

多晶 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电输运性质研究

周定邦 刘新典 李志青

Electrical transport properties of polycrystalline $\text{TaN}_{1-\delta}$ films

Zhou Ding-Bang Liu Xin-Dian Li Zhi-Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 197302 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.197302

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.197302>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

对称双势垒量子阱中自旋极化输运的时间特性

Time of spin-polarized tunneling through a symmetric double-barrier quantum well structure

物理学报.2013, 62(8): 087303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.087303>

费米超流气体在么正极限区域的非线性 Ramsey 干涉

Nonlinear Ramsey interference of Fermi superfluid gases in unitarity regime

物理学报.2012, 61(19): 197301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.197301>

铁基 Heusler 合金 $\text{Fe}_2\text{Co}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Si}$ 的结构、磁性和输运性质的研究

Structural magnetic transport and half-metallic properties of $\text{Fe}_2\text{Co}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Si}$ Heusler alloys

物理学报.2012, 61(14): 147304 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.147304>

NdNi_2Ge_2 化合物的结构和电磁输运性质

Structure and electromagnetic transport properties of compound NdNi_2Ge_2

物理学报.2011, 60(10): 107306 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.107306>

$\beta\text{-Zn}_4\text{Sb}_3/\text{Zn}_{1-\delta}\text{Al}_\delta\text{O}$ 复合材料的制备及热电性能研究

Preparation and thermoelectric properties of $\beta\text{-Zn}_4\text{Sb}_3/\text{Zn}_{1-\delta}\text{Al}_\delta\text{O}$

物理学报.2011, 60(6): 067201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.067201>

多晶 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电输运性质研究*

周定邦 刘新典† 李志青

(天津大学理学院, 天津市低维材料物理与制备技术重点实验室, 天津 300072)

(2015年3月18日收到; 2015年5月27日收到修改稿)

利用射频溅射法在石英玻璃基底上制备了一系列面心立方结构的多晶 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 并对其晶体结构和 2—350 K 温度范围的电子输运性质进行了系统研究. 薄膜呈多晶结构, 并且平均晶粒尺寸随着基底温度的升高逐渐增大. 电输运测量结果表明, $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜在 5 K 以下表现出类似超导体-绝缘体颗粒膜的电输运性质; 随着温度的升高, 薄膜在 10—30 K 表现出类似金属-绝缘体颗粒膜的性质; 在 70 K 以上, 热涨落诱导的隧穿导电机理主导着电阻率的温度行为. 我们的结果表明: $\text{TaN}_{1-\delta}$ 多晶薄膜的类颗粒膜属性使其具有较高的电阻率和负的温度系数.

关键词: 电输运性质, 颗粒薄膜, 跳跃电导

PACS: 73.61.At, 72.80.Tm, 73.40.Gk

DOI: 10.7498/aps.64.197302

1 引言

在过去的几十年, 面心立方结构的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ (δ 一般介于 -0.3 和 0.1 之间) 材料因其优越的物理、化学及机械性能 (如高硬度、耐磨、化学惰性、热稳定性以及低的电阻温度系数) 而引起人们的广泛关注, 现已在耐磨涂层、薄膜电阻以及集成电路中的扩散势垒等领域得到了广泛应用 [1-3]. 目前, 针对 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 的研究主要集中于薄膜的制备和器件的开发应用 [4-6], 有关 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的基本性质的基础研究却很少, 对其中的一些基本问题仍然认识不清. 例如, 第一性原理计算显示 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 具有类金属的能带结构 [7], 而实验所得 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的载流子浓度也高达 10^{22} cm^{-3} 数量级 [6,8], 与一般金属的载流子浓度相当, 尽管 Yu 等 [9] 也曾制备出了具有金属导电特性的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 但绝大多数实验结果却显示 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电阻率较大, 并且电阻温度系数 (TCR) 为负, 表现出类半导体的导电性质. 对于该现象的物理原因目前尚无定论. Tiwari 等 [10] 测量了 12—300 K 范围内 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电阻率与温度的关系, 认为薄膜的负的温度

系数源于弱局域效应. 而 Lal 等 [11] 同样分析了 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电阻率随温度的变化关系, 提出薄膜在 80—300 K 间的导电性质满足 Sheng 等 [12,13] 提出的颗粒膜中的跳跃导电机理, 而在 1.5—12 K 温区内的电输运性质则由电子-电子相互作用主导 [14]. 一般来讲, 弱局域效应往往发生在低温区域 (液 He 温区), 而在颗粒膜中, 跳跃导电一般发生在强局域样品中. 在低于发生跳跃导电的温区, 电子将变得更加局域化, Altshuler-Aronov 类型的电子-电子相互作用的贡献可以忽略 [14-16]. 因此, 上述两种解释的正确性均需商榷. 我们知道, $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的导电机理对其在器件中的应用及新器件的开发都至关重要, 因此, 针对目前的研究现状, 有必要对 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电输运性质进行系统研究, 探究 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜电阻率较大且呈现负电阻温度系数的物理原因. 在本文中, 我们利用射频磁控溅射法制备了系列多晶 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 通过改变基底温度来调节薄膜的晶粒尺寸, 我们发现薄膜表现出类似金属颗粒膜的性质, 低温下随着晶粒尺寸的增加, $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜中出现了整体超导体现象, 而高温时样品的电阻率与温度的关系符合热涨落诱导的

* 国家自然科学基金 (批准号: 11174216) 和高校博士点基金 (批准号: 20120032110065) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xindianliu@tju.edu.cn

隧穿 (fluctuation-induced tunneling, FIT) 导电模型^[17–21], 我们的结果揭示了高载流子浓度的多晶 TaN_{1-δ} 薄膜具有较高电阻率和负电阻温度系数的物理原因.

2 实 验

目前, 制备 TaN_{1-δ} 薄膜的方法主要有磁控溅射法、脉冲激光沉积法及离子束辅助沉积法. 磁控溅射是较为廉价及方便的一种方法, 但以往报道都是以金属 Ta 作为靶材, 通过控制 N₂/Ar 比率来获得的^[4,6,9,22]. 由于 TaN_{1-δ} 体系的相图比较复杂^[6,22,23], 通过调节溅射过程中的 N₂ 分压, 往往会同时得到几种不同的结晶相, 如密堆六方结构的 γ-Ta₂N、面心立方结构的 TaN_{1-δ}、正交结构的 Ta₃N₅ 及六角结构的 Ta₅N₆. 为获得单相 TaN_{1-δ} 薄膜, 我们的样品采用射频溅射法、选用纯度为 99.9% 的 TaN 靶材 (由上海光机所提供) 来制备. 溅射前, 腔室的背底真空约为 9.0 × 10⁻⁵ Pa, 工作气体采用高纯 (99.999%) Ar 气, 溅射过程中压强维持在 0.6 Pa, 溅射功率为 60 W. 为了调节薄膜的晶粒尺寸, 溅射过程中石英玻璃基片的温度分别设定为 523 K, 613 K, 653 K, 683 K, 723 K, 763 K, 813 K 和 853 K.

利用台阶仪 (Dektak, 6 m) 对薄膜的厚度进行了测量, 所得结果见表 1. 利用粉末 X 射线衍射仪 (D/MAX-2500/pc, Rigaku) 测量了薄膜的晶体结构, 测量过程中选取 Cu Kα 辐射作为射线源. 利用扫描电子显微镜 (SEM, SUPRA 55VP) 对薄膜的微观形貌进行表征. 通过四点法测量薄膜的电阻率与温度的关系, 测量范围为 2—350 K, 室温霍尔效应测量同样采用四点法, 所得样品的载流子浓度列于表 1, 电阻率及霍尔效应测量均在物理性质测量系统 (PPMS-6000, Quantum Design) 上完成.

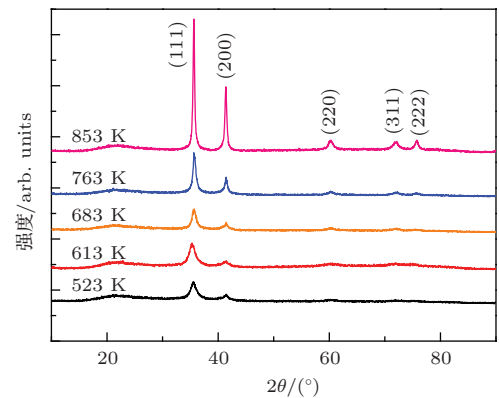


图 1 (网刊彩色) 基底温度分别为 523 K, 613 K, 683 K, 763 K, 853 K 条件下制备的 TaN_{1-δ} 薄膜的 XRD 图
Fig. 1. (color online) XRD patterns for TaN_{1-δ} films deposited at 523 K, 613 K, 683 K, 763 K, 853 K.

表 1 不同基底温度条件下制备的 TaN_{1-δ} 薄膜的样品参数. T_s 为基底温度, d 为样品的膜厚, D 为样品的晶粒尺寸, n_{RT} 为室温载流子浓度, $\rho_{350\text{ K}}$ 为 350 K 时的电阻率. ρ_0 , W , V_0 分别为由 (2)—(5) 式拟合得到的电阻率、绝缘势垒宽度及高度

Table 1. Sample parameters for TaN_{1-δ} films deposited at different temperatures. T_s is the substrate temperature during deposition, d is the thickness of the films, D is the mean-grain radius, and n_{RT} is room-temperature carrier concentration, $\rho_{350\text{ K}}$ is the resistivity at 350 K, ρ_0 , W and V_0 are the fitting parameters in Eq. (2)–(5), respectively.

T_s/K	d/nm	D/nm	$n_{RT}/10^{22}\text{ cm}^{-3}$	$\rho_{350\text{ K}}/\mu\Omega\cdot\text{cm}$	$\rho_0/\mu\Omega\cdot\text{cm}$	W/nm	V_0/meV
523	248	10.52	1.00	5574	2191	0.586	76.98
613	270	10.14	1.03	3748	1457	0.528	84.41
653	255	12.61	1.71	2551	972	0.560	73.98
683	244	11.21	2.00	1635	759	0.465	67.43
723	240	13.14	3.26	1324	486	0.524	80.35
763	233	15.59	4.51	1038	385	0.545	70.85
813	240	23.01	5.81	827	281	0.663	56.24
853	237	25.66	6.50	702	241	0.659	53.40

3 结果与讨论

图 1 给出了不同基底温度下制备的几个典型的 TaN_{1-δ} 薄膜的 X 射线衍射 (XRD) 图. 可以看

出, 随着基底温度的升高, 衍射强度逐渐增强, 出现的衍射峰数量也逐渐增加, 并且最强峰半峰宽逐渐减小, 表明 TaN_{1-δ} 的晶粒尺寸随基底温度的升高逐渐变大, 这与 SEM 结果一致 (见后面的详细讨论). 在 853 K 下生长的 TaN_{1-δ} 薄膜出现了 5

个明显的衍射峰, 经过和标准 X 射线衍射卡片对比, 发现这些衍射峰分别对应面心立方结构 TaN 的 (111), (200), (220), (311), (222) 晶面 (如图 1 所示). 而在 523 K 条件下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜除最强峰 (111) 外, 仅出现 (200) 晶面对应的微弱的衍射峰, 且最强峰的峰强较弱. 根据 (111) 和 (200) 衍射峰, 我们计算了所得薄膜的晶格常数 a , 发现随着基底温度的升高, a 逐渐减小, 由 4.404 Å 减小到 4.365 Å. 文献 [6] 曾报道在 TaN_x 薄膜中随着 N 含量的增加, 晶格常数逐渐减小, 但在确定温度下其电阻率逐渐增加, 这与我们的样品不同, 我们的样品随着基底温度的升高, 在确定温度下的电阻率是减小的 (见下文). 另外, 也有研究者发现 [24], 随着 N 含量的增加, TaN_x 薄膜的晶格常数逐渐增加. 我们的样品是由 TaN 靶溅射得到的, 制备时所用气体为高纯氩气, 这样样品中 N 的含量随基底温度的变化不会严重. 因此, 样品晶格常数变化的原因仍需进一步研究.

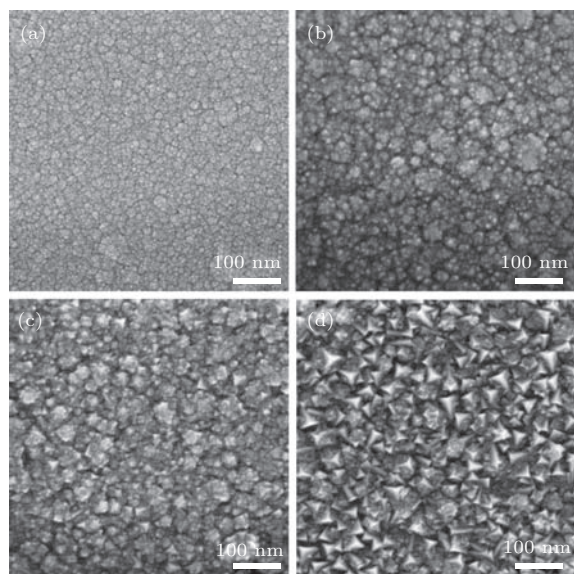


图 2 不同基底温度下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的 SEM 图 (a), (b), (c) 和 (d) 分别对应基底温度 523 K, 613 K, 763 K 和 853 K

Fig. 2. SEM images for $\text{TaN}_{1-\delta}$ films deposited at (a) 523 K, (b) 613 K, (c) 763 K, and (d) 853 K.

图 2 给出了基底温度为 523 K, 613 K, 763 K 和 853 K 时制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的 SEM 图, 可以看出, 基底温度对 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的微观形貌有明显影响. 523 K 时所得样品的表面由细密的小颗粒 (尺寸小于 10 nm) 聚集成疏松团状物组成. 随着基底温度的升高, 聚集成团效应逐渐降低, 部分细小颗粒从团状结构分离出来并逐渐长大, 颗粒形状逐渐

明晰. 当基底温度升高至 853 K 时, 样品表面主要由一些结构致密的类三角形晶粒组成, 晶粒平均尺寸约 30 nm. 表 1 给出了 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的室温载流子浓度 n_{RT} , 样品的载流子浓度随着基底温度的升高而增大, 由 523 K 的 $\sim 1 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 增加到 853 K 的 $6.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, 与金属材料的载流子浓度相近, 这与先前文献报道一致 [6,8].

我们对 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的电阻率随温度的变化关系进行了测量, 测量温度范围为 2—350 K. 我们发现, 当温度低于 5 K 时, 不同基底温度所得样品的电阻率与温度的依赖关系有非常大的差异. 图 3 给出了几个有代表性的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜在 2—6 K 温区的电阻率与温度的关系曲线. 当基底温度低于 613 K 时, 薄膜的电阻率随温度的降低而升高, 呈现出类似半导体的导电性质; 在 653 K 和 683 K 温度下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 在高于 3 K 时, 薄膜的 TCR 为负, 但在 2—3 K 温度范围, 随着温度的降低, 电阻率出现明显下降趋势, 且下降幅度随基底温度的升高而变大; 对于基底温度高于 723 K 时制备的薄膜, 随着温度的降低, 电阻率在 4 K 左右时开始减小, 随后陡然消失. 上述现象揭示出, 随着基底温度的升高, $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜在低温下出现了整体超导体态. $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜中的超导电现象最早由 Gerstenberg 和 Hall [25] 报道. Shapira 等 [26] 在 200 nm 厚的 Al-Ge 颗粒膜中观察到, 只有当金属 Al 颗粒的尺寸增大到一定程度时, 体系在低温才有可能出现整体超导体态, 如果金属颗粒尺寸太小, 超导现象将不会发生, 而且当体系中的金属体积分数增大到一定程度时, Al-Ge 颗粒膜的超导转变温度 T_C 将减小至块体金属 Al 的 T_C 值. 仔细观察我们的数据可以发现, 不同的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 超导转变温度 T_C 不同, 对于 653 K 和 683 K 条件下所得样品, 当温度分别降至 2.32 K 和 2.88 K 时其电阻率开始减小. 随着基底温度的升高, 超导转变温度持续增加, 由 723 K 时所得样品的 4.08 K 增至 813 K 时所得样品的 4.51 K. 继续增加基底温度, 超导转变温度出现下降趋势, 在基底温度为 853 K 时, T_C 降至 3.93 K. 我们所观察到的 T_C 值与文献报道一致 [27]. 文献 [6] 也曾对 TaN_x 薄膜中的超导电现象进行了报道, 并且发现同系列样品中, 随着 N 含量的增加, 在电阻率增大的同时, 超导温度单调减小, 这与我们所观察到的现象不一致. 在超导颗粒系统中, 约瑟夫森耦合能 J 及金属颗粒的库仑充电能 E_C 对材料的电输运性质起决定性作用. 当颗粒间的耦

合足够强, 即 $J \gg E_C$ 时, 在足够低的温度条件下就会出现超导现象, 且超导转变温度随颗粒体系导电性的增强而升高. 当颗粒间的耦合作用非常弱, $J \ll E_C$ 时, 局域于颗粒内部的库伯对由于排斥作用导致库仑阻塞, 此时系统的基态为绝缘态^[28-30]. 对我们的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜来说, 随着基底温度的升高, 晶粒尺寸逐渐增大 (同时电阻率逐渐减小, 导电性

逐渐增强), 库仑充电能 E_C 逐渐减小, 这时就会有超导转变现象发生, 且超导转变温度的变化规律同超导体-绝缘体颗粒膜中的规律相同, 这说明我们的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜在低温下具有超导体-绝缘体颗粒系统的属性. 因此, 样品在高温下应该同样具有颗粒膜的性质.

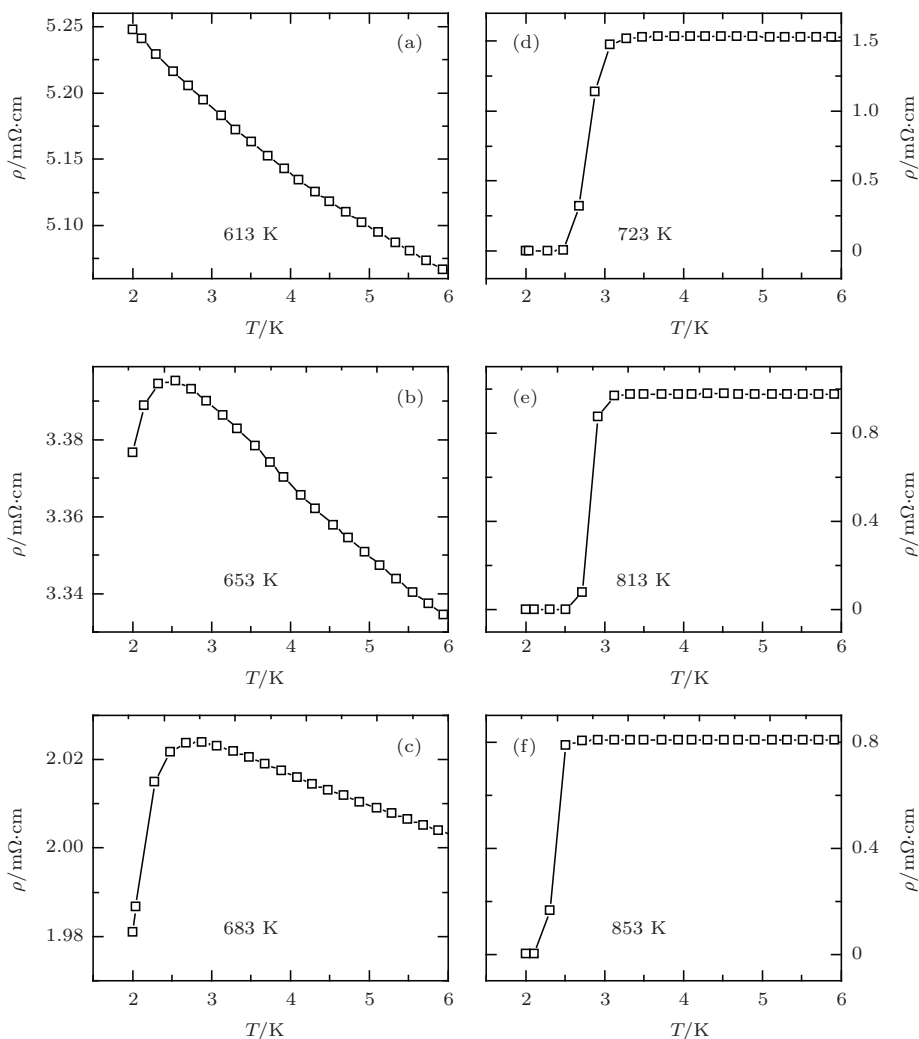


图3 不同基底温度条件下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜在 2—6 K 温度范围的电阻率与温度的关系

Fig. 3. Resistivity as a function of temperature between 2 and 6 K for $\text{TaN}_{1-\delta}$ films deposited at different temperatures.

在弱耦合金属颗粒系统中, 在温度较低时, 颗粒的库仑充电能 E_C 较大 ($E_C > k_B T$, 其中 k_B 为波尔兹曼常数), 电子只能以跳跃模式由一个颗粒转移至另一颗粒, 此时系统的电阻率与温度间满足如下指数关系^[28]:

$$\rho(T) = \rho' \exp\left(\frac{T'}{T}\right)^{1/2}, \quad (1)$$

其中 ρ' 和 T' 为常量. 在我们的样品中, 基底温度低于 613 K 条件下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜, 其电阻温度

系数在整个测温范围 2—350 K 均为负值, 且在较低温度 (低于 30 K) 时, 电阻率随温度降低而升高的速率明显高于较高温度时的速率 (图 4(a)). 同样对于基底温度高于 653 K 的薄膜, 在较低温度 (约 10—30 K 范围) 时样品的 TCR 的绝对值也明显高于较高温度 (约 70—350 K 范围) 时的值, 暗示在这两个温区样品的电输运性质应具有不同的机理. 鉴于 10—30 K 温度范围 ρ - T 曲线较陡的特点, 同时考虑到样品的颗粒属性, 我们将该温度范围的

实验数据同(1)式进行了比较,图4(b)绘出了几个典型样品在该温度范围的 $\log \rho$ 与 $T^{-1/2}$ 的关系曲线,可以看出,样品的 $\log \rho$ 与 $T^{-1/2}$ 很好地满足线

性关系,说明我们的样品在10—30 K温度范围的电输运行为具有金属颗粒系统的跳跃导电特性,这进一步证明了样品具有颗粒膜的属性.

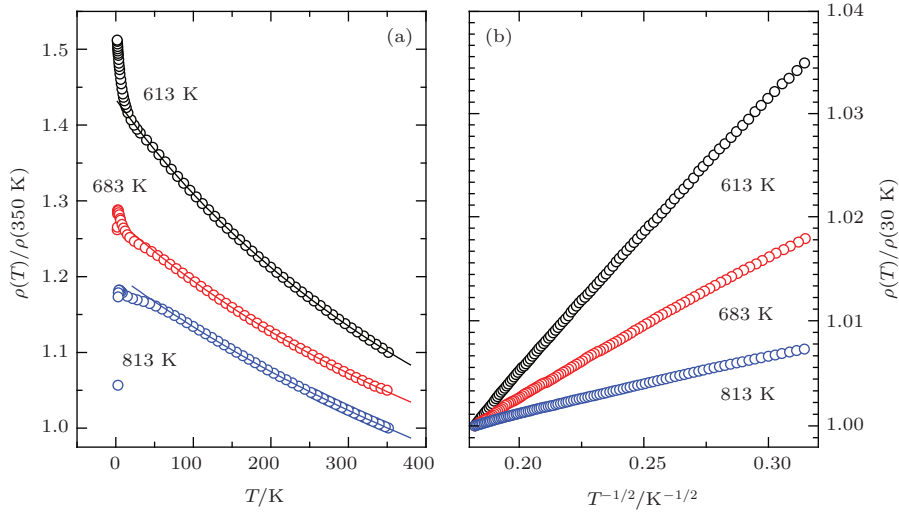


图4 (网刊彩色) 不同基底温度下制备的 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜的归一化电阻率随温度的变化 (a) 归一化电阻率 $\rho(T)/\rho(350 \text{ K})$ 与温度 T 的关系; (b) $\rho(T)/\rho(30 \text{ K})$ 的对数随 $T^{-1/2}$ 的变化关系. 这里空心圆为实验结果, 实线是(2)式的拟合结果. 为清楚起见, (a) 中 683 K 和 613 K 条件下制备的样品的数据分别向上平移了 0.05 和 0.1

Fig. 4. (color online) Normalized resistivity as a function of temperature for the $\text{TaN}_{1-\delta}$ films deposited at different temperatures. (a) $\rho(T)/\rho(350 \text{ K})$ versus temperature T , (b) $\rho(T)/\rho(30 \text{ K})$ (in logarithmic scale) varies as a function of $T^{-1/2}$. The open circles are the experimental results, and the solid lines represent the least-squares fits to Eq. (2). In (a), the data for the samples deposited at 683 and 613 K have been shifted up by 0.05 and 0.1 respectively, for clarity.

在导体-绝缘体颗粒系统中,当温度较高或颗粒尺寸较大时,库仑充电能 E_C 相对较小($E_C < k_B T$),此时电子可遂穿通过颗粒间的绝缘层,体系的电子输运行为由热涨落诱导的遂穿(FIT)机理所主导. Sheng等^[17-19]对该问题进行了理论研究,得到由FIT导致的电阻率与温度的关系为

$$\rho(T) = \rho_0 \exp\left(\frac{T_1}{T + T_0}\right), \quad (2)$$

这里

$$T_1 = \frac{8\varepsilon_0 A V_0^2}{e^2 k_B W}, \quad (3)$$

$$T_0 = \frac{8\varepsilon_0 h A V_0^{3/2}}{\pi^2 (2m_e)^{1/2} W^2 e^2 k_B}, \quad (4)$$

其中, ρ_0 为常数, T_1 和 T_0 是与绝缘势垒相关的特征温度, ε_0 为真空介电常数, h 为普朗克常量, m_e 为电子质量, A 为绝缘势垒的有效面积, e 为电子电量, V_0 和 W 分别为绝缘势垒的高度和宽度. 我们用(2)式对样品的 $\rho(T)$ 曲线进行了拟合,拟合结果见图4(a)中的实线. 对于所有样品,当温度高于70 K时,都可以用(2)式来描述,说明我们的 $\text{TaN}_{1-\delta}$

薄膜在70—350 K温区的导电行为遵从FIT机理,即体系在较高温度时的导电行为是通过 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 晶粒中的电子遂穿晶界势垒来完成的. 这很可能是多晶 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 薄膜具有较高载流子浓度但却呈负的电阻温度系数的物理原因.

由(3)式和(4)式可得

$$\frac{T_1^2}{T_0} = \frac{4\pi A \varepsilon_0 \sqrt{2m}}{k_B e^2 \hbar} V_0^{5/2} \propto A V_0^{5/2}. \quad (5)$$

由上式可知,如果已知隧道结的有效面积 A ,就可根据拟合参数 T_1 和 T_0 求出绝缘势垒的高度 V_0 和宽度 W . 在我们的样品中, $\text{TaN}_{1-\delta}$ 颗粒的尺寸 D 可由XRD结果根据Scherrer公式^[31] $D = 0.89\lambda/(\beta \cos \theta)$ [其中 λ 为所用X射线波长, θ 为衍射角, β 为衍射峰的半高宽度,这里采用(111)晶面对应衍射峰的半高宽]计算得出(见表1),所得结果与由SEM得出的结果大致相当. 由于样品中 $\text{TaN}_{1-\delta}$ 颗粒的形状并不规则,因此我们考虑了 A 与 D^2 具有不同比例系数时的 V_0 和 W 的结果. 我们取 $A = D^2/p$,其中 p 为1—10之间的整数. 经计算发现,当 p 介于该范围时,所有样品 V_0 的值均为几十meV,而 W 的数量级均为 10^{-1} nm. 在

表1中给出了 $A = D^2/5$ 时样品的绝缘势垒高度 V_0 和宽度 W 的计算结果. 可以看出绝缘势垒宽度 $W \sim 0.6$ nm, 势垒高度 $V_0 \sim 70$ meV, 该结果与文献报道在同一量级. 例如在掺杂的 GaAs^[18], ITO^[32] 等颗粒膜中, 绝缘势垒高度分别约 50 meV 和 80 meV, 绝缘势垒宽度分别约 7 nm 和 1 nm. 因此, 我们获得的 W 和 V_0 值是合理的. 上述结果更加确定了多晶 TaN_{1- δ} 薄膜中电子的传输过程由 FIT 机理主导, 如前所述, 这种隧穿导电机理势必会造成样品具有较高的电阻率和负的温度系数.

4 结 论

使用 TaN 靶, 采用射频磁控溅射法在石英玻璃基底上成功生长出面心立方结构的多晶 TaN_{1- δ} 薄膜. 系统地研究了基底温度对薄膜晶体结构、微观形貌和电输运性质的影响, 探究了薄膜中载流子的电输运机理. 结果表明: 在溅射过程中, 随着基底温度的升高, 薄膜的平均颗粒尺寸逐渐增大, 室温电阻率逐渐减小. 测量了 TaN_{1- δ} 薄膜在 2—350 K 温度范围内电阻率随温度的变化, 在低温 (低于 5 K) 区域, 随着基底温度的升高, TaN_{1- δ} 薄膜中出现了超导态, 且超导转变温度随基底温度的升高而升高, 与超导颗粒膜中观察到的现象相同. 在较高温区, 所有薄膜的电阻温度系数均为负值, 随着温度的升高, 薄膜的导电机理由导电颗粒间的跳跃导电机理逐渐过渡到 70 K 以上的热涨落诱导的隧穿导电机理, 因此, TaN_{1- δ} 多晶薄膜的类颗粒膜属性可能是其具有较高的电阻率和负的温度系数的主要原因.

参考文献

[1] Baba K, Hatada R 1996 *Surf. Coat. Technol.* **84** 429
 [2] Bozorg-Grayeli E, Li Z J, Asheghi M, Delgado G, Pokrovsky A, Panzer M, Wack D, Goodson K E 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 261906
 [3] Kwon J, Chabal Y J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 151907
 [4] Engel A, Aeschbacher A, Inderbitzin K, Schilling A, Il'in K, Hofherr M, Siegel M, Semenov A, Hübers H W 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 062601
 [5] Chaudhuri S, Maasilta I J 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 122601

[6] Shin C S, Gall D, Kim Y W, Desjardins P, Petrov I, Greene J E, Odén M, Hultman L 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 2879
 [7] Stampfl C, Mannstadt W, Asahi R, Freeman A J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 155106
 [8] Breznay N P, Michaeli K, Tikhonov K S, Finkel'stein A M, Tendulkar M, Kapitulnik A 2012 *Phys. Rev. B* **86** 014514
 [9] Yu L, Stampfl C, Marshall D, Eshrich T, Narayanan V, Rowell J M, Newman N, Freeman A J 2002 *Phys. Rev. B* **65** 245110
 [10] Tiwari A, Wang H, kumar D, Narayan J 2002 *Mod. Phys. Lett. B* **16** 1143
 [11] Lal K, Ghosh P, Biswas D, Meikap A K, Chattopadhyay S K, Chatterjee S K, Ghosh M, Baba K, Hatada R 2004 *Solid State Commun.* **131** 479
 [12] Sheng P, Abeles B 1972 *Phys. Rev. Lett.* **28** 34
 [13] Sheng P, Abeles B, Arie Y 1973 *Phys. Rev. Lett.* **31** 44
 [14] Altshuler B L, Aronov A G, Lee P A 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 1288
 [15] Altshuler B L, Aronov A G, in *Electron-Electron Interactions in Disordered Systems*, edited by A. L. Efros, M. Pollak (Elsevier, Amsterdam, 1985) pp74–78
 [16] Lee P A, Ramakrishnan T V 1985 *Rev. Mod. Phys.* **57** 287
 [17] Sheng P, Sichel E K, Gittleman J I 1978 *Phys. Rev. Lett.* **40** 1197
 [18] Sheng P 1980 *Phys. Rev. B* **21** 2180
 [19] Xie H, Sheng P 2009 *Phys. Rev. B* **79** 165419
 [20] Liu X D, Liu J, Chen S, Li Z Q 2012 *Appl. Surf. Sci.* **263** 486
 [21] Zheng X W, Li Z Q 2009 *Appl. Surf. Sci.* **255** 8104
 [22] Sun X, Kolawa E, Chen J S, Reid J S, Nicolet M A 1993 *Thin Solid Films* **236** 347
 [23] Sreenivasan R, Sugawara T, Saraswat K C, McIntyre P C 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 102101
 [24] Nie H B, Xu S Y, Wang S J, You L P, Yang Z, Ong C K, Li J, Liew T Y F 2001 *Appl. Phys. A* **73** 229
 [25] Gerstenberg D, Hall P M 1964 *J. Electrochem. Soc.* **111** 936
 [26] Shapira Y, Deutscher G 1983 *Phys. Rev. B* **27** 4463
 [27] Breznay N P, Kapitulnik A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 104510
 [28] Beloborodov I S, Lopatin A V, Vinokur V M, Efetov K B 2007 *Rev. Mod. Phys.* **79** 469
 [29] Ivry Y, Kim C S, Dane A E, Fazio D D, McCaughan A N, Sunter K A, Zhao Q Y, Berggren K K 2014 *Phys. Rev. B* **90** 214515
 [30] Lerer S, Bachar N, Deutscher G, Dagan Y 2014 *Phys. Rev. B* **90** 214521
 [31] Yang X C, Riehemann W, Dubiel M, Hofmeister H 2002 *Mater. Sci. Eng. B* **95** 299
 [32] Ederth J, Johnsson P, Niklasson G A, Hoel A, Hultåker A, Heszler P, Granqvist C G, van Doorn A R, Jongnerius M J, Burgard D 2003 *Phys. Rev. B* **68** 155410

Electrical transport properties of polycrystalline $\text{TaN}_{1-\delta}$ films*

Zhou Ding-Bang Liu Xin-Dian[†] Li Zhi-Qing

(Tianjin Key Laboratory of Low Dimensional Materials Physics and Preparing Technology, Faculty of Science, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

(Received 18 March 2015; revised manuscript received 27 May 2015)

Abstract

Tantalum nitride with a face-centered cubic structure ($\text{TaN}_{1-\delta}$) has received much attention due to its high hardness, good wear resistance, chemical inertness, thermodynamic stability, and low temperature coefficients of resistivity. First-principles calculations have indicated that cubic-TaN possesses metallic energy band structure, and the experimental results show that the carrier concentration in $\text{TaN}_{1-\delta}$ films are comparable to that of normal metals. However, semiconductor-like temperature behavior of resistivity is often observed in polycrystalline $\text{TaN}_{1-\delta}$ film. In the present paper, we systematically study the crystal structures and electrical transport properties of a series of $\text{TaN}_{1-\delta}$ thin films, deposited on quartz glass substrates at different temperatures by the rf sputtering method. Both X-ray diffraction patterns and scanning electron microscope images indicate that the films are polycrystalline and have face-centered cubic structure. It is also found that the mean grain sizes of the films gradually increase with increasing depositing temperature. The temperature dependence of resistivity is measured from 350 K down to 2 K. The films with large grain sizes have a superconductor-insulator transition below ~ 5 K, while the films with small grain sizes retain the semiconductor characteristics down to the minimum measuring temperature, 2 K. These phenomena are similar to that observed in superconductor-insulator granular composites. Above 5 K, the temperature coefficients of the resistivities of the films are all negative. In the temperature range between 10 and 30 K, the films show hopping transport properties which are often seen in metal-insulator granular systems, i. e. the logarithm of the resistivity ($\log \rho$) varies linearly with $T^{-1/2}$, where T represents the measured temperature. The thermal fluctuation-induced tunneling conductive mechanism dominates the temperature behaviors of resistivities from 70 K up to 350 K. It can be seen that the thermal fluctuation induced tunneling conductive mechanism is also the main conductive mechanism in metal-insulator granular systems in the higher temperature regions. Our results indicate that the electrical transport properties of the polycrystalline $\text{TaN}_{1-\delta}$ films are similar to that of metal-insulator granular films with different volume fractions of metal, where the metal possesses superconductivity at low temperatures. Hence the high resistivity and negative temperature coefficient of resistivity of $\text{TaN}_{1-\delta}$ polycrystalline film can be reasonably ascribed to the similarity in microstructures between $\text{TaN}_{1-\delta}$ polycrystalline film and metal-insulator granular film.

Keywords: electrical transport properties, granular films, hopping conductance

PACS: 73.61.At, 72.80.Tm, 73.40.Gk

DOI: [10.7498/aps.64.197302](https://doi.org/10.7498/aps.64.197302)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11174216) and the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20120032110065).

[†] Corresponding author. E-mail: xindianliu@tju.edu.cn