

05

Тепловое сопротивление интерфейса гранулированная пленка—подложка

© Ю.М. Николаенко, Ю.В. Медведев, М. Ghafari,
Н. Hahn, И.Н. Чуканова

Донецкий Физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины,
Донецк, Украина
E-mail: nik@kinetic.ac.donetsk.ua
Institut für Nanotechnologie, Forschungszentrum Karlsruhe,
D-76021 Karlsruhe, Germany
Институт монокристаллов НАН Украины, Харьков, Украина

Поступило в Редакцию 24 апреля 2006 г.

Представлены результаты измерения теплового сопротивления (R_{FS}) интерфейса пленка—подложка однослойных пленочных структур. Обнаружена связь между величиной R_{FS} и размером гранул материала пленки. Наноструктурированная пленка $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$ (толщиной 10 nm на Si-подложке с 50-nm SiO_2 -подслоем) при наличии хорошей адгезии характеризуется увеличенной почти на два порядка величиной R_{FS} по сравнению с минимальной величиной $R_{FS} = 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$. Пленка $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{MnO}_3$ (LCMO) на SrTiO_3 подложке с $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) подслоем и микроскопическим размером гранул обнаруживает $R_{FS} = 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$.

PACS: 68.35.Md

Существующие технологии изготовления пленочных структур показывают принципиальную возможность вариации величины теплового сопротивления интерфейса пленка—подложка R_{FS} в широких пределах $10^{-7} - 10^{-2} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ [1–3], но каких-либо надежных методов регулирования этого параметра не существует. Есть только качественное понимание зависимости R_{FS} от таких характеристик, как рассогласование параметров решетки материалов пленки и подложки, или шероховатости подложки. Следует отметить, что достаточно большую величину R_{FS} невозможно обеспечить путем применения тонких подслоев с регулярной структурой. Действительно, теплопроводность материала для создания нужного теплового барьера должна быть нереально малой.

Для оценки величины R_{FS} существуют стационарные и нестационарные методы. При использовании стационарного метода две или три металлических полоски наносятся на пленку. Они используются в качестве нагревателя и термометра сопротивления одновременно. Значение R_{FS} определяется по разнице температур между металлическими полосками с относительно большими и малыми выделениями джоулевой мощности (P_J) [1].

$$R_{FS} = \Delta T / P_J. \quad (1)$$

В нестационарном методе в качестве нагревателя и термометра используется сама пленка. Пленка импульсно нагревается оптическим или микроволновым излучением. В наиболее простом варианте метода величина R_{FS} оценивается из приближенного соотношения для постоянной времени (τ_1), соответствующей релаксации теплового потока на интерфейсе пленка–подложка [1,5]:

$$R_{FS} = \tau_1 / (c_F \rho_F d). \quad (2)$$

Здесь c_F и ρ_F есть удельная теплоемкость и плотность материала пленки, а d — толщина пленки. К трудностям такого подхода следует отнести необходимость выбора оптимальной длительности зондирующих импульсов и очень высокие требования к чувствительности и линейности приемника, а также к величине относительного температурного коэффициента сопротивления (ТКС) пленки.

Недавно (см. [2,4]) для измерения полного набора тепловых кинетических коэффициентов пленочных структур была разработана компьютерная версия нестационарного метода. При использовании этого метода для оценки R_{FS} технические требования к пленочной структуре оказываются значительно ослабленными. Достаточно точную оценку можно сделать даже в том случае, если экспериментальная зависимость температуры нагрева пленки не содержит участка в масштабе времени τ_1 . Это, в частности, позволяет исследовать пленки с относительно низким значением ТКС.

В версии метода [2,4] временная зависимость температуры нагрева пленки ($\Delta T_F(t)$) регистрируется быстродействующим (10^6 выборок в секунду) АЦП в одноимпульсном и многоимпульсном режиме манипуляции микроволновой мощностью. Математическую основу метода для численного моделирования функции $\Delta T_F(t)$ составляет система

уравнений, описывающая однородный нагрев пленки и одномерное распространение тепла в системе пленка–подложка–термостат.

Ниже представлены результаты измерения теплового сопротивления R_{FS} однослойных пленочных структур. Серия пленок $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Cu}_y$ толщиной 10 nm была изготовлена методом магнетронного напыления из трех источников на Si-подложки с 50-nm подслоем SiO_2 . Нагревание подложек во время напыления отсутствовало. Структура пленок — гранулированная с характерным размером зерна порядка 15 nm.

Пленки с вариацией состава в области $x = 0 \div 1$ и $y = 0.6 \div 1$ характеризуются высокой (металлической) электропроводностью при комнатной температуре ($R_{\square} = 2 \div 7 \Omega/\square$) и линейной температурной зависимостью сопротивления с положительным знаком dR/dT . Важным параметром для применения нестационарного метода измерения R_{FS}

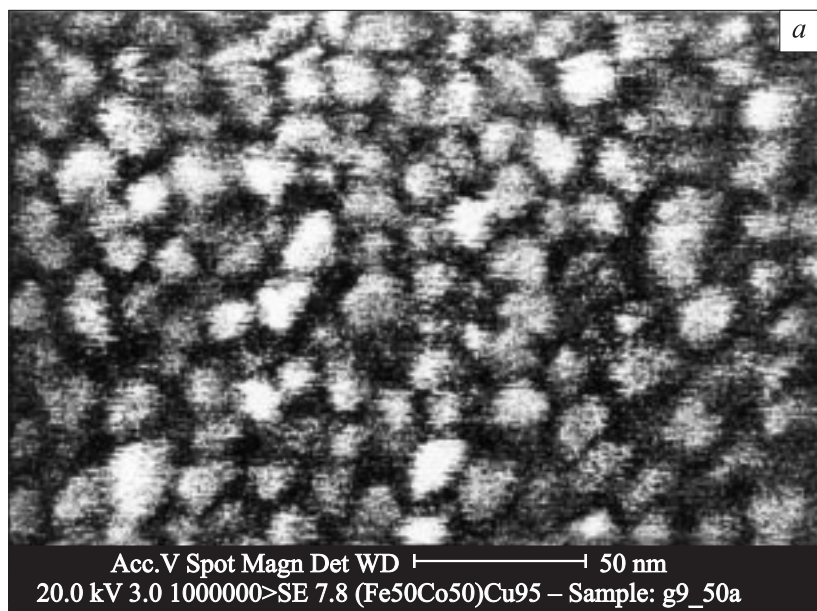


Рис. 1. *a* — наномасштабная структура $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{Cu}_y$ пленок (изображение SEM); *b* — микроструктура поверхности $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{MnO}_3$ пленки (оптический микроскоп $\times 2000$).

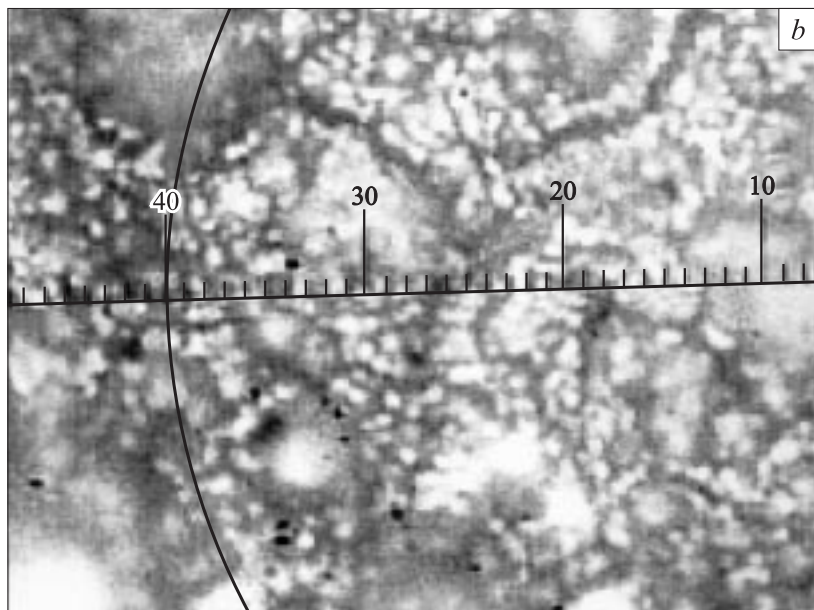


Рис. 1 (продолжение).

является относительный температурный коэффициент сопротивления $k = R^{-1}(dR/dT) \cdot 100$ (% K⁻¹). Максимальная величина $k = 0.16\%$ K⁻¹ достигается у пленки (Fe_{0.5}Co_{0.5})_{0.4}Cu_{0.6}, которая была отобрана для дальнейших измерений, хотя само значение k невелико и примерно в три раза меньше, чем у объемной меди ($k \cong 0.5\%/K$).

Большей величиной k обладает пленка LSMO. Она получена методом импульсного лазерного осаждения на подложку SrTiO₃ с подслоем YBCO. Толщина пленки составляла около 1 μm и подслоя — около 400 nm. Перед напылением пленки кислородный индекс материала подслоя путем отжига в вакууме был максимально снижен и фактически подслоем имел диэлектрическое состояние. При комнатной температуре величина k LSMO пленки составляла 1.12% K⁻¹. Микроструктура пленки была изучена с помощью оптического микроскопа (рис. 1, b). Как видно, размер зерна имеет микроскопический масштаб.

Временная зависимость температуры нагрева $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$ пленки импульсной микроволновой мощностью в одноимпульсном режиме (часть кривой с относительно большой длительностью) и в многоимпульсном режиме (часть кривой с короткими временами) приведена на рис. 2, а. Экспериментальные данные показаны незаполненными точками. Сплошными линиями показан результат численного расчета функции $\Delta T_F(t)$. Кривая 1 на рис. 2, а соответствует наилучшему совпадению с экспериментальными данными. Дополнительные кривые 2 и 3 на рис. 2, а показывают эволюцию функции $\Delta T_F(t)$ при увеличении и уменьшении в два раза значения R_{FS} .

Экспериментальную зависимость $\Delta T_F(t)$ LCMO пленки на рис. 2, б сопровождают четыре расчетные кривые, отличающиеся величиной $R_{FS} = 10^{-7}, 10^{-6}, 2 \cdot 10^{-5}, 10^{-5} \text{ м}^2 \cdot \text{К/В}$ (для кривых 1–4 соответственно). Как видно, из-за высокого уровня шума пленки данные в области достаточно коротких времен отсутствуют. Поэтому оценка оказывается менее точной и ее можно сформулировать как $R_{FS} \leq 10^{-6} \text{ м}^2 \cdot \text{К/В}$. Значения соответствующих тепловых кинетических коэффициентов и размерных параметров приведены в таблице.

Опыт изучения величины R_{FS} ограничивается данными единственного обзора [1] и результатами еще нескольких более поздних работ. Минимальная величина R_{FS} имеет порядок величины $10^{-7} \text{ м}^2 \cdot \text{К/В}$. Такая величина соответствует наиболее совершенным эпитаксиальным пленкам (YBCO/MgO , YBCO/SrTiO_3). Они имеют минимальное рассогласование параметров решетки (α) материалов пленки и подложки и, следовательно, характеризуются минимальной толщиной „мертвого слоя“. Возможная связь R_{FS} с α обсуждалась также в работе [2]. Для пленок на основе твердого раствора манганита и подложек из LaAlO_3 и SrTiO_3 α имеет различную величину и знак. Поэтому логично было заключить, что заметная вариация R_{FS} в этих структурах обусловлена именно этим обстоятельством. В другом случае для пленочных структур YBCO/MgO и YBCO/SrTiO_3 авторы обзора [1] приводят большее значение, порядка $R_{FS} = 10^{-6} \text{ м}^2 \cdot \text{К/В}$. Это означает, что набор факторов, определяющих R_{FS} , не исчерпывается величиной α . Еще один важный параметр, который должен влиять на величину R_{FS} , это шероховатость подложки [1]. При этом какая именно шероховатость необходима для увеличения R_{FS} на несколько порядков, не ясно.

Вопрос о влиянии гранулированной структуры на величину теплового сопротивления ранее другими авторами не обсуждался. Полученная

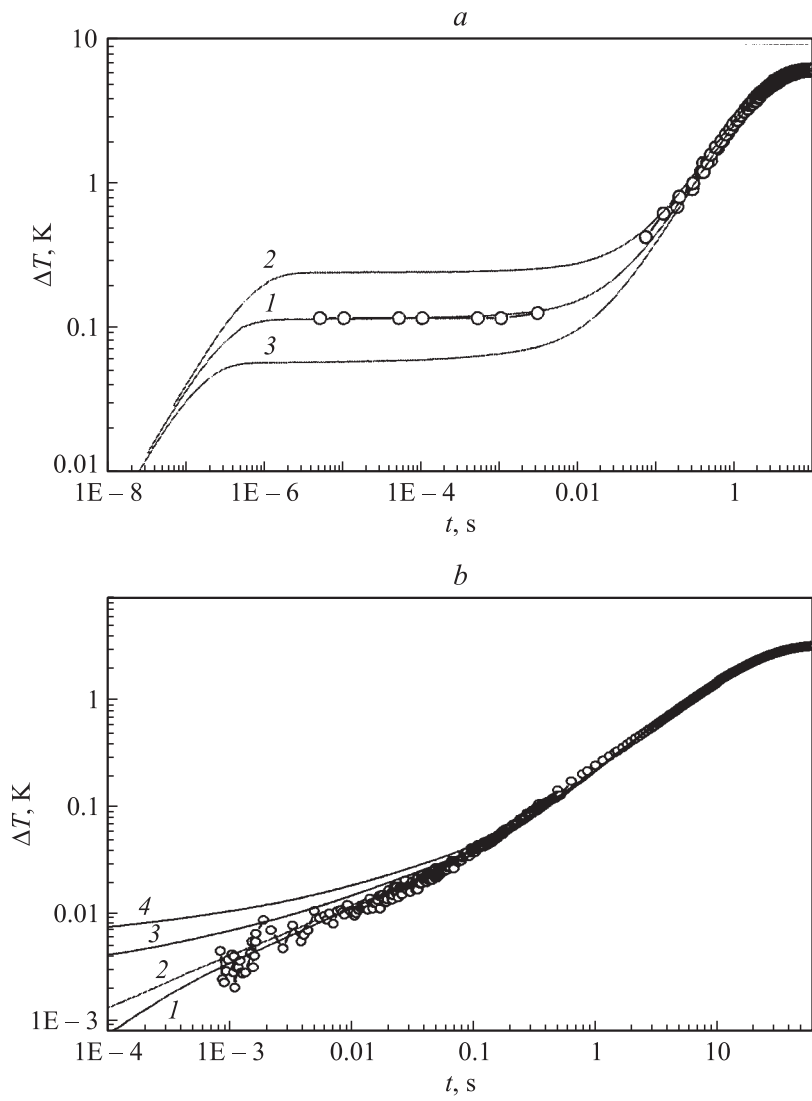


Рис. 2. Временная зависимость температуры нагрева пленок: *a* — $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$ и *b* — $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{MnO}_3$.

Тепловые кинетические коэффициенты и размерные параметры пленочных структур

Пленка	R_{FS} , $\text{m}^2 \cdot \text{K}/\text{W}$	$c_F \rho_F$, $\text{W}/\text{m}^3 \cdot \text{K}$	$c_S \rho_S$, $\text{W}/\text{m}^3 \cdot \text{K}$	λ_S , $\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$	R_{ST} , $\text{m}^2 \cdot \text{K}/\text{W}$	P_J , W	d , m	l , m	S_F , m^2
FeCoCu	$2.5 \cdot 10^{-5}$	10^6	$1.9 \cdot 10^6$	160	$1.43 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-2}$	10^{-8}	$6.5 \cdot 10^{-4}$	$4.455 \cdot 10^{-6}$
LCMO	$\leq 10^{-6}$	$5.5 \cdot 10^6$	$5.4 \cdot 10^6$	10.7	$8.25 \cdot 10^{-3}$	$2.6 \cdot 10^{-2}$	10^{-6}	$7 \cdot 10^{-4}$	$3.584 \cdot 10^{-5}$

Примечание. d и l — толщина пленки и подложки; c_F , c_S , ρ_F , ρ_S — удельная теплоемкость и плотность материалов пленки и подложки; R_{ST} — тепловое сопротивление интерфейса подложка–термостат; P_J — джоулева мощность и s_F — площадь пленки.

нами величина $R_{FS} = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ для пленки $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$ ясно показывает, что такая зависимость существует. Отметим, что возрастание R_{FS} не может быть обусловлено подслоем с регулярной структурой. Действительно, если бы в качестве подслоя толщиной 50 nm использовать такой теплоизолирующий материал, как фторопласт, то величина теплового барьера оказалась бы достаточно малой $1.5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ [6]. С другой стороны, максимальная величина теплового сопротивления $R_{FS} = 10^{-3} - 10^{-2} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ была получена авторами работы [7] для пленочных структур EBCO/MgO и EBCO/SrTiO₃. Этот факт демонстрирует принципиальную возможность вариации R_{FS} в широких пределах. Ответственной за столь значительный рост R_{FS} является структура пленки в непосредственной близости от подложки. Конечно, для технического применения интерес представляет не тривиальное решение задачи, которое радикально ухудшает прочность и адгезию пленки или формирует гибридную структуру. Учитывая малость длин волн превалирующих фононов при комнатной температуре, решение задачи необходимо искать в наноскопическом масштабе путем формирования специальной структуры пленки вблизи интерфейса.

Наша наноструктурированная пленка $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$ характеризуется хорошей адгезией и демонстрирует увеличение почти на два порядка теплового сопротивления R_{FS} . Вторая пленка LCMO имеет микроскопическую гранулированную структуру и характеризуется меньшим ростом R_{FS} . Поэтому мы рассматриваем исследование наноструктурированной пленки как шаг в направлении понимания и решения общей проблемы вариации R_{FS} пленочных структур.

Список литературы

- [1] Prasher R.S., Phelan P.E. // J. of Superconductivity. 1997. V. 10. N 2. P. 473–484.
- [2] Медведев Ю.В., Николаенко Ю.М., Гришин А.М., Харцев С.И. // ЖТФ. 2002. Т. 72. № 1. С. 17–124.
- [3] Zhang Z.M., Frenkel A. // J. of Superconductivity. 1994. V. 7. P. 871–884.
- [4] Николаенко Ю.М., Пашкевич Ю.Г., Lemmens P. // ПТЭ. 2002. № 6. С. 133–137.
- [5] Sergeev A.V., Semenov A.D., Kouminov P. et al. // Phys. Rev. B. 1994. V. 49. P. 9091–9096.
- [6] Кожевников И.Г., Новицкий Л.А. // Теплофизические свойства материалов при низких температурах. М.: Машиностроение, 1982. 328 с.
- [7] Kelkar M., Phelan P.E., Gu B. // Int. J. Heat Mass Transfer. 1997. V. 40. P. 2637.