

01;11

Нелинейные свойства двухфазных композитных пленок во фрактальном режиме

© А. Дзедзиц,¹ А.А. Снарский,² С.И. Буда²¹ Вроцлавский политехнический институт, Вроцлав, Польша² Национальный технический университет Украины, 256057 Киев, Украина

(Поступило в Редакцию 10 марта 1998 г. В окончательной редакции 26 июля 1999 г.)

Рассмотрены промежуточные (между трех- и двумерными) неоднородные двухфазные проводящие пленки, размер которых вдоль пленки больше корреляционной длины, а поперек — меньше. В рамках перколяционного подхода получены зависимости сопротивления в слабонелинейном случае от концентрации хорошо проводящих частиц, их размеров и толщины пленки.

Введение

Современная микроэлектроника широко использует пленочные структуры, приготовленные по различным технологиям. Одной из таких структур являются толсто пленочные резисторы (ТПР) (см. обзор литературы в [1,2]). Присутствие кубической нелинейности в керметных и полимерных ТПР, о которой и пойдет речь далее, наблюдалась, например, в [3,4] (рис. 1).

Типичные размеры ТПР — поперек пленки (толщина) $H = 20 - 25 \mu\text{m}$ и вдоль $L = 1 - 5 \text{mm}$. Размер частиц проводящей фазы $0.1 - 1 \mu\text{m}$, размер частиц стекла $\sim 0.7 - 7 \mu\text{m}$, а расстояние между зернами проводящей фазы около $1-2 \text{nm}$ (рис. 2). При протекании тока в среднем вдоль подложки локальные токи, как следует из вышеприведенных размеров, будут иметь составляющую, перпендикулярную к подложке. Следовательно, ТПР не являются в отношении протекания тока двумерной ($2D$) структурой. Это также, вообще говоря, и не $3D$ -структура. Для последнего требуется, чтобы $H \gg \xi$ (ξ — корреляционная длина). Таким образом, задача определения проводимости ТПР принадлежит к промежуточному классу, находящемуся между $2D$ - и $3D$ -задачами; будем далее для краткости говорить о $2.5D$ -задаче.

При теоретическом описании экспериментальных исследований по ТПР и другим композитным системам часто используется стандартная двухфазная перколяционная модель, предполагающая универсальное поведение удельного эффективного сопротивления ρ_e в зависимости от концентрации p хорошо проводящей фазы ρ_1 . Например, при $p > p_c$ (порога протекания), $\rho_e \sim \rho_1 (p - p_c)^{-t}$, где t — универсальный критический индекс проводимости равный для $3D$ -системы $t_3 \approx 2$. Во многих случаях такое перколяционное описание хорошо согласуется с экспериментом. Например, в [5,6] получены значения t от 1.7 ± 0.2 до 2.3 ± 0.4 . При этом сопротивление пленки на квадрат менялось в 10^6 раз. В то же время критические индексы, вычисленные по данным [7], имеют значения 2.65, 2.87 и даже 2.99. Похожие значения t (между 2.26 и 2.87) получены для

полимерных толсто пленочных резисторов, содержащих высокоструктурную сажу [8]. Но, например, в работе [9] значения t достигают 20, что противоречит гипотезе об универсальности критических индексов. Представляется, что теория перколяции двухфазных систем приложима не к любым ТПР (не в любых обстоятельствах, температурах, способах приготовления и т.п.). Тем не менее во многих случаях перколяционный подход адекватен, о чем говорит не только согласие с критическим поведением проводимости, но и с данными по измерению $1/f$ шума и генерации третьей гармоники (см., например, [10–13]).

Изучению линейной проводимости в ТПР, находящихся в $2.5D$ -режиме, посвящены работы [14–18]. Основная идея теоретического описания проводимости неоднородной пленки (рис. 2) с $H < \xi_3$ и $L \gg \xi_3$ (ξ_3 — корреляционная длина $3D$ -системы) заключается в том, что пленку представляют состоящей из кубиков $H \times H \times H$. В простейшем приближении за счет флуктуаций структуры кубик находится во фрактальном режиме, часть кубиков включает в себя проводящий кластер, т.е. хорошо проводит, часть — нет, т.е. проводит плохо. ТПР как бы

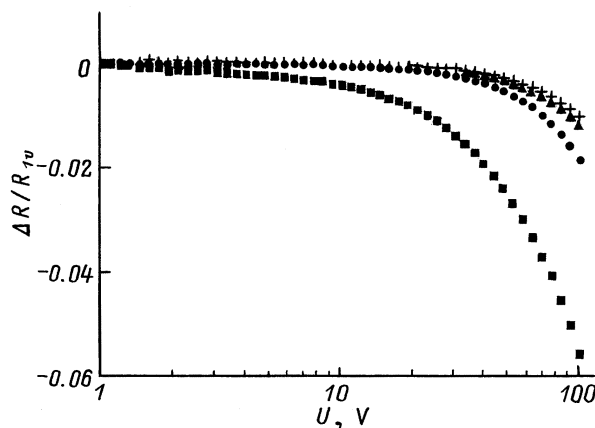


Рис. 1. Зависимость сопротивления полимерных толсто пленочных резисторов типа TU-10 К-5 от напряжения при температурах сушки: ■ — 150, ● — 190, ▲ — 230, + — 270°C; $R = R(U) - R_{U=1V}$.

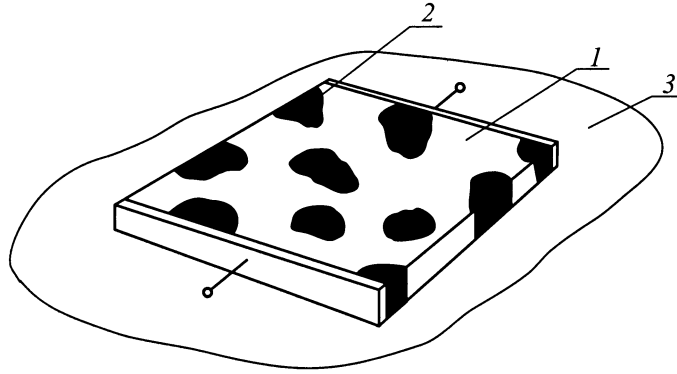


Рис. 2. Типичные геометрические характеристики толстопленочных резисторов $a_0 \sim 0.1 - 1 \mu\text{m}$, $b_0 \sim 0.7 - 7 \mu\text{m}$, $H \sim 20 - 25 \mu\text{m}$; 1 — толстопленочный резистор, 2 — хорошо проводящие включения, 3 — непроводящая подложка.

представляют собой 2D-двухфазную систему, состоящую из таких хорошо и плохо проводящих $H \times H \times H$ элементов. В таком приближении в ТПР применимо стандартное 2D описание. Например, выше порога протекания ($p > p_c$) сопротивление пленки толщиной a_0 равно $R = r_1((p - p_{c2})/p_{c2})^{-t_2}$, где $r_1 = \rho_1 a_0 / a_0^2$, ρ_1 — удельное сопротивление хорошо проводящей фазы ($\rho_1 \ll \rho_2$), a_0 — характерный минимальный размер, в случае сеточных задач — размер связи.

Вычисление сопротивления нелинейной пленки

Моделирование 2.5D-системы, как 2D, состоит в том, что вместо r_1 необходимо брать сопротивление кубика размера $H \times H \times H$, включающего в себя протекательную структуру — $r_1(H)$. Тогда для 2.5D-пленки

$$R_{2.5} = r_1(H) \left(\frac{P_H - p_{c2}}{p_{c2}} \right)^{-t_2}, \quad (1)$$

где P_H — концентрация кубиков $H \times H \times H$ с $r_1(H)$.

Таким образом, для вычисления сопротивления пленки в 2.5D-режиме необходимо знать зависимость $r_1(H)$ от H и вероятность проводящей реализации. В данной работе для определения этих величин мы будем использовать подход, предложенный в [19], который легко обобщается на нелинейный случай. Согласно [19], $r(H)$ во фрактальной области ($H < \xi$) определяется по схеме перколяционной структуры в области размазки [20,13], где роль величины области размазки играет теперь $\tau_H = (H/a_0)^{-1/\nu_3}$, а ν_3 — критический индекс корреляционной длины.

Согласно схеме перколяционной структуры, в области размазки с вероятностью P_H можно встретить структуру, связанную с протеканием выше порога протекания — мостик длиной N_1/a_0 и с вероятностью $1 - P_H$ — прослойку (N_2 параллельно соединенных плохо проводящих связей). Сопротивление мостика и прослойки $R_1 = r_1 N_1$, $R_2 = r_2 / N_2$, где $N_i = |\Delta|^{-\alpha_i}$, Δ — величина области

размазки, $\alpha_1 = t - \nu(d - 2)$, $\alpha_2 = q + \nu(d - 2)$, t и q — критические индексы выше и ниже порога соответственно.

Подставляя в R_1 и R_2 вместо Δ , например, τ_H для хорошо проводящей реализации получаем [21]

$$r_1(H) = \rho_1 (H/a_0)^{(t_3 - \nu_3)/\nu_3} / a_0 \quad (2)$$

и для плохо проводящей

$$r_2(H) = \rho_2 (H/a_0)^{-(q_3 + \nu_3)/\nu_3} / a_0. \quad (3)$$

В (2) пренебрегается шунтированием второй фазы, а в (3) — падением напряжения на первой фазе. Вероятность встретить реализацию с $r_1(H)$ и $r_2(H)$ равна соответственно [19]

$$P_H = \frac{\tau_H + \tau_3}{2\tau_H}, \quad 1 - P_H = \frac{\tau_H - \tau_3}{2\tau_H}. \quad (4)$$

Таким образом, близость к порогу протекания в пленке равна

$$\tau_{2.5} = \frac{P_H - p_{c2}}{p_{c2}} = \frac{\tau_3}{\tau_H}, \quad (5)$$

где учтено, что $p_{c2} = 1/2$ и нижний индекс в $\tau_{2.5}$ подчеркивает, что речь идет о концентрации кубиков $H \times H \times H$ в 2.5D-системе.

Далее мы будем рассматривать ”глубоко фрактальный” режим, когда $\tau_H \gg |\tau_3|$ (подробности см. в [19]); согласно (5), при этом $|\tau_{2.5}| \ll 1$, т.е. можно считать, что 2.5D-система находится вблизи порога протекания, и описывать ее согласно теории перколяции. Подставляя (2) и (5) в (1), получаем для 2.5D-пленки

$$R_{2.5} = \rho_1 (H/a_0)^{\frac{t_3 - t_2 - \nu_3}{\nu_3}} \tau_3^{-t_2} / a_0. \quad (6)$$

Обратимся теперь к случаю слабонелинейной проводимости. С точностью до кубических слагаемых

$$\mathbf{E} = \rho_i(\mathbf{j}) \mathbf{j} = \rho_i \mathbf{j} + \mu_i \mathbf{j}^2 \mathbf{j}, \quad \mathbf{j} = \sigma_i \mathbf{E} + \chi_i \mathbf{E}^2 \mathbf{E}, \quad (7)$$

где μ_i и χ_i — нелинейные части удельных сопротивлений и проводимости, рассматривается случай слабой нелинейности и предполагается, что $\mu_i \mathbf{j}^2 \ll \rho_i$ и $\chi_i \mathbf{E}^2 \ll \sigma_i$.

В терминах полного сопротивления

$$\begin{aligned} r_i(I_i, a_0) &= r_i(a_0) + m_i(a_0)I_i^2, \\ r_i(a_0) &= \rho_i/a_0, \quad m_i(a_0) = \mu_i/a_0^5, \end{aligned} \quad (8)$$

где $r_i(I_i, a_0)$ — нелинейное сопротивление элемента $a_0 \times a_0 \times a_0$ i -й фазы в I_i — полный ток через этот элемент.

В нелинейном случае (8) сопротивление мостика определяется аналогично предыдущему $R_1 = r_1(I_1, a_0)N_1$. Для определения сопротивления прослойки удобнее сначала перейти к контактансу элемента $a_0 \times a_0 \times a_0 - g_2(\Delta\varphi)N_2$, где $\Delta\varphi$ — разность потенциалов на этом элементе. Тогда контактанс прослойки равен $G_2 = g_2(\Delta\varphi)N_2$, после этого можно перейти к $R_2 = 1/G_2$. С точностью до кубических по току слагаемых

$$R_i(I, H) = r_i(H) + M_i(H)I^2, \quad (9)$$

где I — полный ток через образец $H \times H \times H$ и $r_1(H)$, $r_2(H)$ имеют, конечно, тот же вид, что и ранее в (2) и (3), а нелинейные части равны

$$\begin{aligned} M_1(H) &= \mu_1\tau_H^{-(t_3-\nu_3)}a_0^{-5}, \\ M_2(H) &= \mu_2\tau_H^{3(q_3+\nu_3)}a_0^{-5}. \end{aligned} \quad (10)$$

Используем хорошо известные выражения [22] для двумерной пленки в слабонелинейном случае

$$\sigma_e(p) = \sigma_1\tau^{t_2}, \quad \chi_e = \chi_1\tau^{-k_2}, \quad p > p_c, \quad (11)$$

$$\sigma_e(p) = \sigma_2|r|^{q_2}, \quad \chi_e = \chi_2|\tau|^{-k'_2}, \quad p < p_c, \quad (12)$$

где k_2 и k'_2 — критические индексы $1/f$ шума.

Заметим, что в [22] нелинейная связь между плотностью тока и напряженностью поля была выбрана в виде $j = \sigma E + \chi E^2 E$, однако легко видеть, что с точностью до кубических слагаемых $\mu = -\chi\sigma^4$. Если принять для k_2 и k'_2 их выражения через t , q и ν [23] $k_2 = 2\nu_2 - t_2$, $k'_2 = 2\nu_2 - q_2$, то для $R_{2.5}(I)$ вместо (1) можно записать

$$R_{2.5}(I) = r_1(H)\tau_{2.5}^{-t_2} + M_1(H)\tau_{2.5}^{-t_2}I^2, \quad p > p_{c2}, \quad (13)$$

$$R_{2.5}(I) = r_2(H)|\tau_{2.5}|^{q_2} + M_2(H)|\tau_{2.5}|^{3q_2}I^2, \quad p < p_{c2} \quad (14)$$

Рассмотрим случай очень сильной неоднородности, пренебрегая выше порога протекания током, проходящим по плохо проводящей фазе, а ниже — падением напряжения на хорошо проводящей фазе. Подставляя в (13) и (14) $M_i(H)$ из (10) и $\tau_{2.5}$ из (5), получаем

$$R_{2.5}^e(I) = r_{2.5}^e(H) + M_{2.5}^e(H)I^2, \quad (15)$$

где выше порога протекания

$$\begin{aligned} r_{2.5}^e(H) &= a_0^{-1}\rho_1(H/a_0)^{(t_3-t_2-\nu_3)/\nu_3}\tau_3^{-t_2}, \\ M_{2.5}^e(H) &= a_0^{-5}\mu_1(H/a_0)^{(t_3-t_2-\nu_3)/\nu_3}\tau_3^{-t_2} \end{aligned} \quad (16)$$

и ниже порога

$$\begin{aligned} r_{2.5}^e(H) &= a_0^{-1}\rho_2(H/a_0)^{(q_2-q_3-\nu_3)/\nu_3}|\tau_3|^{q_2}, \\ M_{2.5}^e(H) &= a_0^{-5}\mu_2(H/a_0)^{3(q_2-q_3-\nu_3)/\nu_3}|\tau_3|^{3q_2}. \end{aligned} \quad (17)$$

Если пренебречь смещением порогов в [17], то полученные в [17] линейные сопротивления пленки совпадут с нашими выражениями. Заметим, что в [17] $r_{2.5}^e$ были получены из совершенно других соображений — методом ”перколяционного ренорм преобразования”.

Вычисление сопротивления нелинейной пленки с учетом смещения порога протекания

До сих пор мы не учитывали сдвиг порога протекания для кубиков с размером $H \ll \xi$. Согласно [23,24], средний по реализациям порог протекания $\langle p_{cH} \rangle$ сдвигается относительно p_{c3} на величину, пропорциональную τ_H ,

$$\langle p_{cH} \rangle = p_{c3} + A\tau_H, \quad (18)$$

где A — некоторая константа.

При таком определении сдвига $\langle p_{eH} \rangle$ в среднеквадратичной флуктуации порогов протекания теперь необходимо также учитывать численный множитель, который, согласно [24,25], обозначается B , т.е. вместо (4) имеет место

$$P_H = (p - p_{c3} + (B - A)\tau_H)/2B\tau_H. \quad (19)$$

Формула (19) совпадает с (4) при $A = 0$ и $p_{c3}/B = 1$. Близость к порогу протекания пленки с учетом поправленной концентрации (19) выглядит так:

$$\tau_{2.5} = \left(p_{c3} \frac{\tau_3}{\tau_H} - A \right) / B. \quad (20)$$

При $\tau_3 \rightarrow 0$ близость к порогу пленки становится равной константе A/B , а не 0, как в формуле (5). В зависимости от значений τ_3 близость к порогу $\tau_{2.5}$ принимает значения

$$\text{I } \tau_{2.5} = p_{c3} \frac{\tau_3}{B\tau_H} \text{ для } 0 < \tau_c < \tau_3, \quad \tau_c = A\tau_H/p_{c3}, \quad (21)$$

$$\text{II } \tau_{2.5} = -\frac{A}{B} \text{ для } 0 < \tau_3 < \tau_c, \quad (22)$$

$$\text{III } \tau_{2.5} = -p_{c3} \frac{\tau_3}{B\tau_H} \text{ для } |\tau_3| > \tau_c, \quad (23)$$

$$\text{IV } \tau_{2.5} = \left(p_{c3} \frac{\tau_3}{\tau_H} - A \right) / B \approx 0 \text{ для } \tau_3 \approx \tau_c. \quad (24)$$

Сопротивление пленки для случаев I и III совпадает с точностью до константы B с (16) и (17) соответственно. Для случая II сопротивление пленки определяется

$$\begin{aligned} r_{2.5}^e(H) &= C_1 a_0^{-1} \rho_2(H/a_0)^{-(q_3+\nu_3)/\nu_3}, \\ M_{2.5}^e(H) &= C_2 a_0^{-5} \mu_2(H/a_0)^{3(q_3+\nu_3)/\nu_3}, \end{aligned} \quad (25)$$

где константы C_i есть произведение констант A и B в определенных степенях.

В случае IV пленка находится в области размазки с шириной, равной $\Delta_{2.5} = (\rho_1/\rho_2)^{1/(t_2+q_2)} \times (H/a_0)^{(t_3+q_3)/\nu_3(t_2+q_2)}$. Для $|\tau_{2.5}| \leq \Delta_{2.5}$ сопротивление пленки равно (13) или (14) при $\tau_{2.5} = \Delta_{2.5}$

$$r_{2.5}^e(H) = a_0^{-1} \rho_2 \sqrt{h(H/a_0)}^{-1} \left(1 + \frac{3q_3+t_3}{2\nu_3}\right),$$

$$M_{2.5}^e(H) = a_0^{-5} \mu_2 h^{\frac{3q_2}{t_2+q_2}} (H/a_0)^{-3} \left(1 + \frac{3q_3+t_3}{2\nu_3}\right), \quad (26)$$

где учтено, что $t_2 = q_2$.

Заключение

Для представления о качественном поведении сопротивления пленки удобно подставить в полученные выражения численные значения критических индексов. Согласно [26], $t_3 = 2.0$, $t_2 = q_2 = 1.3$, $q_3 = 0.73$, $\nu_3 = 0.88$. С учетом этих значений выше порога протекания и без учета его смещения (см. (16)) получаем

$$r_{2.5}^e(H) \propto \rho_1 a_0^{-0.8} H^{-0.2}, \quad M_{2.5}^e(H) \propto \mu_1 a_0^{-4.8} H^{-0.2} \quad (27)$$

и ниже порога протекания (см. (17))

$$r_{2.5}^e(H) \propto \rho_2 a_0^{-0.65} H^{-0.35},$$

$$M_{2.5}^e(H) \propto \mu_2 a_0^{-5.95} H^{-1.06}. \quad (28)$$

Учет смещения порога протекания приводит в случае II (22) к следующим зависимостям (см. (25)):

$$r_{2.5}^e(H) \propto \rho_2 a_0^{0.83} H^{-1.83}, \quad M_{2.5}^e(H) \propto \mu_2 a_0^{0.49} H^{-5.49}, \quad (29)$$

а в случае IV (см. (26))

$$r_{2.5}^e(H) \propto \sqrt{\rho_1 \rho_2} H^{-3.38},$$

$$M_{2.5}^e(H) \propto \mu_2 (\rho_1/\rho_2)^{3/2} a_0^{5.14} H^{-10.14}. \quad (30)$$

Заметим, что зависимость $r_{2.5}^e(H)$ и $M_{2.5}^e(H)$ от H и a_0 различна, следовательно, одновременное изменение в одинаковое число раз H и a_0 не оставляет $r_{2.5}^e(H)$ и $M_{2.5}^e(H)$ неизменными. Таким образом, изменение "глубины" (размеров) частиц хорошо проводящей фазы приводит к нетривиальному изменению сопротивления ТПР.

Из-за наличия многих параметров — τ , Δ , r_1/r_2 , μ_1/μ_2 , H и т.д. имеет место большое разнообразие возможных зависимостей сопротивления 2.5D-пленки. Тем не менее возможные экспериментальные ситуации требуют, вообще говоря, учета дополнительных "степеней свободы". Так, большое различие в размерах частиц может привести к необходимости применения так называемой Swiss-Chees модели [26] или учета туннелирования, что потребует обращения к задачам с экспоненциально широким спектром распределения сопротивлений [25,26] и т.п. Учет этих факторов заслуживает отдельного рассмотрения.

Работа выполнена при поддержке гранта KBN Z/7/2/97.

Список литературы

- [1] *Dziedzic A.* // Microelectronics and Reliability. 1991. Vol. 31. P. 549–558.
- [2] *Чайковский И.А.* // Микроэлектроника. 1988. Т. 17. С. 291–304.
- [3] *Kasukabe S., Taketa M.* // Electrocomponent Science and Technology. 1981. Vol. 8. P. 167–174.
- [4] *Dziedzic A., Kita J., Mach P.* // Vacuum. 1998. Vol. 50. P. 125–130.
- [5] *Carcia P.F., Ferretti A., Suna A.* // J. Appl. Phys. 1982. Vol. 53. P. 5282–5288.
- [6] *Kubovy A.* // J. Phys. 1986. Vol. D19. P. 2171–2183.
- [7] *Carcia P.F., Suna A., Childers W.D.* // J. Appl. Phys. 1983. Vol. 54. P. 6002–6008.
- [8] *Dziedzic A., Nitsch K., Kolek A.* // Proc. 11th Europ. Microelectronics Conf. 1997. P. 622–626.
- [9] *Kubat J., Kuzel R., Krivka I., et al.* // Synt. Metals. 1993. Vol. 54. P. 187–194.
- [10] *Weissman M.B., Dollinger C.D.* // Appl. Phys. J. 1987. Vol. 52. P. 3095–3101.
- [11] *Dubson M.A., Hui Y.C., Weissman M.B., Garland J.C.* // Phys. Rev. 1989. Vol. B39. P. 6807–6813.
- [12] *Yagil Y., Deutscher G., Bergman D.J.* // Int. J. Mod. Phys. 1993. Vol. B7. P. 3353–3374.
- [13] *Snarskii A.A., Morozovsky A.E., Kolek A., Kusy A.* // Phys. Rev. 1996. Vol. E53. P. 5596–5605.
- [14] *Clerc J.P., Giraud G., Alexander S., Guyon E.* // Phys. Rev. 1980. Vol. B22. P. 2489–2494.
- [15] *Gadenne M., Gadenne P.* // Phys. 1989. Vol. A157. P. 344–351.
- [16] *Gadenne P., Yagil Y., Deutscher G.* // Physica. 1989. Vol. A157. P. 279–283.
- [17] *Неймарк А.В.* // ЖЭТФ. 1990. Т. 98. С. 611–626.
- [18] *Gadenne P., Gadenne M., Yagil Y., Deutscher G.* // Physica. 1994. Vol. A207. P. 228–233.
- [19] *Морозовский А.Е., Снарский А.А.* // ЖЭТФ 1996. Т. 109. С. 674–682.
- [20] *Morozovsky A.E., Snarskii A.A.* // Int. J. Electronics. 1995. Vol. 78. P. 135–137.
- [21] *Efros A.L., Shklovskii B.I.* // Phys. St. Sol. 1976. Vol. B76. P. 475–485.
- [22] *Stroud D., Hui P.M.* // Phys. Rev. 1988. Vol. B37. P. 8719–8724.
- [23] *Morozovskii A.E., Snarskii A.A.* // Sov. Phys. JETP. 1989. Vol. 68. P. 1066–1069.
- [24] *Левинштейн М.Е., Шкловский Б.И., Шур М.С., Эфрос А.Л.* // ЖЭТФ. 1975. Т. 69. С. 386–392.
- [25] *Шкловский Б.И., Эфрос А.Л.* Электронные свойства легированных полупроводников. М.: Наука, 1979.
- [26] *Stauffer D., Aharony A.* Introduction to Percolation Theory. 2nd ed. London: Taylor & Francis; Washington, 1992.