

Экспериментальные исследования тепловых свойств тонких пленок зондовым методом периодического нагрева

© С.Т. Давитадзе, С.Н. Кравчун, Б.А. Струков, Б.М. Гольцман*, В.В. Леманов*, С.Г. Шульман*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 21 января 1997 г.)

Проведены экспериментальные исследования тепловых свойств тонких пленок SrTiO₃ с помощью регистрации амплитуды и фазы колебаний температуры плоского зонда при тепловом потоке, перпендикулярном плоскости пленки. Представлены результаты измерений теплоемкости и теплопроводности подложки из лейкосапфира и теплопроводности пленки SrTiO₃ толщиной 2 мкм.

Для исследования тепловых свойств тонких диэлектрических пленок перспективно использование зондового метода периодического нагрева, основанного на зависимости амплитуды и фазы колебаний температуры одномерных и двумерных металлических проводников (зондов), через которые пропускается переменный ток, от тепловых свойств образца, находящегося в контакте с зондами [1].

Решение задачи теплопроводности для плоских и цилиндрических температурных волн в системе зонд–пленка–подложка показывает, что пульсации температуры экспоненциально спадают при удалении от поверхности зонд–пленка, практически затухая на расстояниях порядка длины температурной волны. Используя достаточно высокие частоты нагрева (0.2–5 kHz), можно добиться выполнения условия, при котором длина затухания температурной волны сопоставима с толщиной пленки. При этом амплитуда и фаза колебаний температуры зонда будут определяться свойствами пленки. Решения задачи, соответствующие условиям эксперимента в данной работе, представлены в [1]. В работе [1] проанализированы два варианта определения тепловых параметров пленок: 1) определение теплоемкости и теплопроводности из измерений комплексных амплитуд колебаний температуры зонда на двух частотах, 2) определение теплоемкости либо теплопроводности (в зависимости от соотношения тепловых свойств подложки и пленки) из измерений на одной частоте отношения комплексных амплитуд колебаний температуры идентичных зондов на пленке и на подложке. В настоящей работе эксперимент проводился по второму варианту.

1. Методика эксперимента

Основной электрической схемой установки, позволяющей реализовать зондовый метод периодического нагрева, является мост переменного тока, состоящий из трех ветвей (рис. 1). В ветвь А включены зонд Z₁, находящийся в контакте с образцом, магазины сопротивлений R₁ и R₃ и емкость C₁. В ветвь В включены сопротивления R₂, R'₃ и зонд Z₂, находящийся в вакуумированном баллоне,

фаза колебаний температуры которого отстает от фазы колебаний мощности на π/2, что используется для калибровки при измерениях фазы φ колебаний температуры зонда Z₁. Ветвь С, состоящая из сопротивлений R₄ и R₅ по 100 Ω и емкости C₂, обеспечивает возможность балансировки моста на основной частоте ω.

При питании моста напряжением U cos ωt температура зонда Z₁ пульсирует с частотой 2ω (частотой колебания мощности), вызывая пульсации его сопротивления R = R₀[1 + αΘ cos(2ωt - φ)], что делает схему электрически нелинейной. Здесь R₀ — среднее значение сопротивления зонда, α = (1/R)(dR/dT) — температурный коэффициент сопротивления, Θ — амплитуда пульсаций температуры. Вследствие нелинейности схемы в ней возникают напряжения комбинационных частот 2ω ± ω, регистрируемые на диагоналях моста. Величина напряжения утроенной частоты U_{3ω} на диагонали моста AC пропорциональна Θ, а фаза равна фазе колебаний температуры [2]

$$U_{3\omega} = \left\{ (UR_0R_2\alpha\Theta) / (2(R_0 + R_1 + R_2)^2) \right\} \cos(2\omega - \varphi). \quad (1)$$

Мост балансируется на основной частоте ω, благодаря чему значительно снижается уровень сигнала частоты ω, проникающего на вход усилителя сигнала частоты 3ω.

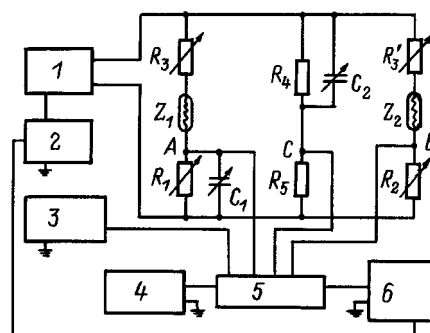


Рис. 1. Электрическая схема установки. 1 — генератор сигнала на частоте ω, 2 — преобразователь частот ω → 3ω, 3 — схема калибровки, 4 — усилитель сигнала на частоте ω, 5 — коммутатор, 6 — усилитель сигнала на частоте 3ω.

Баланс контролируется нуль-индикатором. Условие баланса используется для вычисления R_0 . Непосредственное измерение сигнала 3ω , который может иметь величину от единиц микровольт до единиц милливольт, с высокой точностью невозможно. В связи с этим используются усилитель с синхронным детектором (УПИ-2), который обеспечивает измерения и амплитуды, и фазы сигнала, а также схема калибровки усилителя. Опорный сигнал для синхронного детектора поступает с утроителя частоты, схема которого описана в [3].

2. Результаты эксперимента и их обсуждение

Исследованные нами образцы представляли собой двух- и трехслойные системы, состоящие из зонда на подложке или зонда на пленке SrTiO_3 толщиной $b_1 = 2 \mu\text{m}$ (здесь и далее индексы 1 и 2 относятся к пленке и подложке соответственно). Исследование подложки является необходимым этапом в исследовании пленки, поскольку значения тепловых параметров подложки используются при расчете тепловых параметров пленки. В качестве подложек использовались монокристаллы лейкосапфира толщиной $h_2 = 0.4\text{--}2 \text{ mm}$. Зонды представляли собой полоски металлической (Ni, Co, Pt) пленки шириной $2l = 0.3 \text{ mm}$, длиной 4–8 mm и толщиной $0.1 \mu\text{m}$, напыленные методом термического или катодного распыления непосредственно на полированную поверхность подложки либо на пленку SrTiO_3 на подложке. Оптимальными оказались зонды сопротивлением 300–100 Ω . Пленки SrTiO_3 получались методом высокочастотного магнетронного распыления с последу-

Тепловые свойства монокристалла лейкосапфира при 293 К

$\omega/2\pi$, Hz	λ , W/m · K	$c\rho$, $10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$	a , $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$	b , $10^3 \text{ W} \cdot \text{s}^{1/2}/\text{m}^2 \cdot \text{K}$
25	47.0	3.30	1.43	12.6
70	46.7	3.12	1.50	12.03
100	48.7	3.20	1.52	12.4
250	46.2	3.08	1.50	11.96
500	46.5	3.10	1.51	11.95
2000	47.0	3.05	1.48	12.0

Примечание. λ — теплопроводность, $c\rho$ — теплоемкость, a — температуропроводность, b — тепловая активность.

ющим высокотемпературным отжигом, их кристаллическая структура была достаточно совершенной [4].

Использование в качестве зонда напыленной на подложку без пленки металлической полоски позволяет в принципе определить комплекс тепловых свойств подложки. Точность такого определения зависит от величины δ , равной отношению ширины зонда $2l$ к глубине проникновения теплового возмущения в образец $(a/\omega)^{1/2}$. Точность определения тепловых параметров подложки: теплопроводности λ , объемной теплоемкости $c\rho$ (ρ — плотность), температуропроводности $a = \lambda/c\rho$ и тепловой активности $b = (\lambda/c\rho)^{1/2}$ — можно охарактеризовать коэффициентами чувствительности $K_{y,x} = (dy/y)/(dx/x)$ ($y = \lambda, c\rho, a, b; x = \Theta, \varphi$), показывающими, во сколько раз относительная погрешность определения тепловых параметров по результатам измерений Θ и φ отличается от относительной погрешности самих измерений. Величины $K_{y,x}$ для случая зонда на изотропной подложке были определены в работе [1] из соотношения (2) в зависимости от величины δ . Эти зависимости приведены на рис. 2. Коэффициент $K_{a,\Theta} = 0$, так как температуропроводность определяется только фазой колебаний. Очевидно, что для корректного определения какой-либо из величин y необходимо, чтобы каждая из пары соответствующих величин $K_{y,\Theta}$ и $K_{y,\varphi}$ была достаточно малой (менее 10). Тогда из рис. 2 следует, что в области $\delta \ll 1$ (узкий зонд) удовлетворительно может быть определена только теплопроводность λ . В области $\delta \gg 1$ (широкий зонд) возможно измерение только тепловой активности b . В окрестности значений δ около единицы ($0.2 < \delta < 5$) возможно измерение всего комплекса тепловых параметров.

Для зонда шириной 0.3 mm на образце лейкосапфира величине $\delta = 5$ соответствует частота $\omega/2\pi = 660 \text{ Hz}$. С другой стороны, продвижение в область низких частот ограничено толщиной подложки, которая перестает сказываться заметным образом (на уровне 1%) при условии $z_2 > 2$, где z_2 — отношение толщины подложки к глубине проникновения в нее теплового возмущения; $z_2 = h_2(\omega/a_2)^{1/2}$, где a_2 — температуропроводность лейкосапфира. Результаты определения тепловых характеристик кристалла лейкосапфира при температуре 293 К на разных частотах представлены в таблице. Расчет этих

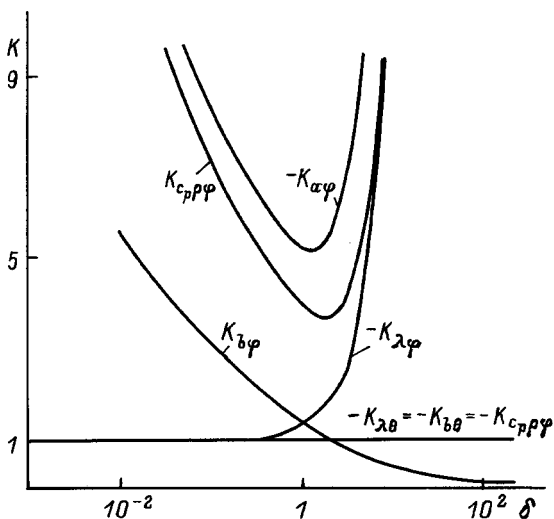


Рис. 2. Зависимость коэффициентов чувствительности при измерениях амплитуды и фазы колебаний температуры зонда от параметра $\delta = 2l(\omega/a)^{1/2}$, где $2l$ — ширина зонда. Первый индекс у коэффициента K обозначает определяемый параметр, второй индекс относится к измеряемой величине: амплитуде Θ или фазе φ .

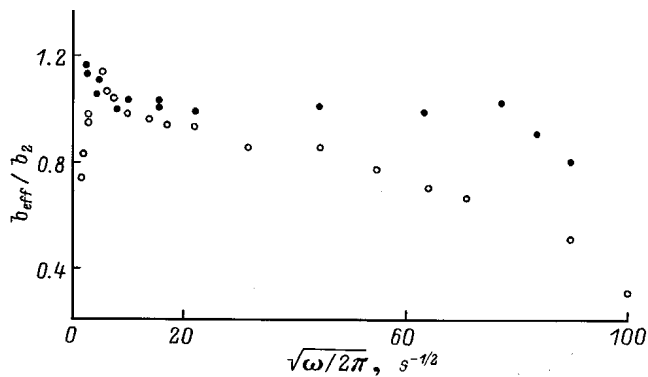


Рис. 3. Зависимость величины $b_{\text{эфф}}/b_2$ от $(\omega/2\pi)^{1/2}$ для образца лейкосапфира ($h_2 = 0.6 \text{ mm}$) без пленки (темные точки) и с пленкой SrTiO_3 ($h_1 = 2 \text{ }\mu\text{m}$, $h_2 = 0.4 \text{ mm}$) (светлые точки).

характеристик проводился с помощью соотношения (2) из работы [1] на основе измеренных значений Θ и φ . Погрешность результатов для частот, соответствующих значениям δ около единицы, составляет 2–5%. Полученное значение теплоемкости хорошо согласуется с литературными данными, например, $3.08 \cdot 10^6$ [5] и $3.1 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$ [6]. Величина теплопроводности также близка к литературным данным: 47 [7], 46 [8] и $40 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ [9].

Как отмечалось выше, для определения тепловых параметров пленки SrTiO_3 в настоящей работе сопоставлялись комплексные амплитуды колебаний температуры зондов, расположенных на пленке, напыленной на подложку, и непосредственно на подложке.

На рис. 3 представлены экспериментальные данные для этих двух случаев. Результаты даны в форме зависимости отношения $b_{\text{эфф}}/b_2$ от $(\omega/2\pi)^{1/2}$. Здесь $b_{\text{эфф}}$ — формальное значение тепловой активности, которое получится, если применить соотношение для комплексной амплитуды температуры зонда на полубесконечной подложке (см. формулу (7) в [1]) при вычислении b для системы зонд–подложка конечной толщины (темные точки на рис. 3) и для системы зонд–пленка–подложка конечной толщины (светлые точки на рис. 3). Отклонение $b_{\text{эфф}}/b_2$ от единицы демонстрирует влияние ограниченной толщины подложки (при $(\omega/2\pi)^{1/2} < 5 \text{ Hz}^{1/2}$ для образца без пленки и при $(\omega/2\pi)^{1/2} < 10 \text{ Hz}^{1/2}$ для образца с пленкой) и влияние пленки SrTiO_3 (при $(\omega/2\pi)^{1/2} > 9 \text{ Hz}^{1/2}$). Влияние пленки проявляется в уменьшении $b_{\text{эфф}}$, так как тепловая активность пленки SrTiO_3 меньше тепловой активности лейкосапфира. В области частот, где глубина проникновения температурной волны в образец сопоставима с толщиной подложки, наблюдается максимум $b_{\text{эфф}}$, обусловленный спецификой распространения температурной волны в образце. Этот эффект описывается с помощью соотношения (7) из работы [1]. На частотах $(\omega/2\pi)^{1/2} > 80 \text{ Hz}^{1/2}$ наблюдается значительное уменьшение $b_{\text{эфф}}$ (для обоих образцов), для

выяснения природы которого требуются дополнительные исследования.

Отношение комплексных амплитуд колебания температуры $\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2$ представлено в [1] в виде зависимости от z_1 и z_2 . Если $z_1 \ll 1$ и $z_2 = \infty$ (тонкая в тепловом отношении пленка и полубесконечная подложка, что соответствует нашему случаю), то можно ограничиться линейным приближением в зависимости $\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2$ от z_1 (формула (8) в [1])

$$\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2 = 1 + (1 + i)(b_2/b_1 - b_1/b_2)z_1. \quad (2)$$

Соотношение (2) можно переписать в следующем виде:

$$\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2 = 1 + (1 + i)(b_2/\lambda_1 - c_1\rho_1/b_2)h_1(\omega)^{1/2}. \quad (3)$$

Формула (3) не позволяет в общем случае определить отдельно λ_1 и $c_1\rho_1$, однако если одно из двух слагаемых b_2/λ_1 и $c_1\rho_1/b_2$ в правой части (3) много больше другого, то можно найти тепловой параметр пленки, входящий в большее слагаемое. При этом меньшее слагаемое учитывается в виде поправки, в которой использовано известное значение входящего в него теплового параметра. В нашем случае $b_2/\lambda_1 = 10c_1\rho_1/b_2$, т.е. можно определить теплопроводность пленки, используя литературные данные [10] для $c_1\rho_1 = 2.73 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$. В результате для пленки SrTiO_3 получаем $\lambda_1 = 10 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ при температуре 293 К, что согласуется с литературными данными 12 [11] и $13 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ [12] для объемного титаната стронция.

Для отдельного определения теплопроводности и теплоемкости пленки следует учесть нелинейную зависимость $\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2$ от z_1 . В нашем эксперименте $b_2 \gg b_1$, $z_1 < 0.3$, и оказалось, что определить теплоемкость и теплопроводность пленки с хорошей точностью невозможно, так как в этой области нелинейность $\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2(z)$ проявляется слабо. Ситуацию можно улучшить, увеличив частоту нагрева или толщину пленки. Другая возможность — использование подложки с тепловой активностью $b_2 \ll b_1$, в этом случае нелинейность $\tilde{\Theta}_1/\tilde{\Theta}_2(z_1)$ сильно сказывается уже при малых z_1 .

Таким образом, экспериментальные исследования, проведенные в данной работе, показали возможность определения тепловых характеристик тонких диэлектрических пленок методом периодического нагрева. Показано также, что теория метода, развитая в [1], адекватно описывает температурные колебания в образце для частот нагрева $\omega/2\pi < 6000 \text{ Hz}$. На основе проведенных исследований можно сделать вывод о возможности использования данного метода для изучения фазовых переходов в сегнетоэлектрических тонких пленках, что и будет являться следующим этапом наших исследований.

Авторы выражают благодарность С.А.Тараскину за помощь в проведении эксперимента.

В МГУ работа выполнялась при финансовой поддержке программ "Университеты России" и Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-02-17723а).

Список литературы

- [1] С.Н. Кравчун, С.Т. Давитадзе, Н.С. Мизина, Б.А. Струков. ФТТ **39**, 4, 762 (1997).
- [2] Л.П. Филиппов, С.Н. Кравчун, С.Т. Тлеубаев. Измер. техника **12**, 28 (1985).
- [3] У. Хоровиц, П. Хилл. Искусство схемотехники Мир, М. (1983).
- [4] Б.М. Гольцман, Н.В. Зайцева, Ю.Л. Крецер, В.В. Леманов, Т.А. Шаплыгина. ФТТ **37**, 12, 3723 (1995).
- [5] G.T. Furukawa, T.B. Douglas, W.G. Saba, A.C. Victor. J. Res. NBS **A69**, 423 (1965).
- [6] И. Хатта. Приборы для научных исследований **3**, 18 (1979).
- [7] M.G. Holland. J. Appl. Phys. **31**, 2156 (1960).
- [8] W.D. Kingery. J. Am. Cer. Soc. **42**, 12 (1959).
- [9] A.M. de Coer, B. Dregfys. Phys. Stat. Sol. **22**, 77 (1967).
- [10] Б.А. Струков, Т.Л. Скоморохова, М.В. Рождественская. Кристаллография **17**, 1256 (1972).
- [11] G.V. Childs, L.I. Erics, R.W. Powel. NBS (US) Monogr. 131 (1973).
- [12] E.F. Steigmeier. Phys. Rev. **168**, 523 (1968).