

Р.І. Бігун., З.В. Стасюк

Електронна структура ультратонких плівок міді та золота

*Львівський національний університет імені Івана Франка
вул. Драгоманова, 50, Львів, 79005.*

Електронну структуру тонких плівок міді та золота розраховано в рамках теорії функціоналу густини. Отримано розмірні залежності енергії Фермі E_F та відносного відхилення сталої ґратки δ досліджуваних плівок металів. Показано, що параметри електронної структури електрично суцільних плівок благородних металів товщиною більшою за 2-3 нм достатньо близькі до відповідних параметрів масивного металу.

Ключові слова: тонкі металеві плівки благородних металів, електронна структура, теорія функціоналу густини, енергія Фермі, постійна ґратки.

Стаття поступила до редакції 16.04.2008; прийнята до друку 15.03.2009.

Вступ

Електричні властивості тонких плівок металів, товщини яких сумірні середній довжині вільного пробігу електронів достатньо добре описують теорії класичного розмірного ефекту [1,2]. В тонкій плівці металу поверхня виступає в ролі додаткового центра розсіювання і дає відповідний внесок у сумарний опір плівки (правило Матіссена). Коли товщина плівки стає співмірною або близькою до довжини хвилі Фермі λ_F вільного електрона, на явища переносу починають впливати додаткові квантово-інтерференційні ефекти. Фішер [3] при дослідженні розмірних залежностей опору плівок платини виявив осциляції провідності із зміною товщини плівки металу. Їх виникнення яких пов'язують з квантуванням електронних станів в напрямку зміни товщини плівки d . Аналогічні осциляційні зміни, провідності при зростанні товщини в плівках золота, осаджених на поверхню кремнію, спостерігали Ялуховський М. та Бауер Е. [4]. В роботах Тесановіча З. [5,6] на основі квантово-механічного підходу до аналізу впливу поверхневих шорсткостей на транспортні явища в металевих плівках, було виявлено залежність умов квантового переносу від амплітуди поверхневих шорсткостей. Результати теорії успішно використано для пояснення розмірних залежностей питомого опору тонких плівок CoSi_2 . Було показано, що питома провідність σ має набагато сильнішу залежність від товщини ($\sigma \sim d^2$) тонких плівок, на відміну від поведінки товстих плівок ($\sigma \sim d$). Отримані результати були узагальнені в роботах Фішмана Д. та Цалецького Д. [7-9], в яких показано, що в режимі квантового переносу заряду залишкова провідність проявляє степеневу

залежність від товщини плівки d : $\sigma \sim d^\alpha$ (де $2,1 < \alpha < 6$). Показник $\alpha = 2,1$ відповідає числу каналів провідності $N \gg 1$, що характеризує металевий перенос заряду у плівці, а $\alpha = 6$ відповідає $N = 1$ та характеризує напівпровідникові та діелектричні плівки. Вище проаналізовані експериментальні роботи та теорії пояснення явищ переносу заряду базуються на припущенні, що електронна структура досліджуваного зразка ідентична електронній структурі масивного зразка металу, в той час як поверхня зразка та її стан є основним чинником зміни електронного енергетичного спектру досліджуваних плівок. Тому цікавим є розрахунок зонної енергетичної структури дуже тонких плівок металів з метою виявлення умов при яких електронний спектр плівкового зразка може вважатись ідентичним електронній структурі масивного металу.

Дослідженню зонної структури вільних плівок металів присвячено деякі роботи. Результати дослідження електронної структури вільних плівок літію товщиною 1-5 моношарів представлено в роботі [10], в якій показано існування лінійної залежності між числом каналів провідності та кількістю моношарів у плівці літію. Відзначено, що електронна структура вільних плівок літію товщиною більшою за 5 атомних шарів близька до електронної структури масивного зразка металу. Подібні висновки було зроблено для плівок $\text{Al}(111)$ товщиною більшою 6 атомних шарів [11]. При експериментальному дослідженні провідності плівок міді та заліза товщиною від 1 до 32 атомних в [12-14] показано, що відхилення параметрів електронної структури плівки міді в області товщин $d > 5$ атомних

шарів є незначним в порівнянні з відповідними параметрами масивних зразків металів.

В даній роботі в рамках теорії функціоналу густини досліджено поведінку електронної структури вільних плівок міді та золота із зростанням їх товщини та встановлено критичну товщину, вище якої енергетичний спектр плівки стає близьким до зонного енергетичного спектру масивного зразка.

I. Методика розрахунку

Розрахунок зонної структури плівок досліджуваних металів на основі наближення повнопотенціальних лінеаризованих приєднаних плоских хвиль (FLAPW) в рамках теорії функціоналу густини [15,16]. Блюгелем С. та Бігмасром Д. [15] проведено детальний аналіз даної теорії, зокрема особливості її використання при дослідженні тонких плівок та поверхні твердого тіла. В [15] розроблено програмний пакет FLEUR на базі теорії функціоналу густини, який дозволяє проводити розрахунки зонної структури низькорозмірних систем та тонких плівок. Ab initio розрахунок зонної структури плівок проведено в рамках теорії функціоналу густини з використанням узагальненого градієнтного наближення запропонованого у роботі [17]. При розрахунку хвильових функцій, покладено наступні значення параметрів: $k_{MAX} = 4.0 \text{ a.o}^{-1}$ ($1 \text{ a.o.} = 0,5291772108 \text{ \AA}$) та $G_{MAX} = 13,5 \text{ a.o}^{-1}$. MT радіус для плівок міді та золота вибрано відповідно $R_{MT} = 2,18 \text{ a.o}^{-1}$ та $R_{MT} = 3,12 \text{ a.o}^{-1}$. Момент імпульсу для розрахунку густини станів в середині MT сфери обмежували на $l_{max} = 8$. При інтегруванні в k -просторі по двомірній зоні Брілюєна для елементарної комірки обмеженої двома поверхнями було вибрано 15 спеціальних k -точок, кількість яких була достатньою для досягнення збіжності за 17 ітераційних циклів. Структура плівки вважалась зреласованою, такою що досягнула свого мінімального значення енергії, якщо сумарна величина сил, що діють на атом є меншою за 1 mhtr/a.o ($1 \text{ htr} = 2Ry = 27,2113845(23) \text{ eV}$). Для досягнення плівкою металу даної товщини найменшого значення енергії, системі дозволялось здійснювати релаксуючі зміщення у всіх напрямках координатних осей OX, OY, OZ..

II. Обговорення результатів

Розрахунок електронної енергетичної структури вільних металевих плівок, виконаний при трактуванні плівки в якості одномірного потенціальної ями шириною рівною товщині плівки, дає осциляційні залежності основних параметрів від товщини шару [7-9]. Для ілюстрації сказаного на Рис. 1 наведено відносні зміни енергії Фермі плівки міді при зміні товщини шару. З рисунка видно, що в діапазоні товщин в межах 1-10 атомних шарів наявні осциляції E_F і лише при більших товщинах плівок енергія Фермі прямує до величин близьких енергії

Фермі масивного металу. Розрахунок електронної будови плівок одновалентних металів, виконаний з

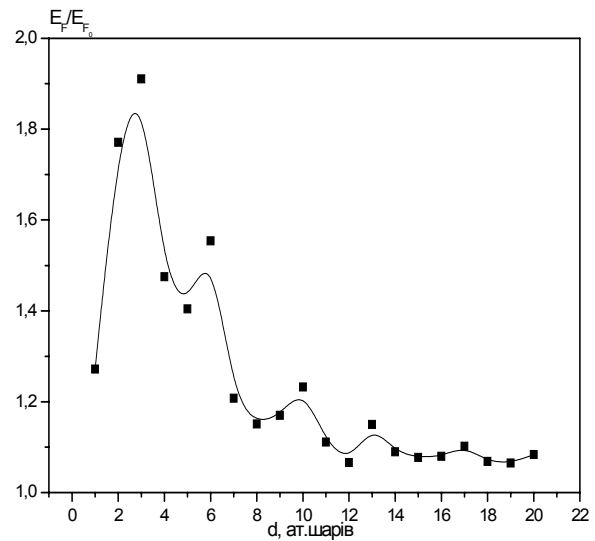


Рис. 1. Відносні зміни енергії Фермі у плівці металу при зміні товщини плівки. E_{F_0} – енергія Фермі масивного металу.

використанням моделі [15-17] дає більш реальні результати. На рис. 2 наведено результати розрахунку з використанням підходів [15-17] зміни величини енергії Фермі E_F та зміни періоду ґратки $\delta a = a - a_0$ плівок міді та золота. З рисунка видно, що найбільші відхилення періоду ґратки та значень енергії Фермі спостерігаються в області малих товщин плівки металу (1-3 атомних шарів), а при товщинах 5-6 атомних шарів амплітуда осциляцій зменшується.

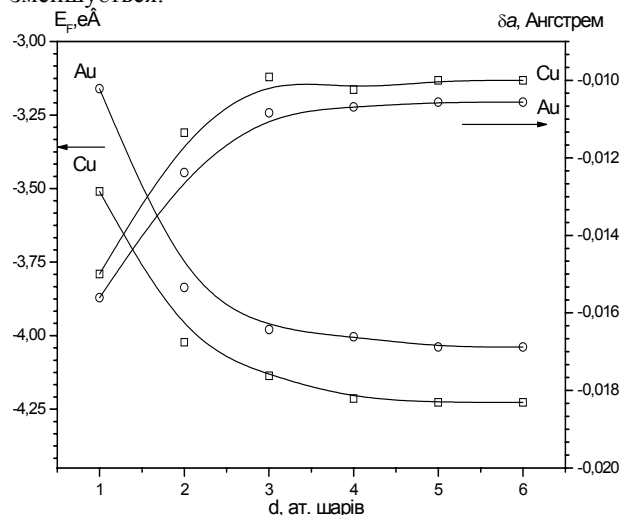


Рис. 2. Залежність енергії Фермі E_F та відносного відхилення сталої ґратки δa плівок міді та золота від товщини плівки.

Розрахована величина енергії Фермі досягає величин близьких енергії Фермі масивного металу, а розрахований період кристалічної ґратки в межах точності розрахунку співпадає з періодом ґратки масивного металу. Отриманий результат дозволяє

стверджувати, що параметри електронної структури суцільних металевих плівок товщиною біля 6 атомних шарів (товщина шару 2-3 нм) близькі до аналогічних параметрів масивного металу. Тому при трактуванні результатів експериментального дослідження електричних властивостей плівок ультратонких суцільних плівок металів можна користуватись виразами теорії [5-9]. Зауважимо, що таке трактування було здійснене в експериментальних роботах [18-19].

структури ультратонких вільних суцільних плівок міді і золота отримано розмірні залежності цих параметрів.

Показано, що параметри електронної структури суцільних плівок благородних металів при товщині плівки 2-3 нм достатньо близькі до відповідних параметрів масивного металу.

Висновки

1. При розрахунку параметрів електронної

Стасюк З.В. – доктор фізико-математичних наук, професор, завідувач кафедри фізичної і біомедичної електроніки,
Бігун Р.І. – кандидат фізико-математичних наук, асистент кафедри фізичної і біомедичної електроніки, факультету електроніки.

- [1] M.A. Angadi. Review. Some transport properties of transition metal films // Journ. Matter. Sci.- 1985.- Vol.2, №3.- P.761-796.
- [2] Z. V. Stasyuk. Quasiclassical models of electron transport phenomena in thin metal films // Journ. Phys. Studies.- 1999.- Vol.3, №1.- P.102-106.
- [3] G. Fisher., H. Hoffman. Oscillation of the electrical conductivity with film thickness in very thin platinum films // Sol. Sta. Com.- 1980.- Vol.35.- P. 793-796.
- [4] M. Jalochowski., E. Bauer. Resistance oscillations crossover in ultrathin gold films // Phys. Rev. B.- 1988.- Vol.37, № 15.- P.8622-8623.
- [5] Tesanovic Z., Jaric M., Maekawa S. Quantum transport and surface scattering // Phys. Rev. B.- 1986.- Vol.57, № 21.- P.2760-2763.
- [6] Tesanovic Z. Surface scattering effects in quantum transport // J. Phys. C: Solid State Phys.- 1987.- Vol.20, № 6.- P.L829-L834.
- [7] Fishman G., Calecki D. Surface-induced resistivity of ultrathin metallic films: a limit law // Phys. Rev. Letters.- 1989.- Vol.62, №11.- P.1302-1305.
- [8] Fishman G., Calecki D. Influence of surface roughness on the conductivity of metallic and semiconducting quasi-two-dimensional structures // Phys. Rev. B.- 1990.- Vol.43, № 14.- P.11581-11586.
- [9] Calecki D. Galvanomagnetic phenomena and surface roughness in thin metallic films // Phys. Rev. B.- 1990.- Vol.42, № 11.- P.6906-6915.
- [10] Boettger J. C., Trickey S. B. Quantum size effects in equilibrium lithium ultrathin layers // Phys. Rev. B.- 1992.- V.45, №3.- P. 1363-1372.
- [11] 11. Boettger J.C. Persistent quantum size effect in aluminium films up to twelve atom thick // Phys. Rev. B.- 1996.- Vol.53, №19.- P. 13133-13137.
- [12] 12. F. Di. Tolla., A. Dal Corso., J. A Torres., E. Tosatti. Electron properties of ultra-thin aluminum nanowires // Surf. Sci.- 2000.- V.454-456.- P.947-951.
- [13] 13. Fedorov D., Zahn P., Mertig I. Size effects and conductivity of ultrathin Cu films // Thin Solid Films.- 2005.- Vol.473.- P.346-350.
- [14] 14. Fedorov D V., Zahn P., Mertig I. Manifestation of quantum confinement in transport properties of ultrathin metallic films // Thin Solid Films.- 2007.- V.515, №17.- P.6921-6926.
- [15] 15. Blügel S., Bihlmayer G. Full-Potential linearized augmented planewave method // Computational Nanoscience.- 2006.- V.31.- P. 85-129.
- [16] 16. Jones R.O., Gunnarson O. Density functional formalism, its applications and prospects // Rev. Mod. Phys.- 1989.- V.61.- P.689-695.
- [17] 17. Jones R.O. Introduction to density functional theory and exchange-correlation energy functional // Computational Nanoscience.- 2006.- V.31.- P. 45-70.
- [18] 18. Р.І. Бігун, З.В. Стасюк. Перехід від квантового до класичного переносу заряду в тонких плівках міді // Фізика і хімія твердого тіла. - 2005. - Т.6, №3. - С. 414-417.
- [19] 19. З.В. Стасюк, Р.І. Бігун. Балістичний перенос заряду в ультратонких плівках міді // Металофізика і новітні технології.- 2007.- Т.29, №6.- С.781-785.

R.I. Bihun, Z.V. Stasyuk

Electron structure of Ultrathin Copper and Gold Films

*'Ivan Franko' Lviv National University
50, Dragomanova Str., Lviv, 79005, Ukraine*

Electron structure of ultra thin copper and gold films in the framework of density functional theory (DFT) was calculated. Fermi energy and relative change of crystal lattice constant size dependences were obtained. It was shown, that electron structure parameters of copper and gold films with thickness more 2-3 nm are close to bulk metals.

Key words: thin metal films, electron structure, density functional theory, Fermi energy, constant of crystal lattice.