УДК 534.28 + 539.2

АКУСТОЭЛЕКТРОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ В ПЛАНАРНЫХ СИСТЕМАХ НАНОРАЗМЕРНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ЧАСТИЦ

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

THE ACOUSTIC ELECTRONIC INTERACTION IN PLANAR SYSTEM OF NANOSIZE METALLIC PARTICLES

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

Исследовано взаимодействие поверхностных акустических волн с электронами проводимости планарной системы наноразмерных металлических частиц в процессе напыления тонких пленок благородных металлов на поверхность YZсреза пьезоэлектрического кристалла ниобата лития. Экспериментально получено, что затухание ПАВ в зависимости от сопротивления напыляемых металлических пленок имеет характерный максимум, а скорость ПАВ изменяется от скорости на свободной поверхности подложки до скорости на металлизированной поверхности. Максимальное затухание имеет место на стадии образования островковой пленки с характерными размерами металлических частиц 50 – 100 нм. Релаксационный характер изменения скорости и затухания ПАВ объяснен акустоэлектронным взаимодействием.

It was Explored interaction of the surface acoustic waves (SAW) with electrons of the conductivities of the planar system of the metallic particles in process of coating fine films of the evaporation metals on piezocrystallic substrate LiNb. Experimentally was received that fading the surface acoustic waves depending on resistances of metallic films, coated on surface of the substrate, has a typical maximum, but velocity of surface acoustic waves changes from velocity on «free» surfaces before velocity on metallic surfaces. Observed change of the velocity of the fading the surface waves possesses expressed characteristic of relaxation. Maximum fading exists on stage of the formation of film with typical sizes of the metallic particles 50 - 100 nm. Presence of the maximum of the fading (\sim 80 dB/cm) is explained of the acoustic electrical interaction.

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.

Значительный физический интерес представляет изучение поверхностных процессов в планарных системах наноразмерных металлических частиц – островковых металлических пленках [1], которые успешно применяются в качестве холодных катодов, датчиков физических величин и элементов микроэлектроники [2]. Особое внимание к этим системам вызвано в большей степени тем, что их электрические свойства по своему характеру ближе к свойствам полупроводников, несмотря на металлическую природу пленки. По мере роста и морфологической эволюции островковых металлических пленок их проводимость изменяется на порядки.

Для изучения высокочастотной проводимости пленок, напыляемых на поверхность пьезоэлектрического звукопровода, могут быть использованы поверхностные акустические волны (ПАВ) [3], которые в пьезоэлектрике сопровождаются переменным электрическим полем, способным взаимодействовать с носителями заряда (электронами) в металлической пленке на поверхности подложки. При малой толщине пленки механическая нагрузка несущественна, а основной вклад в изменение затухания и скорости ПАВ вносит изменение проводимости островковой пленки. Поэтому изучение процессов электрон-фотонного взаимодействия В системе подложка - островковая металлическая пленка является актуальной задачей.

Исследуемая структура включает в себя твердое полупространство, жидкий или твердый слой тол-

щиной h (с диэлектрической проницаемостью εh) и вакуум или газ (относительная диэлектрическая проницаемость которого $\varepsilon g \approx 1$). При учете акустоэлектронного взаимодействия в слоистых структурах строгий расчет параметров ПАВ возможен, но сопряжен с большими математическими трудностями. Трудности удалось преодолеть, используя метод электромагнитного импеданса [5, 6]. Применяя импедансный подход, отыскивали решение для волновых полей не во всем объеме слоистой структуры, а только на плоской границе раздела. Дисперсионное уравнение для ПАВ в слоистой системе запишем в виде

$$-\varepsilon_p \frac{k^* - k_{\infty}}{k^* - k_0} = \varepsilon_h^* \frac{\varepsilon_h^*}{\varepsilon_h^* + \varepsilon_g} \frac{th}{th} \frac{(kh) + \varepsilon_g}{(kh)},$$

где $\varepsilon_p = (\varepsilon_{yy}\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{yz}^2)^{1/2}$ – относительная диэлектрическая проницаемость, выражаемая через соответствующие компоненты тензора диэлектрической проницаемости пьезоэлектрика, $k_{\infty} = \omega/v_{\infty}$, $k_0 = \omega/v_0$, v_0 – скорость ПАВ на металлизированной («закороченной») поверхности, v_{∞} – скорость на «открытой» поверхности, $k^* = k + i\alpha$,

$$\begin{aligned} \varepsilon_a^* &= \varepsilon' - j\varepsilon'' = \varepsilon_h (1 - ja), \\ (a &= \operatorname{tg} \delta = \varepsilon'' / \varepsilon', \quad \varepsilon' \equiv \varepsilon_h), \end{aligned}$$

j – мнимая единица, α – коэффициент затухания, ω – круговая частота ПАВ.

Коэффициенты затухания и дисперсии скорости ПАВ даются соотношениями [3]:

$$\alpha = \operatorname{Im} (\Delta k), \quad \frac{\Delta v}{v} = \operatorname{Re} \left(\frac{\Delta k}{k} \right),$$

где Δk и Δv – изменение волнового числа и скорости ПАВ в результате акустоэлектронного взаи-

модействия.

При малой толщине слоя (kh << 1) из уравнения (1) для тонких полупроводящих пленок получим укороченное уравнение, из которого выделим вещественную и мнимую части:

$$\frac{k_0 - k}{k_0} = \frac{K^2}{2} \frac{1}{1 + (\varepsilon_r k_c h)^2} \frac{\varepsilon_p}{(\varepsilon_p + 1)},$$
(2)

$$\frac{\alpha}{k_0} = \frac{K^2}{2} \frac{\varepsilon_r k_c h}{1 + (\varepsilon_r k_c h)^2} \frac{\varepsilon_p}{(\varepsilon_p + 1)},$$
(3)

где v_s – скорость ПАВ, $K^2/2 = (k_0 - k_\infty)/k_0$, K – коэффициент электромеханической связи, $k_c = \omega_c/v_s$, $\omega_c = \sigma_c/\varepsilon_h \varepsilon_0 = 1/\tau_M$ – частота максвелловой релаксации в пленке, $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12} \Phi/M$ – диэлектрическая проницаемость вакуума.

Уравнение (2) описывает дисперсию скорости ПАВ в слоистой системе. Уравнение (3) позволяет оценивать поглощение ПАВ в результате акустоэлектронного взаимодействия с носителями заряда в полупроводящей пленке или слое. Необходимо отметить, что выражения (2) и (3) были получены без учета диффузионных потоков, сглаживающих распределение свободных носителей заряда вдоль волны.

В случае островковой пленки определение толщины проблематично. Чтобы избавиться от необходимости измерения эффективной толщины h, удобно воспользоваться поверхностной проводимостью σ_s или поверхностным сопротивлением R_s ($\sigma_s = h\sigma_c = 1/R_s$, где R_s – сопротивление участка пленки с одинаковой длиной и шириной в плоскости подложки). Можно показать, что затухание ПАВ, обусловленное акустоэлектронным взаимодействием α (дБ/см), определяется выражением

$$\alpha = 4,34 \frac{\omega K^2 \varepsilon_p \varepsilon_0 R_s}{1 + \left(\upsilon_s(\varepsilon_p + 1) \ \varepsilon_0 R_s\right)^2}$$
(4)

и достигает максимальной величины $\alpha_{\rm m}$ при $R = R_{\rm m}$ и при условии

$$v_s R_m \left(\varepsilon_p + 1 \right) \ \varepsilon_0 = 1.$$

Экспериментально исследовалось взаимодействие ПАВ с электронами проводимости пленок, полученных термическим испарением металлов в вакууме. В экспериментах применялась стандартная вакуумная система, а в качестве подложки для напыления пленок использовалась линия задержки, сформированная на оптически полированной поверхности пластины YZсреза, изготовленной из монокристалла ниобата лития. Для измерения поверхностной проводимости пленки использовали серебряные электроды. После напыления измерительных электродов на поверхность подложки наносили ПАВ-преобразователи. Преобразователи изготавливали методом фотолитографии или гравировки алюминиевой пленки толщиной ~ 80-100 нм, напыляемой в вакууме на поверхность подложки при комнатной температуре.

Для напыления использовались металлы с чистотой лучше 99.9 %. Скорость напыления металлов была около 0.5 нм/с. Вакуум во время напыления поддерживался ~ $2\cdot10$ –6– $6\cdot10$ –6 мм рт. ст. Подложка помещалась на расстоянии ~18 см от лодочки. Испарение проводилось из вольфрамовой или танталовой лодочки, покрытой Al_2O_3 для предотвращения реакции металла лодочки с испаряемым веществом. Для получения воспроизводимых результатов лодочку необходимо загружать свежей навеской. После каждого напыления для очистки лодочки металл старой навески должен быть полностью испарен.

Для возбуждения и регистрации изменения затухания и скорости ПАВ использовались стандартные методы и аппаратура. Поверхностные волны возбуждались излучающим преобразователем, на который подавался непрерывный или импульсный (длительность ~5 мкс) высокочастотный (основная частота ~ 43.5 МГц) сигнал с ВЧ-генератора. Амплитуда сигнала регулировалась аттенюатором. Распространяясь по поверхности кристалла, ПАВ взаимодействуют с напыляемой пленкой и преобразуются приемным преобразователем в электрический ВЧ-сигнал, задержанный относительно входного сигнала на время распространения. Изменение затухания ПАВ записывалось в дБ на координатной оси Y, а изменение сопротивления пленки – в логарифмическом масштабе на оси Х. Оси Ү и Х (значений затухания и поверхностного сопротивления) калибровались с помощью аттенюатора и магазина сопротивлений после завершения каждого напыления.

Экспериментально получено, 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_{∞} – скорости на «закороченной» поверхности. На рис. 1 представлены зависимости изменения параметров ПАВ от поверхностного сопротивления пленки золота при ее напылении на подложку ниобата лития. Особенности изменения затухания (кривая 1) и скорости ПАВ (кривая 2) указывают на то, что акустоэлектронное взаимодействие в исследуемой слоистой структуре носит релаксационный характер.

Физически это объясняется некоторой инерционностью носителей заряда (электронов) в пленке. Накопление и рассасывание избыточных электронов в минимумах потенциала электрического поля ПАВ



Рис. 1. Изменение затухания (1) и скорости (2) поверхностных акустических волн в зависимости от сопротивления островковой пленки золота.

происходит не мгновенно. Чтобы объемный заряд в пленке изменился в *е* раз, необходимо конечное время $\tau_{M} = \epsilon / \sigma_{c}$, которое называют максвелловым временем релаксации. Частота ПАВ ω не должна быть меньше частоты проводимости $\omega_{c} = \sigma_{c}/\epsilon$, чтобы объемный заряд в пленке не успевал полностью экранировать электрическое поле упругой поверхностной волны. Частота также не должна быть слишком высокой, так как при высоких частотах (коротких длинах волн) сильно возрастают диффузионные потоки, сглаживающие распределение свободных носителей заряда вдоль волны.

Анализ взаимодействия ПАВ с носителями заряда в островковых металлических пленках возможен как с учетом диффузионного сглаживания распределения электронов вдоль волны, так и без учета диффузионных эффектов. Выбор модели акустоэлектронного взаимодействия зависит от того, какому конкретному механизму проводимости островковых пленок отдается предпочтение. Для понимания механизма проводимости островковых пленок к числу ключевых относятся следующие вопросы: механизм переноса зарядов и определяемый им порядок величины поверхностного сопротивления; природа полевой зависимости тока проводимости; природа энергии активации. В свою очередь, выделенные основные моменты зависят главным образом от структуры пленки. Учитывая, что теоретические подходы к изучению проводимости островковых пленок весьма многообразны, важно было сопоставить акустоэлектронное взаимодействие в исследуемой слоистой системе со структурой пленки и ее морфологическими изменениями.

Изменение структуры (т. е. формы пленки, которая определяется ограничивающими ее геометрическими поверхностями) продемонстрировано электронномикроскопическими снимками (рис. 2) пленок золота разной толщины. Снимки соответствуют пленкам, полученным на разных стадиях их формирования. Кроме этого снимки и структура островковых пленок соответствуют выделенным этапам взаимодействия



Рис. 2. Электронно-микроскопические фотографии островковой пленки золота в стадиях формирования, соответствующих выделенным участкам зависимости электронного затухания ПАВ от поверхностной проводимости.

ПАВ с электронами проводимости, обозначенным на кривой $\alpha/\alpha_{\rm m}(\sigma_{\rm s}/\sigma_{\rm m})$ буквами от *a* до *e*.

Из анализа электронно-микроскопических снимков следует, что пленка имеет островковую структуру. Размер островков в районе максимального затухания ПАВ порядка 50-100 нм. При такой структуре представляется некорректным использование теории проводимости Нейгебауэра и Вэбба [7], в которой пленка состоит из множества маленьких плоских изолированных друг от друга островков и которую Садар и Харник [8] применили для объяснения АЭ-затухания. Дискретность структуры пленки позволяет утверждать, что диффузионные эффекты в ней не существенны и, следовательно, $\omega_D >> \omega_c$, ω . Поэтому для анавзаимодействия ПАВ с электронами лиза проводимости в островковой металлической пленке можно воспользоваться уравнениями (2), (3) и (4), полученными без учета диффузионного сглаживания распределения электронов вдоль волны.

Таким образом показано, что пленка имеет островковую структуру, размер островков в районе максимального затухания ПАВ порядка 50-100 нм. Дискретность структуры пленки позволяет утверждать, что диффузионные эффекты в ней не существенны. Обнаружено, что взаимодействие ПАВ с носителями заряда в островковых пленках носит релаксационный характер. Частота релаксации зависит от поверхностного сопротивления пленок. Кроме того, выявлено, что результаты измерения поверхностной проводимости зависят от условий формирования островковой пленки, ее структурной однородности и методики измерения поверхностного сопротивления. Поверхностное сопротивление одной и той же пленки может быть разным в результате образования структурно неоднородных участков при ее формировании, что проявляется как отличие акустоэлектронной проводимости от проводимости, измеренной на постоянном токе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Болтаев А.П., Пенин Н.А., Погосов А.О., Пудонин Ф.А. Обнаружение фотопроводимости в сверхтонких металлических пленках в видимой и инфракрасной областях спектра // ЖЭТФ. 2003. Т. 123; вып. 5. С. 1067–1072.

2. Fedorovich R.D., Naumovets F.G., Tomchuk P.M. Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles // Phys. Rep. 2000. V. 328. P. 73–179.

3. Вьюн В.А., Ржанов А.В., Яковкин И.Б. Акустоэлектронные методы исследования поверхности полупроводников / Новосибирск: ИФП СО АН СССР, 1987. 126 с.

4. Ingebrigtsen K.A. Surface waves in piesoelectrics // J. Appl. Phys. 1969. V. 40, N 7. P. 2681–2686.

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. Балакирев М.К., Гилинский И.А. Волны в пьезокристаллах. Новосибирск.: Наука, 1982. 240 с.

7. Neugebayer C.A., Webb M.B. Electrical conduction mechanism in ultrathin evaporated metal films // JAP. 1962. V. 33, N 1. P. 74–82.

8. Sader E., Harnik E., Kovnovich S. Acoustoelectric measurement of electron mobility and diffusion in ultrathin evaporated gold films // J. Appl. Phys. Lett. 1980. V. 36, N 6. P. 430–431.

Отдел физических проблем БНЦ СО РАН, Улан-Удэ