2 мин. При этом устанавливается новое равновесное значение поверхностного сопротивления, которое больше сопротивления, регистрируемого в момент прекращения напыления.

Изменение электронного затухания после прерывания напыления также носит релаксационный характер, однако не следует синхронно за релаксацией поверхностного сопротивления, измеряемого пленочными электродами. Некоторое время затухание остается неизменным, а затем приходит к равновесному значению. Ход кривой повторяет в обратном порядке участок зависимости  $\alpha(R_s)$  с новыми более высокими значениями  $R_s$ . При напылении новой порции металла зависимость  $\alpha(R_s)$  возвращается к обычной (штриховая кривая) зависимости, типичной для непрерывного напыления. Поэтому при дискретном напылении на кривой зависимости затухания ПАВ от поверхностного сопротивления пленки образуются характерные петли.

Эксперимент был организован таким образом, что сразу же после прерывания напыления каждой порции металла дополнительно производилась регистрация изменения затухания ПАВ и поверхностного сопротивления островковой пленки в зависимости от времени. Регистрация продолжалась до

прекращения различной релаксации измеряемых величин. Затем производилось напыление новой порции металла и повторялась регистрация релаксационного изменения затухания ПАВ и поверхностной проводимости. Необходимо отметить, что структурная релаксация и, следовательно, изменение физических параметров островковой пленки могут продолжаться более длительный период времени. Типичные времена релаксации могут изменяться в широком диапазоне – от долей секунды до нескольких лет [1].

На рис. 2 приведены результаты измерения релаксационных изменений, происходящих после прерывания напыления пленки золота – релаксация поверхностной проводимости (а) и электронного затухания ПАВ (б). Кривые 1–7 на рис. 2 соответствуют участкам зависимости эффективного акустоэлектронного взаимодействия (см. рис. 1), которые обозначены теми же цифрами.

На ранних стадиях формирования пленки, для которых характерно образование подсистем крупных и мелких островков, акустоэлектронное взаимодействие неэффективно. Поверхностное сопротивление ( $\sigma \sim 0^{-10}$  См) после прекращения напыления изменяется больше чем на порядок и приходит к значению, принятому равновесным. Затухание ПАВ при этом практически не изменяется.

Из анализа рис. 2 следует, что в островковой пленке в процессе роста и после прерывания напыления имеют место различные одновременно протекающие

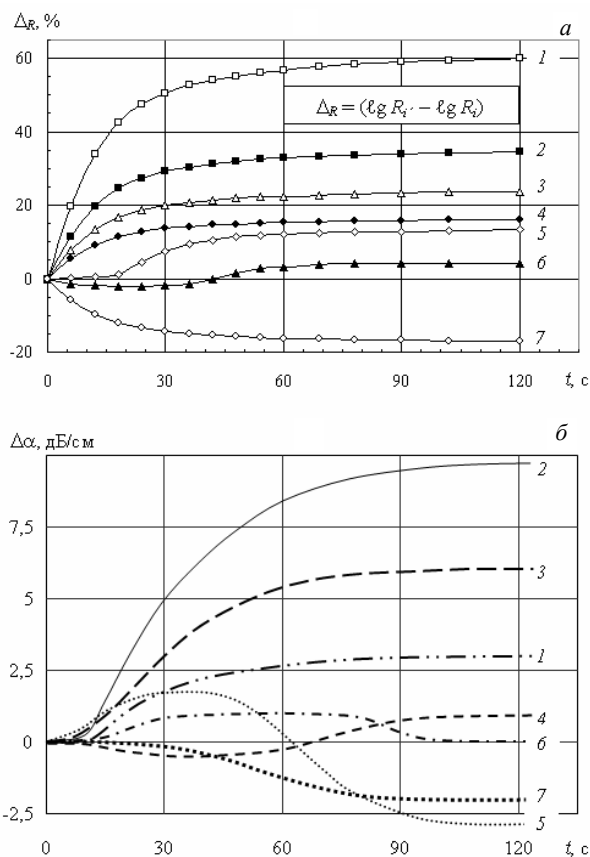


Рис. 2. Релаксационные изменения поверхностного сопротивления островковой пленки золота (а) и электронного затухания ПАВ в слоистой системе (б).

процессы релаксации. На стадиях формирования пленки, которые соответствуют участкам 1–3 зависимости  $\alpha/\alpha_m(R_s)$  (см. рис. 1) после остановки напыления в слоистой системе наблюдается релаксационный рост поверхностного сопротивления, с некоторым запаздыванием за ростом следует уменьшение электронного затухания ПАВ. На участке 4 характер релаксации  $R_s$  сохраняется, а релаксация электронного затухания меняет знак при переходе через максимум зависимости  $\alpha(R_s)$ .

Особенности кинетики релаксационных процессов в островковой пленке на участках 1–4 можно объяснить одновременно протекающими процессами – гетеродиффузией адатомов металла, миграцией мелких островков, миграционной коагуляцией, коалесценцией и автокоалесценцией. Степень влияния на проводимость пленки и времена релаксации этих процессов распределены именно в той последовательности, в которой они перечислены.

В процессе изменения затухания ПАВ и, следовательно, в процессе релаксации высокочастотной проводимости, стимулированной акустоэлектронным взаимодействием, гетеродиффузия адатомов металла, по-видимому, не участвует. Увеличению высокочастотной проводимости, по всей вероятности, способствует более совершенная равновесная форма островков, которая в большей степени обусловлена автокоалесценцией.

В процессе автокоалесценции под действием сил поверхностного натяжения форма островка изменяется. Вследствие диффузии по поверхности и в объеме островка островок стягивается и округляется, растет его высота, уменьшается площадь основания, контур которого стремится к кругу.

Характер релаксации измеряемого поверхностного сопротивления, наблюдающейся после прерывания напыления, усложняется на стадиях формирования пленки, соответствующих участкам зависимости  $\alpha(R_s)$ , отмеченным цифрами 5 и 6. На этих стадиях в результате миграционной коагуляции островки начинают сталкиваться и между ними образуются мостики. Если мостик достаточно прочен, то один из островков притягивается к другому и они соединяются по схеме жидкоподобной коалесценции. Далее в результате автокоалесценции островки разъединяются. Поэтому после остановки напыления первоначально проявляется тенденция к уменьшению поверхностного сопротивления островковой пленки (кривая 5) либо поверхностное сопротивление действительно уменьшается (кривая 6), затем поверхностное сопротивление снова увеличивается (кривые 5 и 6).

Изменение затухания ПАВ после остановки напыления  $\Delta\alpha(t)$  на участках 5 и 6 (см. рис. 1) в процессе релаксации (кривые 5 и 6 на рис. 2) становится знакопеременным. Необходимо отметить, что в результате структурной перестройки островковой пленки (участок 5) затухание может превышать значение максимального затухания, полученного при

непрерывном напылении. Характер релаксационных изменений затухания может быть также объяснен различием измеряемой в эксперименте поверхностной проводимости и высокочастотной проводимости пленки, которая проявляется при взаимодействии ПАВ со свободными электронами.

Структурная перестройка пленки на стадии роста, соответствующей участку 7, характеризуется интенсивным процессом образования мостиков, срастанием островков, формированием «лабиринтной» и «сетчатой» структур. Особенность релаксационных процессов на этой стадии роста проявляется в том, что после прерывания напыления поверхностное сопротивление пленки и электронное затухание ПАВ, как и до остановки, продолжают уменьшаться до некоторых равновесных значений (кривые 7 на рис. 2, а, б). Некоторое отличие характера релаксационных кривых 7 также свидетельствует о несовпадении измеряемой и высокочастотной проводимости пленки.

В результате проведенного исследования установлено, что прерывание напыления на какой-либо стадии формирования пленки приводит к релаксационному изменению сопротивления и параметров ПАВ от значений, достигнутых при остановке напыления, до новых равновесных значений. Показано, что характер релаксационных изменений затухания и скорости ПАВ после остановки напыления меняется на разных этапах формирования пленки и позволяет выявить стадии роста, которые характеризуются соответствующими структурными преобразованиями.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Трусов Л.И., Холмянский В.А. Островковые металлические пленки. М.: Металлургия, 1973. 320 с.
2. Неизвестный И.Г., Шварц Н.Л., Яновицкая З.Ш. Формирование системы двумерных островков в процессе МЛЭ при большом размере критического зародыша / Физика кристаллизации. К столетию Г.Г. Леммлейна: Сб. статей. М.: Изд-во «Физ.-мат. Литература», 2002. С. 195–205.
3. Робертсон Д., Паунд Г.М. Гетерогенное образование зародышей и рост пленок // Новое в исследовании поверхности твердого тела под ред. Т. Джайядевайя, Р. Ванселова. М.: Мир, 1977. Вып. 1. С. 64–128.
4. Иевлев В.М., Трусов Л.И., Холмянский В.А. Структурные превращения в тонких пленках. М.: Металлургия, 1988. 326 с.
5. Бирюков С.В., Гуляев Ю.В., Крылов В.В., Плесский В.П. Поверхностные акустические волны в неоднородных средах. М.: Наука, 1991. 416 с.
6. Симаков И.Г., Серебрякова Е.И., Батлаев Д.З. Акустоэлектронное взаимодействие в планарных системах наноразмерных металлических частиц // Байкальская международная молодежная научная школа по фундаментальной физике. X Конференция молодых ученых «Современные проблемы в астрофизике и физике космической плазмы». Иркутск, 2007. С. 317–319.

Отдел физических проблем БНЦ СО РАН, Улан-Удэ