

弥散型金属薄膜逾渗系统的临界特性*

冯春木^{①②} 葛洪良^① 叶高翔^① 焦正宽^① 张其瑞^①

(^①浙江大学物理系, 杭州 310027; ^②杭州大学实验中心, 杭州 310028)

摘要 报道了一种弥散型金属薄膜逾渗系统的制备方法和研究结果. 从实验发现这种新型的逾渗系统具有异常的 $R-I$ 关系、三次谐波系数与独特的电流临界规律. 分析表明: 这些特性与此类薄膜逾渗结构随电流增大而逐渐变化的过程有关, 是由沿膜横向逐渐变化的局域隧道电流(LDTC)与跳跃电导(LDHC)效应引起的.

关键词 弥散型薄膜 $R-I$ 关系 三次谐波系数 电流临界特性

近几年来, 对非平整薄膜(rough film)的研究取得了较大的进展^[1~6]. 由于复杂的表面微结构, 非平整薄膜呈现出诸多与一般平膜不同的物理性质. 薄膜表面小于亚微米尺度的微观结构对其各种物理性能产生了极其复杂的影响^[3, 7]. 尽管这种影响的物理起源还有待深入研究, 但毫无疑问, 非平整薄膜所显示出这些新效应与其表面微结构密切相关. 因此, 如何控制与改变薄膜的表面微结构是非平整薄膜系统研究的一个重要方面.

对于介观系统(如量子阱、量子波导等), 其边缘结构对系统的导电性能产生了重要影响. 为了进一步研究介观现象的物理起源, 必须在纳米左右尺度范围内去描述介观系统的微结构^[8~10]. 然而, 对于宏观的薄膜系统, 人们至今很少去研究边缘结构对系统性能的影响或者认为其影响较小, 常常将边缘效应忽略^[5, 6, 11~14].

本文采用非均匀沉积速率方法, 制备出一种弥散型金属薄膜逾渗系统. 用扫描电镜(SEM)和特征 X-射线能量强度线扫描技术分析薄膜的表面形貌及其膜厚的空间分布, 并对薄膜的 $R-I$ 关系、三次谐波系数与电流临界规律进行了系统研究.

1 实验方法

在室温下, 采用直流磁控溅射方法制备弥散型金属薄膜逾渗系统. 基片为一般的载波片. 圆形金属 Au 靶(直径 $\varphi = 81.5$ mm)与基片之间放置一开有狭缝(缝宽 $w = 0.20$ mm)的挡板, 并使挡板与基片保持一定的距离 h . 溅射原子能通过狭缝到达基片, 从而在基片上形成了沉积速率随空间位置逐渐变化的沉积区. 显然, 用这种狭缝沉积(slits deposition)方法制备的薄膜是非均匀的. 实验时, 溅射 Ar 气压为 0.1 Pa, 基片上最大沉积速率小于 0.2 nm/s, 样品长度为 5.0 mm, Au 靶与基片之间距离 $H = 30.0$ mm. 选取 $h = 1.5$ mm, 样品的表观宽度 $w_f = 2.0$ mm, 即比狭缝宽度要大一个量级. 这表明通过狭缝的溅射原子已向其周围弥散.

1996-11-20 收稿, 1997-02-18 收修改稿

* 国家自然科学基金和浙江省自然科学基金资助项目

在室温和空气中,薄膜样品的直流 R - I 关系用常规四引线方法测量,并用标准电阻跟踪,以保证实验结果的正确性. 用日立 S-570 扫描电镜与 PV9900 能谱仪分析样品的表面形貌及其膜厚的空间分布.

2 样品的表面形貌与膜厚分布

实验制得的弥散型 Au 薄膜的 SEM 照片、特征 X-射线沿膜横向线扫描能量强度分布曲线(白亮线)如图 1 示,白亮线幅度与相应处的膜厚成正比. 从图中不难看出此类薄膜具有以下特点:(1)薄膜是非均匀的,其膜厚沿横向由膜中心至两侧边缘区域是逐渐减小的,呈弥散型表面结构;(2)由于两侧边缘区域是逐渐变薄的,使薄膜不具有清晰的边缘轮廓. 这些模糊不清的边缘区域形成了弱连接逾渗网络,对薄膜导电性能将产生重要影响,边缘效应不能被忽略^[11]. 是这种特殊的表面微结构导致了该系统具有异常的非线性 R - I 关系、三次谐波系数与独特的电流临界规律.

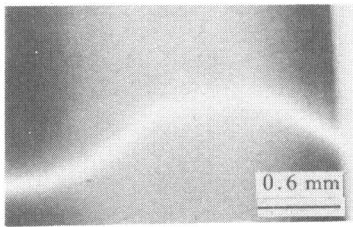


图 1 弥散型 Au 薄膜的 SEM 与特征 X-射线能量强度线扫描图像

3 非线性直流 R - I 关系

弥散型 Au 薄膜样品的 R - I 关系测量结果如图 2~4 所示. 图 2 表明:在低电流时,薄膜电阻 R 随电流 I 呈单调增大,并可表示为:

$$R = R_0 + BI^2, \quad (1)$$

其中 B 为三次谐波系数^[15,16]. 实验数据拟合结果 $B = 7.86 \times 10^4 \text{ V/A}^3$, 这个结果类似于平膜系统^[15,16]. 但从图 3 可发现:当电流增大至 I_{m_1} 时, R 达到极大值;若继续增大电流($I > I_{m_1}$), R 随电流迅速减小,直到电流增大到 I_{m_2} 时, R 达到极小值;当电流超过 I_{m_2} 时, R 又随电流而迅速增大. 同时,我们还发现这个异常的非线性 R - I 特性是不可逆的. 如图 4 所示,样品经过 1 次测量后,再次测得的 R - I 关系发生了本质的变化,起始电阻有较大幅度下降 $\Delta R_0/R_0 = 38\%$, R - I 曲线呈单调上升,类似于平膜系统^[15,16].

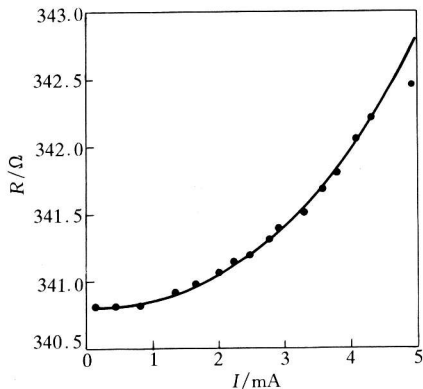


图 2 弥散型 Au 薄膜的 R - I 关系(小电流时)

实线为函数 $R = R_0 + BI^2$ 的拟合结果,其中

$$B = 7.86 \times 10^4 \text{ V/A}^3$$

我们认为,图 2~4 所描述的非线性 R - I 特性与此类薄膜的弥散型表面结构与边缘效应密

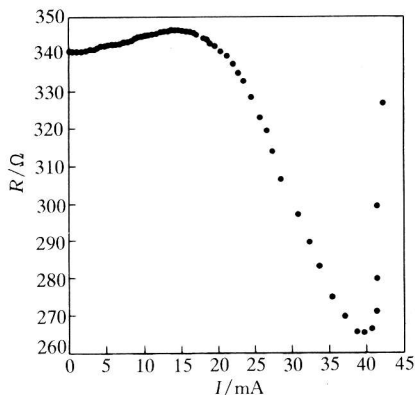
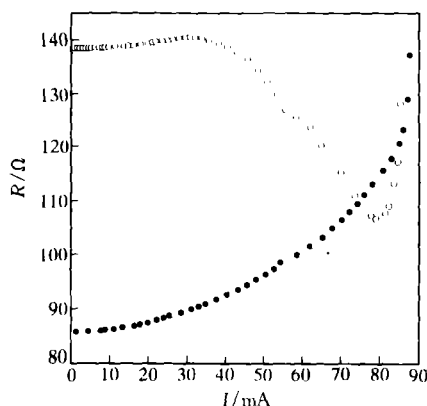


图 3 弥散型 Au 薄膜的 R - I 关系

图 4 弥散型 Au 薄膜的 R - I 关系

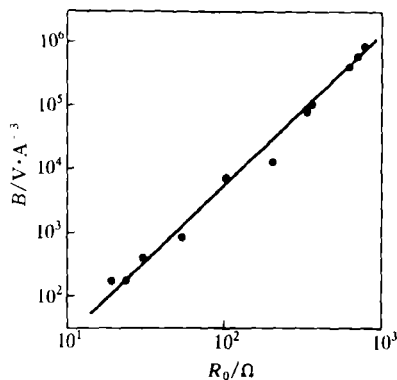
○为第 1 次测量结果, ●为第 2 次测量结果

切相关,因为在其他系统中没有发现过类似现象^[5,6,15,16]. 由于弥散型薄膜的膜厚(或表面覆盖率 p)沿膜横向由中心至两侧边缘区域逐渐地减小,因此,这种薄膜内的许多无规缺陷(random defects)的结构形态也随膜横向逐渐变化的,它们与金属碎片膜一起构成了各向异性逾渗网络. 在测量过程中,由于电流密度沿膜横向由中心至两侧边缘区域逐渐地减小,故薄膜内的热结点(hot spot)^[15,16](由缺陷形成的)也随电流增大、局域温度升高由膜中心至两侧边缘区域逐渐地被激活(activated)和熔化(melting)^[15,16],产生局域隧道电流(location-dependent tunneling current, 简称 LDTC)和跳跃电导(location-dependent hopping current, 简称 LDHC)^[5],这种局域效应将导致薄膜电阻 R 减小. 在小电流时,电流主要从薄膜的中间区域通过,局域焦耳热(local Joule heating, 简称 LJH)效应^[15,16]对薄膜的导电过程起着主导作用,从而导致了 $dR/dI > 0$ 的 R - I 关系;然后,随着电流增大、局域温度升高,尽管 LJH 效应使 R 增大,但 LDTC, LDHC 效应随局域温度升高而增大,使 R 减小;当 $I = I_{m_1}$ 时, LJH 效应与 LDTC, LDHC 效应趋于平衡,使 R 达到极大值;当 $I_{m_1} < I < I_{m_2}$ 时, LDTC, LDHC 效应对薄膜的导电过程起着主导作用,从而使 R 随着电流增大而迅速地减小,在 R - I 曲线上出现负斜率即 $dR/dI < 0$;当电流增大至 I_{m_2} 时, LDTC, LDHC 效应趋向饱和,再次与 LJH 效应达到平衡,使 R 取得极小值;当 $I > I_{m_2}$ 时, LJH 效应与弱连接边缘区域的热熔断效应使 R 随电流而迅速增大,从而在 R - I 曲线上再次出现正斜率即 $dR/dI > 0$. 总之,这种异常的 R - I 特性与该系统内由于热结点熔化引起薄膜局域结构变化的过程有关,是由沿膜横向逐渐变化的 LDTC, LDHC 效应引起的. LDTC, LDHC 效应与 LJH 效应之间的相互竞争使 R - I 曲线上出现了相对平滑的峰与谷.

弥散型薄膜的 R - I 特性的不可逆性是由于经过 1 次测量后,各向异性逾渗结构遭到严重破坏引起的. 薄膜内热结点连通(bond-link)效应使重测的 R - I 曲线的起始电阻 R_0 有较大幅度下降,这个降幅一定程度上反映了薄膜内热结点对总电阻的贡献. 同时,各向异性逾渗系统中大量热结点消失和弱连接边缘区域的损坏,使重测 R - I 关系过程中, LJH 效应始终对薄膜的导电过程起着主导作用,从而导致了 R - I 曲线呈单调上升, I_{m_1} , I_{m_2} 不再出现.

4 三次谐波系数

在低电流时,利用(1)式拟合样品的 R - I 实验点,便可求得三次谐波系数 B . 我们用这种方法共求得了具有不同 R_0 的 11 个样品的 B 值,结果如图 5 所示. 从图中不难发现 B - R_0 仍满足无规电阻网络(RRN)^[12]模型的指数式临界关系:

图 5 弥散型 Au 薄膜的 B - R_0 关系 B 和 R_0 满足指数关系, $B \propto R_0^{2+\omega}$ 拟合后直线斜率 $2 + \omega = 2.29 \pm 0.07$

$$B \propto R_0^{2+\omega}, \quad (2)$$

其中 ω 为功率谱临界指数. 从图中直线斜率可求得 $2 + \omega = 2.29 \pm 0.07$. 但这一结果比其他系统的相应值^[5,6,15,16]及二维系统理论值小得多^[15,16]. 较小 ω 值说明功率谱指数强烈地依赖于薄膜的表面微结构,反映了弥散型表面结构与弱连接边缘区域对 ω 值的影响. 这一结果也再次证明了功率谱指数不具有普适性^[15,16].

5 电流临界规律

由于弥散型薄膜的逾渗结构随电流增大而逐渐变化的,因此很难以 R - I 曲线来确定此类薄膜样品的临界电流 I_c 与 R_0, B 之间的关系^[15,16]. 但从实验发现: I_{m_1}, I_{m_2} 与 R_0, B 之间存在着指数式临界关系:

$$I_{m_1} \propto R_0^{-\alpha_1}, \quad I_{m_2} \propto R_0^{-\alpha_2}, \quad (3)$$

$$I_{m_1} \propto B^{-x_1}, \quad I_{m_2} \propto B^{-x_2}. \quad (4)$$

5.1 I_{m_1}, I_{m_2} 与 R_0 的临界关系

如图6所示,对11个样品的 I_{m_1}, I_{m_2} 与 R_0 数值的直线拟合结果: $\alpha_1 = 0.66 \pm 0.07$, $\alpha_2 = 0.59 \pm 0.07$. 这两个临界指数值与平膜系统 I_c 的临界指数 α 值^[15,16]相差较大. 这一结果再次表明电流临界指数不具有普适性,强烈依赖于薄膜表面微结构^[15,16]. 从上面分析可知: I_{m_1}, I_{m_2} 是弥散型薄膜结构渐变过程中 LJH 效应与 LDTC, LDHC 效应之间相互竞争的两个动态平衡点,因此,这种新型的电流临界关系描述了以上诸效应在平衡点附近的临界行为,反映了各向异性逾渗系统的一种临界特性;而平膜系统的电流临界关系描述了其结构突变过程中在 I_c 附近的临界行为,反映了各向同性逾渗系统的一种临界特性.

5.2 I_{m_1}, I_{m_2} 与 B 的临界关系

如图7所示,对相同11个样品的 I_{m_1}, I_{m_2} 与 B 数值的直线拟合结果: $x_1 = 0.29 \pm 0.07$, $x_2 = 0.26 \pm 0.07$. 这两个数值比 Yagil 等人^[15,16]提出的具有普适性电流临界关系 $I_c \propto B^{-x}$ 中的临界指数理论预言值范围 ($0.36 \leq x \leq 0.50$) 偏小些. 这种差异的存在对这种普适性电流临

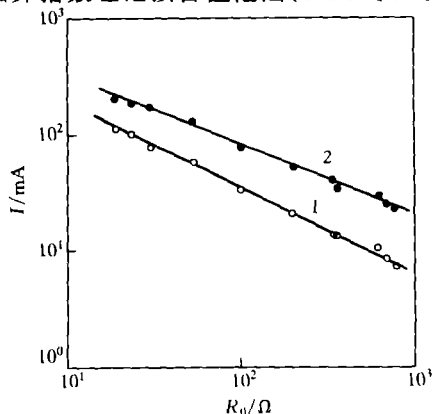


图6 平衡电流 I_{m_1}, I_{m_2} 与 R_0 的临界关系
从拟合直线求得: $\alpha_1 = 0.66 \pm 0.07$, $\alpha_2 = 0.59 \pm 0.07$

1 为 I_{m_1} , 2 为 I_{m_2}

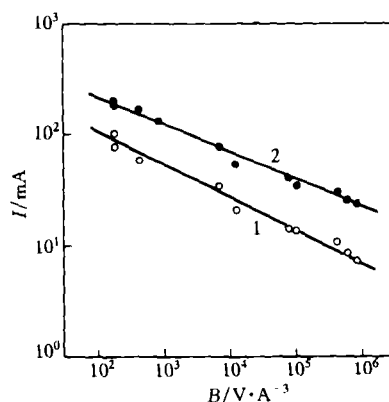


图7 平衡电流 I_{m_1}, I_{m_2} 与 B 的临界关系
从拟合直线求得: $x_1 = 0.29 \pm 0.07$, $x_2 = 0.26 \pm 0.07$

1 为 I_{m_1} , 2 为 I_{m_2}

界规律提出了质疑,说明二维逾渗系统的普适性临界关系还有待进一步研究.同时也表明 I_{m_1} , I_{m_2} 与 I_c 所描述的临界现象之间存在一定的差异,反映了弥散型表面结构与弱连接边缘区域对薄膜临界特性的影响.

6 结论

用上述狭缝沉积方法制备的薄膜具有弥散型表面结构与弱连接边缘区域.这种独特的表面微结构导致了该系统具有异常的 $R-I$ 关系、三次谐波系数与新型的电流临界特性.分析表明:这些特性与该系统内由于热结点熔化而引起薄膜局域结构变化的过程有关,是由沿膜横向逐渐变化的 LDTC, LDHC 效应引起的.

作者相信,弥散型薄膜的上述特性是极其重要的.特别是逾渗结构的渐变过程对此类薄膜的导电性能产生了极为重要的影响.因此,上述狭缝沉积法不仅为研究非平整薄膜逾渗结构演化、临界特性和边缘效应提供了一种新的实验方法,而且也为寻找和制备新型的非平整膜、多层膜、量子阱及超晶格等开辟了一条新途径.在理论上,如何描述这些异常的物理现象,寻找普适性的临界关系将是一件十分复杂而又是非常有意义的工作.

参 考 文 献

- 1 Laibowitz R B, Gefen Y. Dynamic scaling near the percolation threshold in thin Au-film. *Phys Rev Lett*, 1984, 53:380
- 2 Yoon C S, Lee S I. Measurements of ac conductivity and dielectric constant in a two-dimensional lattice-percolation system. *Phys Rev*, 1990, B42:4 594
- 3 Krim J, Heyvaert I, Van Haesendonck C, et al. Scaling tunneling microscopy observation of self-affine fractal roughness in ion-bombarded film surfaces. *Phys Rev Lett*, 1993, 70:57
- 4 Watson G M, Doon G, Zehner D M, et al. Faceting transformations of the stepped Pt(001) surface. *Phys Rev Lett*, 1993, 71:3 166
- 5 Ye G X, Wang J S, Xu Y Q, et al. Evidence of anomalous hopping and tunneling effects on the conductivity of a fractal Pt-film system. *Phys Rev*, 1994, B50:13 163
- 6 Ye G X, Xu Y Q, Ge H L, et al. Conductivity and dielectric in a wedge-shaped Pt-film percolation system. *Phys Lett*, 1995, A198:251
- 7 Wu F, Jaloviar S G, Lagally M G. Roughing of steps during homoepitaxial growth on Si(001). *Phys Rev Lett*, 1993, 71:4 190
- 8 Kastner M. Artificial atoms. *Phys Today*, 1993, 46:24
- 9 Eugster C C, Nuytkens P R, Alamo J A. A novel analog-to-digital conversion architecture using electron waveguides. *IEEE Trans on Elec Dev*, 1993, 40:1 910
- 10 Mailly D, Chapelier C, Benoit A. Experimental observation of persistent currents in a GaAs-AlGaAs single loop. *Phys Rev Lett*, 1993, 70:2 020
- 11 Song Y, Lee S I, Gaines J R. Ac conduction and $1/f$ noise in a Cr-film lattice-percolation system. *Phys Rev*, 1992, B46:14
- 12 Dubson M A, Hui Y C, Weissman M B, et al. Measurements of the forth moment of the current distribution in two-dimensional random resistor networks. *Phys Rev*, 1989, B39:6 807
- 13 Rammal R, Tannous C, Breton P, et al. Flicker $1/f$ noise in percolation networks: a new hierarchy of exponents. *Phys Rev Lett*, 1985, 54:1 718
- 14 Rammal R, Tannous C, Tremblay A M S. $1/f$ noise in random resistor networks: fractal and percolation systems. *Phys Rev*, 1985, A31:2 662
- 15 Yagil Y, Deutscher G. Third-harmonic generation in semicontinuous metal films. *Phys Rev*, 1992, B46:16 115
- 16 Yagil Y, Deutscher G, Bergman D J. Electrical breakdown measurements of semicontinuous metal films. *Phys Rev Lett*, 1992, 69:1 423