

DOI <https://doi.org/10.30898/1684-1719.2020.10.5>

УДК 538.975: 539.216.2: 621.371

ВЛИЯНИЕ ВНУТРЕННЕГО РАЗМЕРНОГО ЭФФЕКТА В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЁНКАХ МЕТАЛЛОВ НА КОЭФФИЦИЕНТЫ ОТРАЖЕНИЯ, ПРОХОЖДЕНИЯ И ПОГЛОЩЕНИЯ В НИХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН СВЧ ДИАПАЗОНА

И. И. Пятайкин

Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук, 125009, г. Москва, ул. Моховая, д. 11, стр. 7

Статья поступила в редакцию 20 октября 2020 г.

Аннотация. Исследовано влияние классического размерного эффекта на коэффициенты \mathfrak{R} , T и A , характеризующие отражение, прохождение и поглощение электромагнитных волн СВЧ диапазона поликристаллическими плёнками металлов. На примере плёнок золота, в статье рассматривается влияние внутреннего размерного эффекта, обусловленного их поликристаллической структурой, на величину параметра d_{pk} , определяющего зависимости коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины плёнки. Обнаружено, что в зависимости от величины коэффициента отражения электронов от межкристаллитных границ, параметр d_{pk} , рассчитанный с использованием теории внутреннего размерного эффекта Маядеса-Шацкеса-Джэнека (МШД), отличается в два - пять раз от тех значений, которые получаются при расчётах, опирающихся на использование теории внешнего размерного эффекта Фукса-Зондгеймера. Установлена зависимость d_{pk} от параметров, определяющих скорость роста и предельно достижимые размеры кристаллитов, позволившая выявить влияние микроструктуры плёнок на зависимости коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины. Опираясь на обнаруженный характер зависимости d_{pk} от параметров теории МШД и структурных параметров плёнки, предложены рекомендации, позволяющие выбирать металлы, наиболее оптимальные для покрытий электромагнитной защиты.

Ключевые слова: классический размерный эффект, внутренний размерный эффект, теория Маядеса-Шацкеса-Джэнека, СВЧ коэффициент отражения, СВЧ коэффициент поглощения, покрытия электромагнитной защиты.

Abstract. The influence of size effect on the \mathfrak{R} , T , and A coefficients characterizing reflection, transmission, and absorption of microwaves by polycrystalline metal films is studied. Using the example of gold films, the article examines the influence of internal size effect due to their polycrystalline structure on the value of the parameter d_{pk} that determines the dependence of the \mathfrak{R} , T and A coefficients on the film thickness. It was found that, depending on the value of the reflection coefficient of electrons striking the grain boundaries, parameter d_{pk} calculated using the Mayadas-Shatzkes-Janak (MSJ) theory for grain size effect differs by two to five times from that obtained in calculations based on the use of the Fuchs-Sondheimer theory for thickness size effect. The dependence of d_{pk} on the parameters determining the grain growth rate and limiting grain size has been established, which made it possible to reveal the effect of the film microstructure on the dependence of the \mathfrak{R} , T and A coefficients on the film thickness. Based on the revealed character of the dependence of d_{pk} on the parameters of the MSJ theory and the structural parameters of the film, recommendations are proposed for choosing the metals that are most optimal for producing coatings for electromagnetic interference shielding.

Key words: size effect, grain size effect, Mayadas-Shatzkes-Janak theory, microwave reflection coefficient, microwave absorption coefficient, coatings for electromagnetic interference shielding.

Введение

Защита электронных устройств от СВЧ излучения – актуальная практическая задача. Экранирующие кожухи приборов часто изготавливаются путём напыления тонких металлических плёнок на пластиковые или кристаллические формы (подложки) необходимой геометрии. В ряде случаев бывает необходимо, чтобы толщина металлической плёнки была достаточной для защиты от СВЧ излучения, но в то же самое время плёнка должна быть

достаточно прозрачной для электромагнитных волн видимого диапазона частот, чтобы не препятствовать работе оптико-электронных устройств. В этом контексте становится ясной актуальность правильного выбора металла для покрытия и определения его оптимальной толщины, что в свою очередь, и делает важным изучение зависимостей коэффициентов отражения (\mathfrak{R}), прохождения (T) и поглощения (A) металлических плёнок в диапазоне СВЧ от толщины.

По-видимому, первый шаг в решении этой практически важной задачи был сделан в начале сороковых годов прошлого века Дж.А. Стрэттоном [1], рассмотревшим нормальное падение электромагнитной волны на систему, составленную из трёх безграничных плоских слоёв. Хотя полученные им аналитические выражения для \mathfrak{R} и T позволяют анализировать толщинные зависимости этих коэффициентов и для диэлектрических слоёв с потерями, случай, когда хотя бы один из слоёв - металлический, им рассмотрен не был. По этому поводу Стрэттон пишет: «В случае металлического слоя затухание настолько велико и коэффициент отражения настолько близок к единице, что даже для тончайших¹ листов прозрачностью можно пренебречь».

Спустя двадцать лет после выхода в свет монографии Стрэттона в обиход радиоэлектронной промышленности вошли металлизированные полимерные плёнки с толщинами металлических слоёв от одной десятой до нескольких сотых микрона, широко применявшиеся как для целей электромагнитной защиты, так и постановки помех радиолокационным станциям и даже для создания пассивных ретрансляторов космического базирования. Оптимизация работы этих устройств требовала более тонкого, чем у Стрэттона, анализа коэффициентов \mathfrak{R} , T и A плоскостойкой системы с металлической компонентой.

Впервые такой анализ был проделан А.Е. Капланом [2] в середине 60-х годов. Он рассмотрел случай нормального падения СВЧ излучения на слой металла с удельной проводимостью σ_0 и толщиной d . Оказалось, что в случае,

¹ Как следует из контекста, «тончайший» - порядка одного микрона.

когда d много меньше толщины скин-слоя, существует фундаментальный, не зависящий от частоты, характерный масштаб

$$d_{pk}^0 = c / (2\pi\sigma_0), \quad (1)^2$$

на котором коэффициенты

$$\mathfrak{R} = 1 / (1 + d_{pk}^0 / d)^2,$$

$$T = 1 / (1 + d / d_{pk}^0)^2 \text{ и}$$

$$A = 2 / \left(\sqrt{d_{pk}^0 / d} + \sqrt{d / d_{pk}^0} \right)^2$$

изменяются заметным образом. В слое толщины d_{pk}^0 коэффициент поглощения достигает максимального значения (0.5), а коэффициенты отражения и прохождения оказываются равными 0,25.

На толщинах в несколько³ d_{pk}^0 коэффициент отражения становится близким к единице⁴, слой при этом начинает играть роль эффективного экрана от СВЧ излучения. Следует отметить, что если предположить, что классический размерный эффект отсутствует и удельная проводимость металлического слоя совпадает с её объёмным значением, то величина d_{pk}^0 на три-четыре порядка величины меньше характерной толщины⁵ скин-слоя δ и составляет около одного ангстрема. Защитные свойства слоёв толщиной несколько d_{pk}^0 обязаны высокому значению коэффициента отражения. Особенно хорошо это видно в рассматриваемом случае нормального падения, когда падающая на слой электромагнитная волна интерферирует с отражённой,

² Формула записана в гауссовой системе единиц. Размерность удельной электрической проводимости в этой системе единиц $[\sigma_0] = \text{с}^{-1}$.

³ Обычно, 3 или 5.

⁴ Коэффициент отражения равен 0,56 и 0,69 для слоя толщины $3d_{pk}^0$ и $5d_{pk}^0$, соответственно.

⁵ $0.3 \div 3$ мкм, в зависимости от частоты СВЧ волны.

в результате чего при коэффициенте отражения, близком к единице, образуется стоячая волна с узлом у поверхности металлического слоя [3].

Разумеется, на практике не встречаются идеально плоские и безграничные экраны, однако всё сказанное выше относительно электромагнитной защиты, основанной на принципе отражения, сохраняет силу, если типичный радиус кривизны экрана много больше длины волны излучения. В обратном предельном случае, когда данный защитный механизм становится неэффективным, для электромагнитного экранирования следует использовать принцип поглощения [1]. Ясно, что при таком способе защиты характерным масштабом становится уже толщина скин-слоя δ , а не d_{pk}^0 .

Учёт классического размерного эффекта приводит к падению удельной проводимости σ относительно её значения σ_0 для объёмных металлов и, соответственно, к росту d_{pk} , а с нею и минимальной толщины $d_{min} \equiv (3 \div 5)d_{pk}$ слоя, обеспечивающего электромагнитную защиту. В своей работе [3] Каплан использовал для расчётов теорию Фукса – Зондгеймера [4, 5] и нашёл, что d_{pk} увеличивается по сравнению с d_{pk}^0 примерно на порядок при учёте размерного эффекта.

Помимо размерного эффекта, влияние на d_{pk} оказывает и подложка, на которую напылён защитный слой. Проведённый в работе [3] анализ позволяет оценить это влияние⁶. Оказывается, что для большинства материалов, используемых в промышленности в качестве подложек, таких как стёкла и пластики, оказываемое ими влияние на d_{pk} примерно на порядок меньше того, что обусловлен размерным эффектом. Исключение составляют полупроводниковые (Ge, Si, ZnSe) подложки с большой величиной диэлектрической проницаемости, способные увеличивать d_{pk} более чем в два раза. Однако такие материалы практически не используются в промышленности для нанесения покрытий электромагнитной защиты.

⁶ См. формулу 47 в [3].

Следует отметить, что использованная в [3] теория Фукса – Зондгеймера описывает так называемый внешний размерный эффект, обусловленный незеркальностью отражения электронов от внешней поверхности плёнки. Этот случай реализуется обычно в тонких монокристаллических эпитаксиальных или в крупноблочных плёнках, продольные⁷ размеры кристаллитов в которых намного превосходят длину свободного пробега электронов в соответствующих объёмных металлах. Для получения таких плёнок в лабораторных условиях используют специальное сверхвысоковакуумное оборудование, которое не может быть использовано в промышленности из-за несовместимости с конвейерным способом производства и вытекающей отсюда высокой себестоимости продукции. В мелкокристаллических же плёнках, применяемых для электромагнитной защиты и производимых на стандартном промышленном вакуумном оборудовании, более существенным является внутренний размерный эффект, обусловленный рассеянием электронов, главным образом, на межкристаллитных границах, а не на внешней поверхности плёнки. В этом контексте ясна актуальность попыток улучшения расчётов Каплана [3] с использованием более реалистичных моделей электронного транспорта в тонких поликристаллических плёнках.

Настоящая статья посвящена изучению влияния внутреннего размерного эффекта, вызванного преимущественным рассеянием электронов на границах кристаллитов плёнки, на зависимости её СВЧ коэффициентов отражения, прохождения и поглощения от толщины. Поскольку все эти зависимости выражаются через d_{pk} , то основное внимание в статье сфокусировано на расчёте именно этого параметра. При этом в качестве модели электронного транспорта в мелкокристаллических плёнках используется теория Маядеса-Шацкеса-Джэнека (МШД) [6, 7], являющаяся более общей, чем теория Фукса – Зондгеймера и содержащая её как предельный случай. Расчёт d_{pk} ведётся для плёнок золота, широко применяющихся в радиоэлектронной промышленности. Золото устойчиво при обычных условиях к окислению атмосферным

⁷ То есть, вдоль поверхности подложки.

кислородом, поэтому тонкие плёнки этого металла вполне пригодны для решения практических задач электромагнитной защиты. При расчётах d_{pk} используются как точные уравнения теории МШД, так и приближённые аналитические выражения, получающиеся из точных в ряде предельных случаев. Анализ значений d_{pk} , рассчитанных на основании точных уравнений, позволяет увидеть зависимость минимальной толщины слоя, необходимого для СВЧ экранирования, от основных параметров теории МШД. Рассмотрение приближённых выражений, в свою очередь, позволяет выявить влияние микроструктуры плёнок на их d_{pk} , и тем самым связать структурные характеристики плёнок с зависимостями их коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины. Всё это в совокупности позволяет сформулировать критерии, по которым следует проводить поиск металлов для создания эффективных покрытий электромагнитной защиты.

1. Теоретические основы

Поскольку данная статья посвящена изучению того, как меняются результаты анализа Каплана [3] при переходе от использования теории внешнего размерного эффекта Фукса – Зондгеймера [4, 5] к теории внутреннего размерного эффекта Маядеса-Шацкеса-Джэнека [6,7], прежде всего целесообразно на качественном уровне изложить различия между этими моделями.

Классический размерный эффект в модели Фукса – Зондгеймера вызван незеркальностью отражения электронов проводимости от внешней поверхности плёнки. Ключевой параметр данной теории – коэффициент зеркальности отражения p . Предполагается, что лишь p -я часть электронов, сталкивающихся с поверхностью, отражается от неё зеркально, в то время как оставшаяся часть – рассеивается диффузно, то есть равномерно в телесный угол 2π . Диффузный характер рассеяния приводит к потере проекции приобретённого электроном в поле импульса на направление этого поля, результатом чего и является уменьшение проводимости плёнки σ по сравнению с проводимостью σ_0 безграничного металла с той же концентрацией примесей и дефектов, что и в

плёнке. Для электронов, которые отражаются поверхностью зеркально, подобной потери, очевидно, не происходит, и по этой причине граница вообще не влияет на их кинетику. Поэтому при p равном единице (случай абсолютно зеркального отражения поверхностью) классический размерный эффект в модели Фукса – Зондгеймера исчезает, вследствие чего проводимость σ плёнки толщиной d оказывается такой же, как и у безграничного образца, то есть σ_0 .

Математически размерный эффект в модели Фукса – Зондгеймера описывается выражением $\sigma/\sigma_0 = \theta(p, \xi) = \xi/\Phi_p(\xi)$, где $\xi = d/l_0$ – приведённая толщина, l_0 – длина свободного пробега в объёмном металле, из которого изготовлена плёнка, а $\Phi_p(\xi)^{-1}$ даётся формулой 25 из статьи [5]:

$$\Phi_p(\xi)^{-1} = \frac{1}{\xi} - \frac{3}{2\xi^2} (1-p) \int_1^\infty dt \left(\frac{1}{t^3} - \frac{1}{t^5} \right) \frac{1-e^{-\xi t}}{1-pe^{-\xi t}}. \quad (2)$$

Как видно, $\sigma(d)$ в данной модели зависит от трёх подгоночных параметров - p, σ_0 и l_0 . В металлах кубической симметрии с концентрацией электронов проводимости n и поверхностью Ферми, близкой к сферической, между σ_0 и l_0 имеется связь [8]:

$$\frac{\sigma_0}{l_0} = \frac{e^2}{\hbar} \left(\frac{n^2}{3\pi^2} \right)^{1/3}, \quad (3)^8$$

используя которую можно уменьшить число подгоночных параметров с трёх до двух, в качестве которых можно выбрать, например, p и l_0 . Зависимость $\sigma(d)$ только от двух параметров позволяет использовать формулу (2) для надёжного определения p и l_0 в плёнках металлов, в которых взаимодействие электронов с внешней поверхностью является основным источником размерного эффекта.

В теории МШД поликристаллическая плёнка моделируется путём размещения межкристаллитных границ перпендикулярно поверхностям плёнки модели Фукса – Зондгеймера. В процессе распространения носители заряда могут отражаться от этих границ с эффективностью, характеризуемой коэффициентом отражения R . Размеры кристаллитов - случайная величина,

⁸ Формула записана в системе СИ.

распределённая вокруг некоторого среднего значения D . Предполагается, что дисперсия ζ этого распределения удовлетворяет условию $\zeta^2 k_F^2 \gg 1$, где k_F – волновое число Ферми металла.

Наличие уже одной межкристаллитной границы в корне изменяет задачу по сравнению со случаем, рассмотренным Фуксом и Зондгеймером. Дело в том, что из-за возможности отражения носителей от границы назад, проводимость плёнки меньше, чем у объёмного материала, даже при зеркальном отражении электронов от её внешней и внутренней поверхности. Поэтому внутренний размерный эффект в такой системе сохраняется и при зеркальном отражении от поверхностей и границ и пропадает только в тривиальном случае $R = 0$, когда межкристаллитная граница просто исчезает, и модель МШД переходит в модель Фукса и Зондгеймера.

Среди допущений первоначальной версии теории МШД [6], существенно упрощающих рассмотрение, одним из основных является пренебрежение внешним размерным эффектом: отражение электронов от верхней и нижней поверхности плёнки считается зеркальным. Это предположение делает задачу, по существу, одномерной и, по сути, аналогичной задаче об отражении-прохождении волн через безграничную плоскостойкую систему с бесконечно большим числом слоёв, толщины которых распределены случайным образом вокруг среднего значения D . Данная аналогия позволяет вычислить вероятность перехода $P(\vec{k}, \vec{k}')$ электрона из состояния \vec{k} в состояние \vec{k}' , вызванного отражением от межкристаллитных границ, методами статистической радиофизики. В конечном итоге, это позволяет представить отношение проводимостей σ/σ_0 , обусловленное внутренним размерным эффектом, в виде:

$$\sigma/\sigma_0 = \Theta_0(R, D, l_0) = 1 - 3\alpha/2 + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln(1 + 1/\alpha), \quad (4)$$

где $\alpha = l_0 R/[D(1 - R)]$.

Как видно, в полученное выражение для σ/σ_0 явным образом не входит толщина плёнки d . Такая особенность формулы (4) является следствием пренебрежения внешним размерным эффектом в модели, использованной в

работе [6]. Зависимость σ/σ_0 от d носит неявный характер, поскольку средний размер зерна D зависит от толщины плёнки.

Вид зависимости $D(d)$ определяется материалом плёнки и диапазоном, в котором изменяется её толщина. Например, в своей работе [6] авторы формулы (4) отмечают, что для алюминиевых плёнок $D \approx d$ в диапазоне толщин $0.1 \div 1$ мкм. В этих условиях допущение

$$D = d \quad (5)$$

позволяет переписать $\Theta_0(R, D, l_0)$ в виде $\tilde{\Theta}_0(R, \xi)$, уменьшив число подгоночных параметров до двух. По этой причине соотношение (5) широко используется при подгонке экспериментальных зависимостей проводимости поликристаллических плёнок от толщины формулой (4). В следующем разделе будет показано, что в диапазоне толщин, которые существенны для расчёта d_{pk} , соотношение (5) не работает, и для описания зависимости $D(d)$ необходимо использовать более сложное выражение, чем (5).

Учёт незеркальности отражения электронов от внешней поверхности плёнки, проведённый в окончательной версии теории МШД [7], приводит к появлению дополнительного слагаемого в выражении для σ/σ_0 , если сравнивать его с формулой (4). Теперь это отношение имеет вид:

$$\sigma/\sigma_0 = \Theta(R, D, l_0, p) = \Theta_0(R, D, l_0) - \frac{6(1-p)}{\pi\xi} \int_0^{\pi/2} d\phi \int_1^\infty dt \frac{\cos^2 \phi}{H^2(t, \phi)} \left(\frac{1}{t^3} - \frac{1}{t^5} \right) \frac{1 - e^{-\xi t H(t, \phi)}}{1 - p e^{-\xi t H(t, \phi)}}, \quad (6)$$

где $\Theta_0(R, D, l_0)$ даётся формулой (4), а $H(t, \phi) = 1 + \frac{\alpha}{\cos \phi \sqrt{1 - 1/t^2}}$.

Хорошо видно, что при $p = 1$ выражение (6) переходит в формулу (4). В другом предельном случае, когда $R = 0$, и, следовательно $\alpha = 0$, а $H(t, \phi) = 1$, отношение σ/σ_0 переходит в $\xi/\Phi_p(\xi)$ теории Фукса – Зондгеймера [см. формулу (2)].

Следует отметить, что использование соотношения (5), как и в случае с Θ_0 , позволяет уменьшить число подгоночных параметров в функции $\Theta(R, D, l_0, p)$ на единицу, переписав её в виде $\tilde{\Theta}(R, \xi, p)$. Однако теперь полученное выражение для подгоночной функции $\tilde{\Theta}(R, \xi, p)$ содержит уже три свободных параметра. В следующем разделе обсуждается, что нужно сделать, чтобы превратить $\tilde{\Theta}(R, \xi, p)$ в средство надёжного определения коэффициентов R и p поликристаллических плёнок на основании подгонки зависимости их проводимости от толщины.

2. Расчёт d_{pk} металлических плёнок

Теперь обсудим, как следует вести расчёт d_{pk} при использовании описанных в предыдущем разделе моделей классического размерного эффекта.

Как отмечалось во Введении, в отсутствие размерного эффекта пик коэффициента поглощения металлического слоя приходится на толщину $d_{pk}^0 = c/(2\pi\sigma_0)$, которая и определяет минимальную толщину d_{min} покрытия электромагнитной защиты из металла с объёмной проводимостью σ_0 . «Включение» размерного эффекта приводит к зависимости проводимости плёнки σ от толщины d , поэтому и определение d_{pk} в этих новых условиях должно учитывать эту особенность.

Если классический размерный эффект оказывает влияние на электронный транспорт, то толщина d_{pk} , согласно Каплану, должна определяться самосогласованным образом из уравнения $d_{pk} = c/[2\pi\sigma(d_{pk})]$, которое, очевидно, может быть переписано в виде

$$d_{pk} = d_{pk}^0/\theta(d_{pk}), \quad (7)$$

где $\theta = \theta(p, \xi)$ для модели внешнего размерного эффекта Фукса – Зондгеймера или $\theta = \Theta(R, p, \xi)$ для теории внутреннего размерного эффекта МШД. В обоих этих случаях уравнение (7) трансцендентно, но может быть решено численно с любой необходимой точностью.

Иногда уравнение (7) удаётся упростить, если использовать для θ разного рода приближённые выражения. Например, в работе [3] Каплан предложил довольно простую, по сравнению с точным выражением, аппроксимацию для $\theta(p, \xi)$ теории Фукса – Зондгеймера, справедливую при $p = 0$. Речь идёт о формуле (53) из его статьи, подстановка которой в (7) приводит, в конечном счёте, к уравнению, корень которого находится методом итераций с высокой скоростью сходимости. Разумеется, и вместо $\Theta(R, p, \xi)$ можно использовать аппроксимации, позволяющие получить для корня уравнения (7) приближённые аналитические выражения. Такие приближения будут рассмотрены далее в разделе, посвящённом расчёту d_{pk} в плёнках золота.

Уравнение (7) было получено для случая свободного металлического слоя, в то время как покрытие электромагнитной защиты это всегда тонкая плёнка металла, напылённая на подложку, толщина которой на четыре-пять порядков превосходит толщину металлического покрытия. Влияние подложки на величину d_{pk} рассматривалось в работе [3], где было показано, что учёт подложки приводит к появлению дополнительного множителя в правой части уравнения (7), в результате чего уравнение для определения d_{pk} приобретает вид:

$$d_{pk} = \frac{(n_1 + n_2)}{2} \frac{a_{pk}^{(0)}}{\theta(d_{pk})}, \quad (8)$$

где n_1 и n_2 – показатели преломления сред, примыкающих к металлическому слою. Именно это уравнение и будет рассматриваться везде далее в настоящей статье, при этом n_1 и n_2 будут полагаться равными 1 и 1,91, соответственно, что соответствует случаю находящейся на воздухе металлической плёнки, напыленной на подложку из кварцевого стекла марки КУ-1.⁹ Зависимости коэффициентов \mathfrak{R} , T и A образцов такого типа от толщины плёнки меди или платины исследовались в работе [9] в трёхсантиметровом диапазоне СВЧ.

⁹ В.А. Вдовин, частное сообщение (2020).

Выводы настоящей статьи относительно d_{pk} плёнок золота на аналогичных подложках могут быть проверены на установке, описанной в [9].

Поскольку статья посвящена изучению влияния внутреннего размерного эффекта на d_{pk} , то входящая в уравнение (8) функция $\theta(d_{pk})$ определяется формулой (6). Обсудим теперь, как можно определить параметры, от которых зависит эта функция.

Как видно из (6), для расчёта по этой формуле требуется знать 4 параметра: l_0, D, p , и R . Первый из них может быть легко пересчитан из σ_0 по формуле (3), справедливой для кубических металлов с поверхностью Ферми, близкой к сферической. По определению, σ_0 – проводимость объёмного металла с таким же количеством примесей и дефектов, как и в тех плёнках, в которых рассматривается размерный эффект. По факту, это означает, что σ_0 – проводимость плёнки с толщиной $d \gg l_0$ (обычно, 2 – 10 микрон), напылённой в тех же технологических условиях, что и тонкие образцы с размерным эффектом. Практика показывает, что σ_0 мало отличается от проводимости слитков металла σ_i , которая приводится в справочниках. Поэтому при проведении расчётов d_{pk} всегда будем полагать, что $\sigma_0 = \sigma_i$.

Как отмечалось в предыдущем разделе, средний размер зерна D зависит от толщины плёнки, и для расчёта по формуле (6) необходимо знать вид функции $D(d)$. Приводившийся выше пример такой зависимости – соотношение (5) – был предложен для довольно толстых плёнок Al, для целей же электромагнитной защиты интерес представляют плёнки с толщинами на порядок меньше: от десятков до нескольких сотен ангстрем. Зависимости $D(d)$ в плёнках Cu, Au и Al толщиной несколько сот ангстрем изучались в работе [10]. Оказалось, что уже в этом диапазоне толщин отклонения от формулы (5) весьма значительны. Если аппроксимировать $D(d)$ степенной зависимостью вида $D(d) \propto d^\beta$, то например, для тонких плёнок алюминия в работе [10] был получен показатель $\beta \approx 0,2$.

Интересующая нас толщина d_{pk} - величина порядка одного-двух десятков ангстрем, поэтому для её расчёта необходимо знать вид зависимости $D(d)$ на масштабе толщины порядка одного ангстрема. Из литературы известно, что на самых начальных этапах роста плёнки, кристаллиты растут с увеличением толщины очень быстро, затем эта скорость резко снижается и зависимость $D(d)$ выходит на насыщение. Ясно, что охарактеризовать такое поведение с помощью простых степенных зависимостей из работы [10] невозможно. Эмпирическая зависимость

$$\frac{1}{D(d)} = \frac{1}{Cd} + \frac{1}{D_{\infty}}, \quad (9)$$

хорошо описывающая особенности роста кристаллитов плёнки, была предложена в работе [11]. Видно, что коэффициент C характеризует скорость роста на самых ранних стадиях, а параметр D_{∞} определяет предельно достижимый размер кристаллитов. Везде далее при проведении расчётов d_{pk} всегда будет использоваться соотношение (9). Входящие в него параметры C и D_{∞} индивидуальны для каждого металла и могут быть определены из подгонки формулой (9) эмпирических зависимостей $D(d)$.

Изучение размерного эффекта в тонких монокристаллических эпитаксиальных плёнках позволяет определить параметр зеркальности p . Для этой цели также можно использовать крупноблочные поликристаллические плёнки с продольным размером зерна много большим l_0 , в которых рассеяние на межкристаллитных границах много меньше рассеяния на внешних поверхностях. Как отмечалось в предыдущем разделе, подгонка зависимостей проводимости таких образцов от толщины функцией Фукса – Зондгеймера даёт вполне надёжное значение зеркальности, поскольку подгоночная функция зависит лишь от двух параметров.

Коэффициент отражения от межкристаллитных границ R может быть определён экспериментально методом сканирующей туннельной потенциометрии. К сожалению, до настоящего времени это было сделано только для золота в работе [12]. Для остальных металлов R можно попытаться

определить из подгонки данных по размерному эффекту в поликристаллических плёнках теорией МШД. Сразу следует сказать, что такая процедура сопряжена с гораздо большими трудностями, чем описанный выше способ определения зеркальности p . Во-первых, требуется визуализация структуры плёнки методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и статистический анализ полученных изображений с целью определения среднего размера кристаллита D и его зависимости от толщины плёнки. Использование атомно-силовой или, тем более, сканирующей электронной микроскопии не даёт таких достоверных сведений о структуре плёнки и распределении размеров кристаллитов в ней, как ПЭМ. Во-вторых, необходимо принять допущение $\sigma_0 = \sigma_i$, которое обсуждалось выше. Только при соблюдении этих условий в формуле (6) остаётся два подгоночных параметра, и результаты подгонки становятся надёжными.

Следует сказать и о возможности квантово-механического расчёта R , исходя из первых принципов. Работы в этом направлении начались в середине 60-х годов прошлого века. В настоящее время наибольшее количество статей в этой области посвящено расчёту коэффициента отражения R от границ кристаллитов-двойников методом функционала плотности. Зачастую полученные значения отличаются в разы для различных кристаллографических ориентаций границ, тем не менее, сопоставление однотипных коэффициентов, рассчитанных для разных металлов, позволяет получить, по-видимому, правильную картину изменения R при переходе от одного металла к другому.

В заключение данного раздела рассмотрим чисто вычислительные детали решения трансцендентного уравнения (8).

При нахождении корня этого уравнения численными методами, многократно, для разных значений толщины, вычисляется правая его часть. Точность, с которой вычисляется $\theta(d_{pk})$, определяет точность решения, скорость сходимости к нему и количество промежуточных итераций. Выражение (6), определяющее $\theta(d_{pk})$ в модели МШД, состоит из двух слагаемых, вычисление одного из которых на ЭВМ сопряжено с некоторыми

проблемами, связанными с потерей точности при вычитании близких по величине чисел. Речь идёт о вычислении первого слагаемого в (6), которое определяется формулой (4).

Действительно, расчёт на современной 64-битной персональной ЭВМ значений Θ_0 по этой формуле при $\alpha = 10^4$ и 10^5 даёт $1,08 \cdot 10^{-4}$ и $-0,1965$, в то время как правильные значения этого выражения, вычисленные по асимптотической формуле $3/(4\alpha)$, составляют $7,5 \cdot 10^{-5}$ и $7,5 \cdot 10^{-6}$, соответственно. Чтобы избежать проблем с точностью, выражение (4) следует заменить эквивалентным интегральным представлением:

$$\Theta_0 = 1 - 3\alpha/2 + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln(1 + 1/\alpha) = \frac{6}{\pi} \int_0^{\pi/2} d\theta \int_0^{\pi/2} d\varphi \frac{\cos^2 \varphi \sin^3 \theta}{1 + \frac{\alpha}{\sin \theta \cos \varphi}}. \quad (10)$$

По сравнению с вычислением Θ_0 по формуле (4), расчёт этого двукратного интеграла, разумеется, требует гораздо большего числа операций, но зато он совершенно не имеет никаких проблем с точностью.

Обсудим теперь вычисление второго слагаемого в (6). Во внутреннем интеграле удобно сделать замену переменной $t = 1/y$, чтобы перейти к интегралу по y с конечными пределами интегрирования:

$$\int_0^1 dy \frac{\cos^2 \phi}{H^2(1/y, \phi)} (y - y^3) \frac{1 - e^{-\xi H(1/y, \phi)/y}}{1 - p e^{-\xi H(1/y, \phi)/y}}, \text{ где } H(1/y, \phi) = 1 + \frac{\alpha}{\cos \phi \sqrt{1 - y^2}}.$$

Именно такая форма внутреннего интеграла в (6) будет использоваться при численном решении уравнения (8).

3. d_{pk} в плёнках золота

На внешней электронной оболочке золота – один s электрон ($Z = 1$), поэтому концентрация электронов проводимости в Au составляет $n = Z N_A \frac{\rho}{M} \approx 5,9 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$.¹⁰ Золото – кубический металл с поверхностью Ферми, близкой к сферической, поэтому, в соответствии с формулой (3), σ_0 и l_0 в нём связаны

¹⁰ N_A - число Авогадро, $\rho = 19,3 \text{ г}\cdot\text{см}^{-3}$, $M = 196,97 \text{ г}\cdot\text{моль}^{-1}$ – плотность и молярная масса золота, соответственно.

соотношением $\sigma_0/l_0 = 1,189 \cdot 10^{11} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. Приведённые в справочнике [13] значения удельного сопротивления $\rho_{273} = 2,06 \cdot 10^{-6} \text{ Ом} \cdot \text{см}$ при $T = 273 \text{ К}$ и его температурного коэффициента $\alpha_{273} = d\rho/(\rho_{273}dT) = 402 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}$ позволяют рассчитать ρ_0 и σ_0 при комнатной температуре ($T = 295 \text{ К}$): $\rho_0 = \rho_{273}(1 + \alpha_{273}\Delta T) = 2,24 \cdot 10^{-6} \text{ Ом} \cdot \text{см}$, $\sigma_0 = 1/\rho_0 = 4,46 \cdot 10^5 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$. Отсюда легко получается первый необходимый для расчёта d_{pk} параметр l_0 : $l_0 \approx 375 \text{ \AA}$.

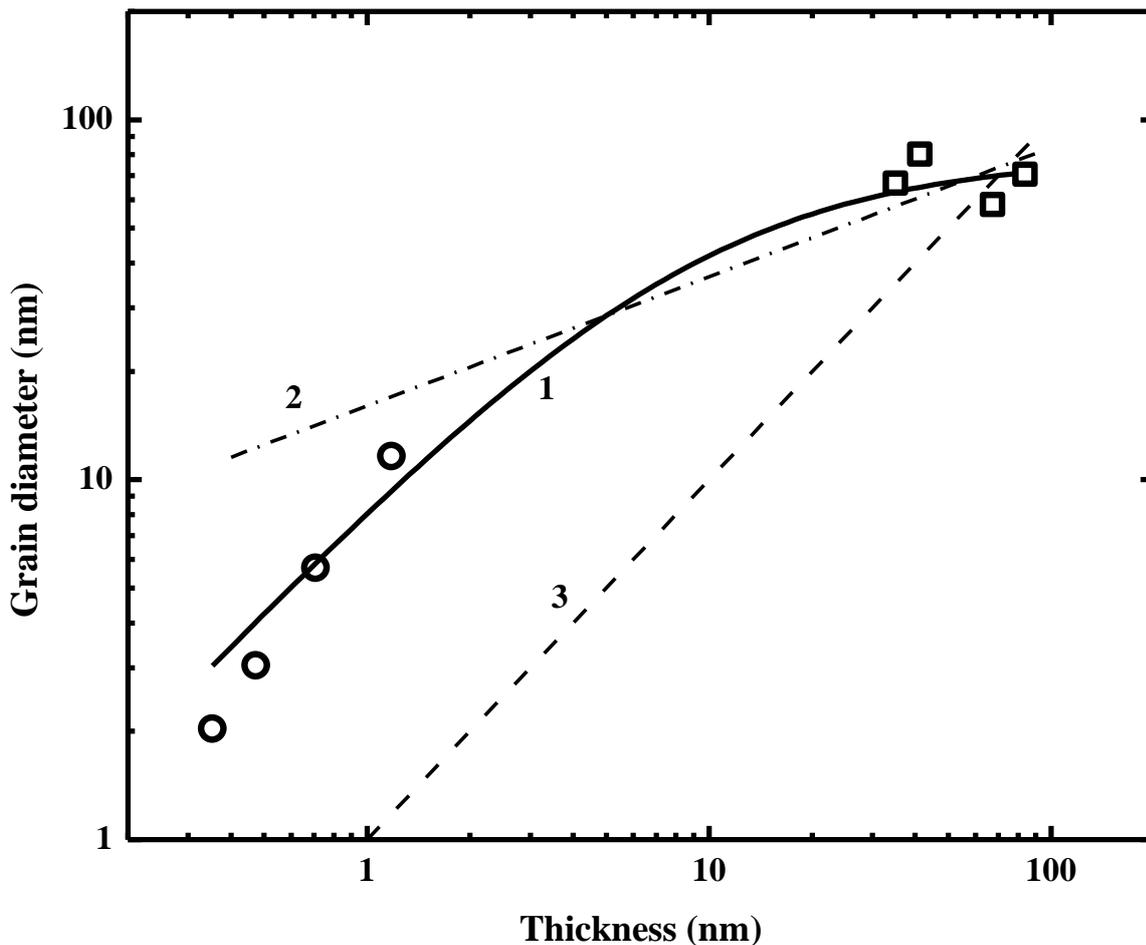


Рис. 1. Зависимость среднего размера кристаллита в плёнке золота от её толщины в двойном логарифмическом масштабе. Кружки - экспериментальные данные, заимствованные из работы [14], квадраты - из статьи [10]. Кривая 1 - результат подгонки экспериментальных точек функцией (9): $D(d) = ([Cd]^{-1} + [D_\infty]^{-1})^{-1}$, $C = 9 \pm 2$, $D_\infty = 79 \pm 7 \text{ нм}$. Штрих - пунктирная прямая 2 - аппроксимация зависимости $D(d)$, предложенная в работе [10]: $D(d) = 16,03 \cdot d^{0,36}$. Штриховая линия 3 - зависимость (5), предложенная в работе [6].

Зависимость среднего размера зерна от толщины плёнок золота на самых ранних стадиях роста плёнки исследовалась в работе [14]. Полученные в ней значения $D(d)$ представлены на рисунке 1 наряду с данными из статьи [10]. Сплошная линия – результат подгонки экспериментальных точек зависимостью (9). Также на рисунке показаны различные аппроксимации, предложенные для зависимости $D(d)$ в работах [6] и [10]. Хорошо видно, что только формула (9) описывает весь массив экспериментальных данных наилучшим образом. Поэтому в качестве зависимости $D(d)$ при расчётах d_{pk} будем использовать именно эту формулу со значениями параметров C и D_∞ , которые приведены в подписи к рисунку 1.

Параметр зеркальности p в тонких монокристаллических эпитаксиальных плёнках золота довольно велик и составляет около 0,8 [8] – 0,85 [11] для плёнок, выращенных вдоль направления $\langle 111 \rangle$, и 0,65 [11] для направления $\langle 100 \rangle$. Ещё большее значение зеркальности - 0,9 - наблюдается у отожжённых на воздухе плёнок, выращенных на стеклянных подложках с подслоем из окиси висмута [15]. Следует также упомянуть и о возможности увеличения коэффициента зеркальности золотых плёнок путём нанесения на их поверхность наноплёнок Ленгмюра-Блоджетт (ЛБ) на основе поверхностно-активных производных синтетических металлов [16].

На практике, покрытия электромагнитной защиты наносятся, главным образом, на пластики просто по причине их дешевизны. Ясно, что отжигать такие покрытия, да ещё на воздухе, нет никакой возможности. ЛБ нанопокртия также пока не получили широкого распространения из-за крайней чувствительности к параметрам окружающей среды, которая часто бывает агрессивной в сферах применения устройств, нуждающихся в электромагнитной защите.

Практические покрытия электромагнитной защиты - это всегда поликристаллические плёнки со случайной кристаллографической ориентацией направления роста кристаллитов. Если предположить, что кристаллиты, выросшие вдоль направления $\langle 111 \rangle$, присутствуют в такой плёнке в том же

количестве, что и кристаллиты, рост которых шёл вдоль $\langle 100 \rangle$, то эффективно зеркальность всего конгломерата кристаллитов можно попытаться охарактеризовать средним арифметическим значением зеркальностей эпитаксиальных плёнок упомянутых направлений роста. Поэтому при проведении расчёта d_{pk} будем считать $p = (0,65 + 0,85) / 2 = 0,75$.

Как отмечалось выше, коэффициент отражения от межкристаллитных границ R в золоте известен из исследований поликристаллических плёнок методом сканирующей туннельной потенциометрии. В статье [12] приводятся два значения этого коэффициента (0,9 и 0,7), по-видимому, полученные для границ с разной кристаллографической ориентацией. При расчёте d_{pk} будем полагать $R = 0,9$. Такой выбор подкрепляется выводами работы [17], где изучался электронный транспорт в золотых поликристаллических нанопроволоках, и было обнаружено, что наилучшая аппроксимация экспериментальных данных комбинацией теорий внутреннего и внешнего размерного эффекта достигается именно при $R = 0,9$. Следует, однако, отметить, что такое значение R в два раза превосходит значение, которое получается при анализе зависимостей проводимости поликристаллических плёнок от толщины на основе теории МШД (см., например работу [11]). На это расхождение обратили внимание сами авторы статьи [12], предположив, что уменьшение R происходит из-за «усреднения» R по всем возможным кристаллографическим ориентациям межкристаллитных границ. Однако в [17] следов такого усреднения обнаружено не было. Данное противоречие указывает на то, что вопрос о значении R в поликристаллических плёнках золота по-прежнему открыт. Поэтому целесообразно рассчитать d_{pk} и для $R = 0,45$. Сравнивая расчётные d_{pk} с экспериментальными значениями, получаемыми из анализа зависимостей СВЧ коэффициентов отражения, прохождения и поглощения золотых плёнок от толщины, можно решить вопрос о правильном значении R .

Численное решение уравнения (8) проводилось в среде Matlab по программе, приведённой в приложении. Вычисления Θ_0 велись с использованием интегрального представления (10). Расчётные значения d_{pk} оказываются равными 36,5 Å для $R = 0,9$ и 12,9 Å для $R = 0,45$. Анализ этих результатов будет проведён в следующем разделе. Здесь же рассмотрим возможность получения приближённых аналитических решений уравнения (8).

Как указывалось выше, параметр зеркальности p в золоте весьма значителен. Как видно из формулы (6), при p близком к единице второй член в формуле, содержащий двукратное интегрирование, становится малым по сравнению с первым членом. В этих условиях уравнение (8) может быть упрощено путём замены $\Theta(R, p, \xi) \approx \Theta_0(R, \xi)$. Приближённое значение корня получающегося при этом уравнения может быть найдено аналитически.

Действительно, поскольку коэффициент R в золоте близок к единице, то входящий в $\Theta_0(R, \xi)$ параметр $\alpha = l_0 R / [D(1 - R)]$ велик даже в случае, когда l_0 и D одного порядка величины. При больших α выражение для $\Theta_0(R, \xi)$ может быть упрощено путём разложения логарифма по степеням $1/\alpha$, при этом уравнение (8) приобретает вид:

$$\frac{(n_1 + n_2) d_{pk}^{(0)}}{2 d_{pk}} = \frac{3}{4\alpha} - \frac{3}{5\alpha^2} + \dots = 3 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{(-1)^{m+1}}{(m+3)\alpha^m} \quad (11).$$

Для нахождения d_{pk} в первом приближении¹¹ отбросим все члены ряда кроме первого. В результате, для определения $d_{pk}^{(1)}$ получим уравнение $d_{pk}^{(1)} = \frac{4d_{pk}^0 l_0 R}{3(1-R)} \frac{(n_1 + n_2)}{2} \frac{1}{D(d_{pk}^{(1)})}$. Подставляя в него выражение для $D(d_{pk}^{(1)})$ в соответствии с формулой (9) и обозначая $A = \frac{4d_{pk}^0 l_0 R}{3(1-R)} \frac{(n_1 + n_2)}{2}$, приходим к квадратному уравнению $d_{pk}^{(1)} = A/D_{\infty} + A/(C d_{pk}^{(1)})$ с положительным корнем

¹¹ Обозначим его как $d_{pk}^{(1)}$.

$$d_{pk}^{(1)} = \left(A/D_{\infty} + \sqrt{(A/D_{\infty})^2 + 4A/C} \right) / 2, \quad (12)$$

равным 34.5 Å, что довольно близко к точному значению 35,55 Å, получаемому численным методом.

Полученное значение $d_{pk}^{(1)}$ может быть уточнено по теории возмущений. Для этого сохраняем в (11) первый и второй члены ряда и заменяем $d_{pk}^{(1)}$ в правой и левой частях уравнения на $d_{pk}^{(1)} + \Delta$. Далее раскладываем левую часть уравнения и $D(d_{pk}^{(1)} + \Delta)$ в правой части в ряд Тейлора первого порядка по Δ и преобразуем правую часть, сохраняя только члены линейные по Δ . В результате получим простое уравнение для определения Δ , решая которое найдём, что

$$\Delta = \frac{\frac{3}{5} \left(\frac{D}{rl_0} \right)^2}{\frac{\beta}{rl_0} \left(\frac{3}{4} - \frac{6D}{5rl_0} \right) + \frac{(n_1 + n_2)}{2} \frac{d_{pk}^{(0)}}{(d_{pk}^{(1)})^2}} \approx 1.11 \text{ Å}^{12}$$

Видно, что полученное значение $d_{pk}^{(2)} = d_{pk}^{(1)} + \Delta \approx 35.58 \text{ Å}$ отличается от точного на 0,1%.

4. Обсуждение результатов

Сопоставим величины d_{pk} , получаемые при использовании различных моделей размерного эффекта в плёнках золота. Полученное выше значение d_{pk} было рассчитано в рамках теории внутреннего размерного эффекта МШД, в то время как работе [3] использовалась теория внешнего размерного эффекта Фукса и Зондгеймера. К сожалению, напрямую использовать результаты этой статьи для сравнения d_{pk} нельзя, поскольку предложенная в [3] аппроксимация для $\theta(p, \xi)$ теории Фукса – Зондгеймера и следующие из неё соотношения справедливы только в случае $p = 0$, в то время как в плёнках золота

¹² В данном выражении $r \equiv R/(1 - R) = 9$, $D = D(d_{pk}^{(1)}) \approx 222,8 \text{ Å}$, $\beta =$

$$D'(d_{pk}^{(1)}) = C \left(\frac{1}{1 + Cd_{pk}^{(1)}/D_{\infty}} \right)^2 \approx 4,64.$$

зеркальность весьма значительна (см. предыдущий раздел). Для расчёта d_{pk} , обусловленной внешним размерным эффектом в условиях ненулевой зеркальности, можно воспользоваться программой, которая применялась выше для вычисления d_{pk} по теории МШД, поскольку, как отмечалось в разделе 2, при $R = 0$ теория МШД переходит в теорию Фукса и Зондгеймера. Расчёт по указанной программе при $R = 0$ и $p = 0,75$ даёт $d_{pk}^{FS} = 7,2 \text{ \AA}$, что в пять раз меньше значения $36,5 \text{ \AA}$, получаемого по теории МШД при $R = 0,9$. Столь высокое расхождение между предсказаниями теорий, основанных на учёте внешнего и внутреннего размерного эффекта, обязано высокой величине коэффициента отражения R в золоте. Это хорошо видно при сравнении d_{pk}^{FS} с $12,9 \text{ \AA}$, которые получаются по теории МШД для $R = 0,45$.

Как отмечалось во Введении, для целей электромагнитной защиты часто требуются плёнки минимально возможной толщины. Поскольку параметр d_{pk} напрямую определяет эту толщину, обсудим, какими свойствами должны обладать металлы, чтобы величина d_{pk} их плёнок была минимальной.

Ранее уже указывалось на то, что с физической точки зрения отличие d_{pk} от весьма малой величины d_{pk}^0 всецело обусловлено размерным эффектом, поэтому вопрос минимальности d_{pk} сводится, по существу, к задаче минимизации внутреннего и внешнего размерного эффектов в плёнках. В модели МШД за первый эффект отвечает параметр R , а за второй – p .

Выше, на примере золота, мы видели, что для обеспечения малых значений d_{pk} коэффициент отражения электронов от межкристаллитных границ R в плёнках должен быть небольшим. На микроскопическом уровне это означает, что при переходе из кристаллита в кристаллит потенциал ионных остовов металла не должен претерпевать резких изменений, вызывающих сильное возмущение движения электронов и рассеяние их назад. Практически это означает, что надо выбирать металлы, в которых слабо выражено присутствие кристаллитов-двойников.

При малых R становится заметным влияние незеркальности отражения электронов от внешних поверхностей плёнки и связанный с этим внешний размерный эффект. Как отмечалось в разделе 2, для минимизации размерного эффекта этого типа надо выбирать металлы, в которых коэффициент зеркальности p максимально близок к единице.

Анализ формулы (12) позволяет увидеть и более тонкие, чем R и p , параметры, влияющие на величину d_{pk} . Речь идёт о коэффициентах C и D_∞ , определяющих с какой скоростью идёт рост кристаллитов плёнки с увеличением её толщины, и до какой предельной величины может пойти их размер. Из формулы видно, что для минимизации d_{pk} надо выбирать металлы с максимально большими значениями этих параметров. С физической точки зрения совершенно понятно, почему это так: чем быстрее растут кристаллиты, тем при меньшей толщине начинает выполняться условие $D \gg l_0$, при котором влияние размерного эффекта становится пренебрежимо малым.

На протяжении всей статьи неявно предполагалось, что металлические плёнки сколь угодно малой толщины являются сплошными. На практике же плёнки, полученные термическим или магнетронным распылением, становятся полусплошными и приобретают металлический характер проводимости лишь начиная с некоторой характерной толщины d_{perc} , величина которой зависит от металла и материала подложки. Плёнки толщины менее d_{perc} являются островковыми. В работе [18] исследовалась зависимость коэффициента прохождения T электромагнитных волн сантиметрового диапазона через такие плёнки от их толщины. Было найдено, что плёнки остаются прозрачными для СВЧ излучения в диапазоне толщин, в котором их островковая структура подтверждается электронно-микроскопическим исследованием.

Очевидно, что островковые плёнки совершенно непригодны для целей электромагнитного экранирования, и поэтому определение минимальной толщины d_{min} слоя, обеспечивающего электромагнитную защиту, должно быть уточнено. Если ранее считалось, что эта толщина просто равна $d_{refl} \equiv$

$(3 \div 5)d_{pk}$, то с учётом прозрачности островковых плёнок в СВЧ диапазоне, d_{min} надо переопределить следующим образом: $d_{min} = \max \{d_{refl}, d_{perc}\}$.

Металлы, у которых $d_{refl} \cong d_{perc}$, являются наиболее оптимальным материалом для защитных покрытий. Действительно, если $d_{refl} \ll d_{perc}$, то потенциальные преимущества, обусловленные малостью d_{refl} , всё равно не проявляются до тех пор, пока плёнка не перестанет быть островковой. В обратном предельном случае, когда $d_{refl} \gg d_{perc}$, экранирующие свойства появляются в плёнке, когда её толщина уже довольно значительна. В этом случае она может оказаться малопрозрачной для излучения видимого диапазона частот, что неприемлемо для некоторых практически важных приложений, указанных во Введении.

Теперь применим данный критерий, чтобы выяснить, является ли золото оптимальным материалом для покрытий электромагнитной защиты.

В разделе 4 было вычислено, что при $R = 0,9$ толщина d_{pk} составляет примерно $36,5 \text{ \AA}$, поэтому $d_{refl} = (3 \div 5)d_{pk} \approx 110 \div 180 \text{ \AA}$. Толщина d_{perc} , при которой плёнка золота на стекле перестаёт быть островковой, составляет примерно 70 \AA .¹³ Поэтому, в соответствии с предложенным критерием, следует считать золото неоптимальным материалом. С другой стороны, при $R = 0,45$ толщина $d_{pk} \approx 12,9 \text{ \AA}$, соответственно $d_{refl} \approx 40 \div 65 \text{ \AA} \cong d_{perc}$, что позволяет считать золото оптимальным материалом для покрытий электромагнитной защиты.

Таким образом, видно, что ответ на поставленный выше вопрос оптимальности полностью определяется величиной коэффициента отражения электронов от межкристаллитных границ R . В разделе 4 указывалось, что вопрос о величине этого коэффициента в золоте не решён окончательно, и разные методики дают значения, отличающиеся в два раза. Детальное исследование зависимостей коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины плёнок золота может помочь устранить эту неопределённость.

¹³ См., например, рис. 1 в работе [10].

Действительно, как указывалось во Введении, в окрестности d_{pk} эти коэффициенты изменяются довольно значительно, поэтому подгонка экспериментальных данных зависимостями из статьи [3] способна дать весьма надёжное значение d_{pk} . Используя уравнение (8), в котором для $\theta(d_{pk})$ берётся выражение (6), легко рассчитать, какое R соответствует полученному значению d_{pk} . Основной проблемой в реализации этой программы является получение сплошных или полусплошных плёнок золота с толщиной менее 70 Å. Можно попытаться решить эту задачу, напыляя золото на подслое германия, который смачивается золотом гораздо лучше, чем стекло.

Заключение

В статье было исследовано влияние внутреннего размерного эффекта, обусловленного поликристаллической структурой металлических плёнок, на коэффициенты отражения, прохождения и поглощения в них электромагнитных волн СВЧ диапазона. Для учёта этого типа размерного эффекта, при решении уравнения (8) были использованы соотношения теории МШД. Расчёты, проведённые для случая плёнок золота, показали, что в зависимости от величины коэффициента отражения электронов от межкристаллитных границ, параметр d_{pk} , определяющий зависимости коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины, отличается в 2 - 5 раз от тех значений, которые получаются при расчётах, опирающихся на использование теории внешнего размерного эффекта Фукса-Зондгеймера. Проанализирована зависимость d_{pk} от параметров теории МШД - зеркальности и коэффициента отражения от межкристаллитных границ. Получено приближённое аналитическое выражение для d_{pk} , справедливое при R , близком к единице. Анализ данного выражения позволил установить зависимость d_{pk} от параметров, определяющих скорость роста и предельно достижимые размеры кристаллитов. Таким образом, в настоящей работе зависимости коэффициентов \mathfrak{R} , T и A от толщины были увязаны с микроструктурой плёнок. Сформулированы рекомендации, позволяющие выбирать металлы, наиболее оптимальные для покрытий электромагнитной

защиты. Рассмотрено соответствие золота выдвинутому критерию оптимальности.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИРЭ им. В.А. Котельникова РАН.

Приложение

Программа нахождения корня трансцендентного уравнения (8) в среде Matlab.

```
lo = 375; % A, длина свободного пробега в объёмном золоте при 295
градусах
R = 0.9; % коэффициент отражения электрона от межкристаллитной
границы в Au
p = 0.75; % коэффициент зеркальности отражения от внешней
поверхности плёнки
rho = R / ( 1 - R );
Lambda_0 = 1.173; % A, = c/(2*pi*sigma), для Au
n2 = 1.91; % СВЧ показатель преломления кварцевого стекла
n1 = 1.0; % показатель преломления воздуха

x = fsolve(@ (x)
d_pk_MS_p_is_nonzero_Sambles_D_d(x,n1,n2,Lambda_0,rho,lo,p), 41, ...
optimset('Display','iter','TolFun',1e-16,'TolX',1e-9));
```

Данная программа вызывает функцию `d_pk_MS_p_is_nonzero_Sambles_D_d`, в которой и содержится собственно уравнение (8).

```
function F =
d_pk_MS_p_is_nonzero_Sambles_D_d(x,n1,n2,Lambda_0,rho,lo,p)

D_0 = 790; % A, для золота
C = 9; % безразмерный параметр, для золота

D = 1 / (1/D_0 + 1/(C*x)); % Зависимость D(d), предложенная
Sambles et al

Funct_MS_grains = @(phi,theta) ...
cos(phi).^2.*sin(theta).^3./(1+rho*lo./(D*sin(theta).*cos(phi)));

Q = dblquad(Funct_MS_grains,0,pi/2,0,pi/2,1.e-8,@quadl);

Integral_form_MS_grains = 6*Q/pi; % вклад от зёрен по теории MSJ
(интегральная форма)
```

```

Surf_term_MS = @(phi,y) ...
    ((1-exp(-(x./(lo*y)).*(1+rho*lo./(D*cos(phi)).*sqrt(1-
y.^2)))))./...
    (1-p*exp(-(x./(lo*y)).*(1+rho*lo./(D*cos(phi)).*sqrt(1-
y.^2))))).*...
    ((y-y.^3).*cos(phi).^2)./( (1+rho*lo./(D*cos(phi)).*sqrt(1-
y.^2))).^2 );

Q = dblquad(Surf_term_MS,0,pi/2,0,1,1.e-8,@quadl);

Ratio_surface_MS = 6*(1 - p)*Q*lo/(pi*x); % вклад от поверхности
по теории MSJ

F = (n1+n2)/2*Lambda_0/x - Integral_form_MS_grains +
Ratio_surface_MS;

```

Литература

1. Стрэттон Дж. А. Теория электромагнетизма. М., Л. : ОГИЗ, 1948. 541 с.
2. Каплан А.Е. Об отражательной способности металлических плёнок в СВЧ- и радиодиапазоне // Радиотехника и электроника. 1964. Т. 9. №10. С.1781-1787.
3. Kaplan A.E. Metallic nanolayers: a sub-visible wonderland of optical properties // Journal of the Optical Society of America B. 2018. Vol.35. №6. P.1328-1340. <https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.001328>
4. Fuchs K. The conductivity of thin metallic films according to the electron theory of metals // Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. 1938. Vol.34. №1. P.100-108. <https://doi.org/10.1017/S0305004100019952>
5. Sondheimer E.H. The mean free path of electrons in metals // Advances in Physics. 1952. Vol.1. №1. P.1-42. <https://doi.org/10.1080/00018735200101151>
6. Mayadas A.F., Shatzkes M., Janak J.F. Electrical resistivity model for polycrystalline films: the case of specular reflection at external surfaces // Applied Physics Letters. 1969. Vol.14. №11. P.345-347. <https://doi.org/10.1063/1.1652680>

7. Mayadas A.F., Shatzkes M. Electrical-Resistivity Model for Polycrystalline Films: the Case of Arbitrary Reflection at External Surfaces // Phys. Rev. B 1970. Vol.1. №4. P.1382- 1389. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.1.1382>
8. Ларсон Д.К. Размерные эффекты в электропроводности тонких металлических плёнок и проволок, в кн.: Физика тонких плёнок, М. : Мир 1973. Т.VI. С.97-170.
9. Андреев В.Г., Вдовин В.А., Пронин С.М., Хорин И.А. Измерение оптических коэффициентов нанометровых металлических плёнок на частоте 10 ГГц // Журнал радиоэлектроники [электронный журнал]. 2017. № 1. URL: <http://jre.cplire.ru/jre/nov17/17/text.pdf>
10. Camacho J.M., Oliva A.I. Surface and grain boundary contributions in the electrical resistivity of metallic nanofilms // Thin Solid Films. 2006. Vol.515. P.1881-1885. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2006.07.024>
11. Sambles J.R, Elsom K.C., Jarvis D.J. The electrical resistivity of gold films // Phil. Trans. R. Soc. Lond., Ser. A. 1982. Vol. 304. P.365-396. <https://doi.org/10.1098/rsta.1982.0016>
12. Schneider M.A., Wenderoth M., Heinrich A.J., Rosentreter M.A., Ulbrich R.G. Current transport through single grain boundaries: A scanning tunneling potentiometry study // Applied Physics Letters. 1996. Vol.69. P.1327- 1329.
13. Физические величины: Справочник / А.П. Бабичев, Н.А. Бабушкина, А.М. Братковский и др.; Под. ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова.- М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.
14. Klages S., Schöck M., Sürgers C., Löhneysen H. v. Electronic Transport in Ultrathin Gold Films on Si(111) // Journal of Low Temperature Physics 2004. Vol.137. № 3/4. P.509- 522.
15. Lucas M.S.P. The effects of surface layers on the conductivity of gold films // Thin Solid Films 1968. Vol.2. № 4. P.337-352. [https://doi.org/10.1016/0040-6090\(68\)90039-4](https://doi.org/10.1016/0040-6090(68)90039-4)

16. Галчѐнков Л.А., Пятайкин И.И. Увеличение зеркальности отражения электронов проводимости в плѐнках золота, покрытых нанослоями Ленгмюра -Блоджетт. Журнал радиоэлектроники [электронный журнал]. 2019. № 11. <https://doi.org/10.30898/1684-1719.2019.11.6>
17. Durkan C., Welland M. E. Size effects in the electrical resistivity of polycrystalline nanowires // Phys. Rev. B 2000. Vol. 61. №20. P.14215- 14218. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.14215>
18. Khorin I., Orlikovsky N., Rogozhin A., Tatarintsev A., Pronin S., Andreev V., Vdovin V. Optical coefficients of nanometer-thick copper and gold films in microwave frequency range // Proc. of SPIE. 2016. Vol.10224. P.1022407-1-1022407-7.

Для цитирования:

Пятайкин И.И. Влияние внутреннего размерного эффекта в поликристаллических плѐнках металлов на коэффициенты отражения, прохождения и поглощения в них электромагнитных волн СВЧ диапазона. Журнал радиоэлектроники [электронный журнал]. 2020. №10. <https://doi.org/10.30898/1684-1719.2020.10.5>