

PACS numbers: 68.37.Lp, 68.55.Nq, 68.60.Dv, 72.15.-v, 73.40.Jn, 73.61.At, 81.15.-z

Електрофізичні властивості гранульованих твердих розчинів у плівкових системах на основі Co і Ag

Ю. М. Шабельник, Л. В. Ордорець, І. Ю. Проценко

*Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна*

Досліджено процеси фазоутворення та електрофізичні властивості плівкових систем на основі Co і Ag, яких було одержано як почеречною, так і одночасною конденсацією на підложжя (П). Показано, що утворення гранульованого твердого розчину на основі Ag відбувається при термообробленні до температури 800 К (система Ag/Co/П) або в процесі одночасної конденсації (плівка (Ag + Co)/П). Експериментальні величини термічного коефіцієнта опору добре узгоджуються із розрахунковими на феноменологічному моделю для гранульованого твердого розчину.

Investigation of phase-formation processes and physical properties of film systems based on Co and Ag, which are fabricated by alternate and simultaneous condensation on a substrate (S), is performed. As shown, the formation of Ag-based granular solid solution occurs during the heat treatment to the temperature of 800 K (the Ag/Co/S system) or during the condensation (the (Ag + Co)/S film). Experimental values of thermal resistance coefficient agree well with those calculated from the phenomenological model for granular solid solution.

Выполнено исследование процессов фазообразования и электрофизических свойств плёночных систем на основе Co и Ag, которые получены поочерёдной и одновременной конденсацией на подложку (П). Показано, что образование гранулированного твёрдого раствора на основе Ag происходит при термообработке до температуры 800 К (система Ag/Co/П) или в процессе конденсации (плёнка (Ag + Co)/П). Экспериментальные величины термического коэффициента сопротивления хорошо согласуются с рассчитанными по феноменологической модели для гранулированного твёрдого раствора.

Ключові слова: твердий розчин, гранульований стан, обмежена розчинність, електрофізичні властивості.

(Отримано 7 липня 2011 р.)

1. ВСТУП

Гранульовані плівкові матеріали — це особливий клас матеріалів, які одержують або одночасною конденсацією двох і більше компонент, або пошаровим осадженням з наступним термообробленням [1].

У випадку системи на основі Ag і Co має місце обмежена взаємна розчинність з утворенням т.р. (Ag, Co) з ГЦК-ґратницею і параметрами близькими до $a_0(\text{Ag})$ [2]. У результаті цього надлишкові атоми Co утворюють ґранулі в матриці твердого розчину (т.р.), що підтверджується електронно-мікроскопічними дослідженнями. На даний час невирішеним залишається питання про утворення т.р. залежно від концентрації атомів, товщини окремих шарів, величини ґранул, хоча змінюючи ці параметри можна суттєво впливати на механічні, електрофізичні і магнеторезистивні властивості. Мета роботи полягала у вивченні впливу ґранульованого стану плівкових зразків на основі Co і Ag, на їх електрофізичні властивості (питомий опір ρ та термічний коефіцієнт опору β) та порівнянні експериментальних величин β із розрахунковими на основі феноменологічного моделю для термічного коефіцієнта опору ґранульованих плівкових стопів, запропонованого в роботах [3] і [4].

2. МЕТОДИКА ТА ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Одношарові і двошарові плівкові системи ((Ag + Co)/П, Ag/Co/П) одержувалися в установі ВУП-5М при тиску газів залишкової атмосфери 10^{-3} – 10^{-4} Па. При конденсації Ag використовувалася резистивна метода осадження, а випаровування Co виконували як за допомогою електронно-променевої гармати, так і резистивною методою. Швидкість конденсації мала величину 1–4 нм/с.

Спеціальна система заслінок (рис. 1) уможливила в одному тех-

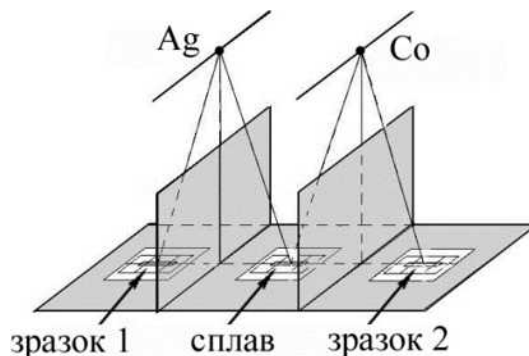


Рис. 1. Схема одержання одно- і двокомпонентних зразків при одночасному випаровуванні з двох джерел.

нологічному процесі одержувати як одношарові плівки, так і двошарові системи. Осадження плівок відбувалося як одночасним розпорощенням з двох джерел, так і черговою конденсацією двох компонент.

Товщина окремих шарів плівкової системи контролювалася двома методами. У процесі конденсації за допомогою кварцового резонатора, а після осадження — методом оптичної інтерферометрії (прилади МІІ-4).

Для дослідження структурно-фазового стану і виконання електронографічної аналізи використовувався електронний мікроскоп ПЕМ-125К. Якісна та кількісна аналіза елементного складу одержаних плівкових зразків виконувалася за допомогою Рентгенового мікроаналізатора, встановленого на растровому електронному мікроскопі РЕММА-102.

3. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Згідно з діаграмою стану Ag–Co для масивних зразків [5] компоненти мають дуже обмежену розчинність у порівнянні із плівковими зразками. Стабілізація т.р. (Ag, Co) з елементами гранульованого стану (рис. 2) має місце як в процесі одночасної конденсації з двох джерел, так і при послідовній конденсації з наступним термообробленням.

Рисунок 3 і таблиця ілюструють сказане на прикладі двошарової плівкової системи Ag (34 нм)/Co (15 нм)/П, в якій ефективна концентрація атомів Co складає $c_{Co} \cong 32$ ат.%. Оскільки т.р. (Ag, Co) утворюється на основі матриці з Ag, то його параметер ґратниці має дещо більше значення в порівнянні з параметром плівки Ag. Відмітимо, що ці результати узгоджуються з даними робіт [2, 6].

За методикою, описаною вище, були одержані зразки типу (Ag + Co)/П з різною атомовою концентрацією Co. Розшифрування електронограм показало в невідпаленому стані наявність фази т.р. (Co, Ag) з параметром кристалічної ґратниці 0,4081 нм, що узгоджується з даними, одержаними авторами [2]. Відпалювання зразків до температури 800 К призводить до деякого збільшення параметра кристалічної ґратниці на рівні 0,4085 нм та появи екстрарефлексів. На мікроструктурі прослідковується також помітне збільшення розмірів гранул Co.

Розрахунок концентрації атомів Co здійснювався за співвідношенням:

$$c_{Co} = \frac{D_{Co} d_{Co} \mu_{Co}^{-1}}{D_{Co} d_{Co} \mu_{Co}^{-1} + D_{Co} d_{Ag} \mu_{Ag}^{-1}},$$

де D — густина; μ — атомова маса; d_{Co} — ефективна товщина плівки Co, з атомів якої утворюються т.р. і гранулі, яка розраховується за

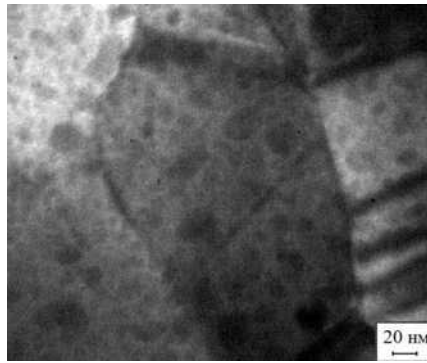


Рис. 2. Мікроструктура гранульованого стопу, одержаного при термовідпалюванні плівки (Ag(17) + Co(26))/П до 800 К.

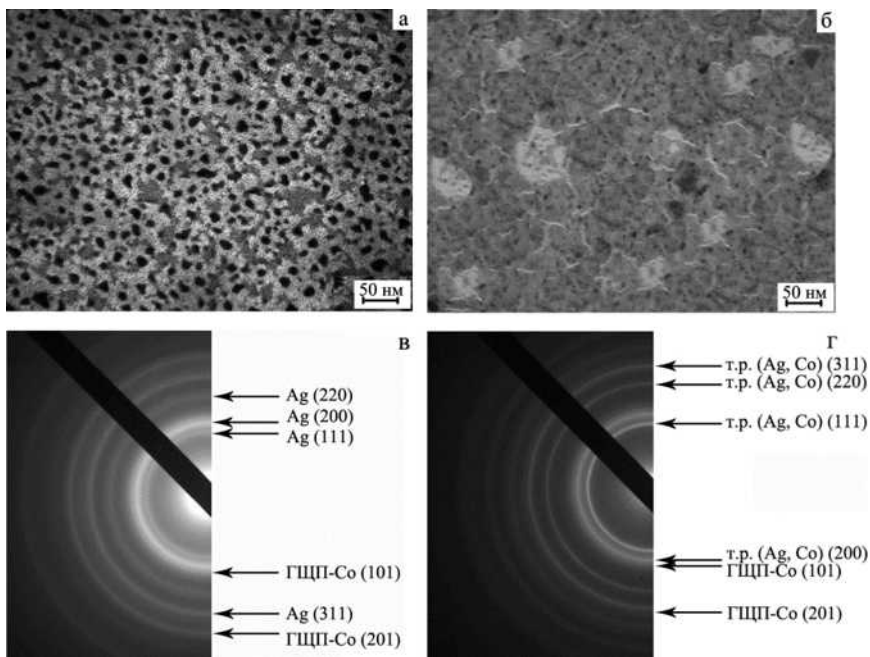


Рис. 3. Мікроструктура (а, б) та відповідні дифракційні картини (в, г) від плівкової системи Ag(34 нм)/Co(15 нм)/П у невідпаленому (а, в) та відпаленому до 800 К (б, г) стані (ефективна концентрація — 32 ат. % Со).

формулою:

$$d'_{\text{Co}} = d_{\text{Co}} - \frac{4}{3} \pi r_0^3 \frac{d_{\text{Co}} + d_{\text{Me}}}{(2r_0 + \Delta l_{\text{тр}})^3},$$

ТАБЛИЦЯ. Результати розшифрування електронограм від плівкової системи Ag(34)/Co(15)/П.

№	$T_e = 300 \text{ K}$				$T_e = 800 \text{ K}$			
	$d_{hkl}, \text{ нм}$	hkl	фаза	$a, \text{ нм}$	$d_{hkl}, \text{ нм}$	hkl	фаза	$a, \text{ нм}$
1	0,2363	111	Ag	0,4065	0,2364	111	т.р.(Ag, Co)	0,4075
2	0,2046	200	Ag	0,4069	0,2046	200	т.р.(Ag, Co)	0,4077
3	0,1921	101	ГЦЦ-Co	—	0,1932	101	ГЦЦ-Co	—
4	0,1446	220	Ag	0,4071	0,1447	220	т.р.(Ag, Co)	0,4070
5	0,1235	311	Ag	0,4063	0,1234	311	т.р.(Ag, Co)	0,4081
6	0,1081	201	ГЦЦ-Co	—	0,1084	201	ГЦЦ-Co	—
				$\bar{a}_{(Ag)} = 0,4067 \pm 0,0005 \text{ нм}; \bar{a}_0 = 0,4060 \text{ нм}$ [7]				
					$\bar{a}_{(т.р.(Ag, Co))} = 0,4076 \pm 0,0005 \text{ нм}$			

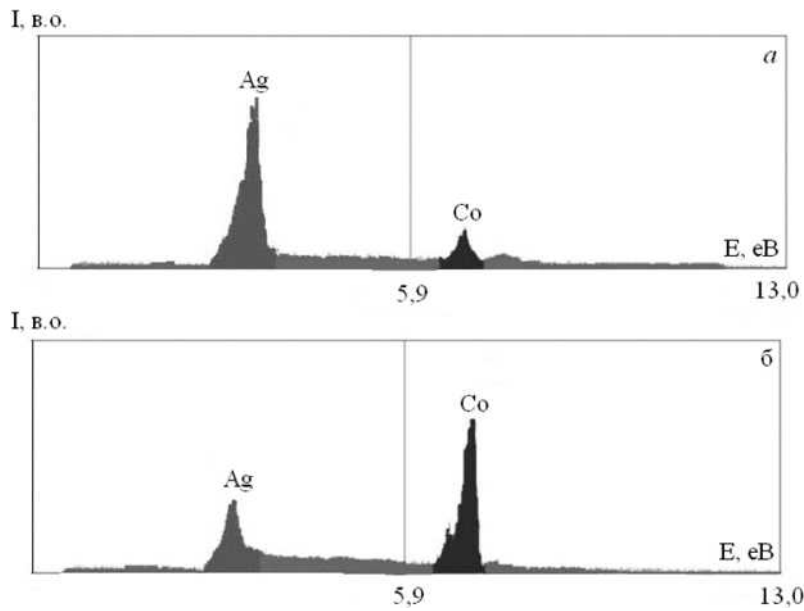


Рис. 4. Енергодисперсійні спектри від плівкових зразків Ag(35)/Co(12)/П (а) та Ag(14) + Co(28)/П (б) з ефективною концентрацією атомів Co 25 ат. % (а) і 73 ат. % (б).

де $\Delta l_{\text{тр}}$ та r_0 — середня довжина фрагментів т.р. та радіус гранул Co.

Контроль розрахункової концентрації c_{Co} здійснювався методом Рентгенової мікроаналізи (приклади енергодисперсійних спектрів наведено на рис. 4).

Типову температурну залежність питомого опору для даної системи проілюстровано на рис. 5. При нагріванні протягом першого циклу в інтервалі температур 300–600 К має місце незначне збільшення питомого опору з його зменшенням в проміжку 600–850 К, що може бути пов'язано із залікуванням дефектної структури і процесами рекристалізації, які супроводжуються зниженням внеску зерномежового розсіяння носіїв струму в загальний опір системи. При охолодженні питомий опір монотонно зменшується, що пояснюється завершенням релаксаційних процесів вже на першому циклі термооброблення.

У межах феноменологічного моделю гранульованого плівкового стопу в роботі [3] було одержано співвідношення для розрахунку величини термічного коефіцієнта опору:

$$\beta = \beta_{\text{тр}} - \frac{4\beta_{\text{r}}\rho_{\text{r}}}{4\rho_{\text{r}} + \alpha\rho_{\text{тр}}} - \frac{\alpha\beta_{\text{тр}}\rho_{\text{тр}}}{4\rho_{\text{r}} + \alpha\rho_{\text{тр}}} + \frac{\beta_{\text{r}}\rho_{\text{r}} + \alpha\beta_{\text{тр}}\rho_{\text{тр}}}{\rho_{\text{r}} + \alpha\rho_{\text{тр}}},$$

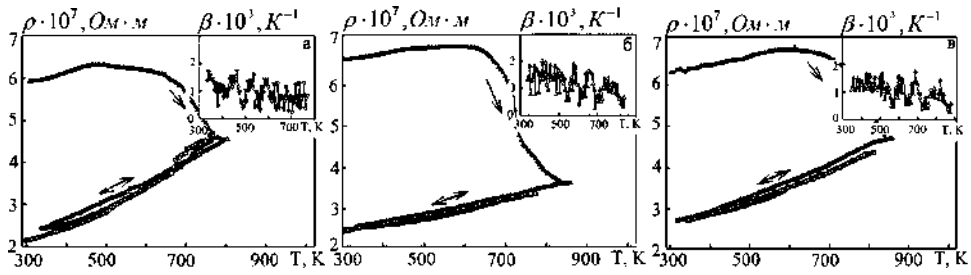


Рис. 5. Залежність питомого опору (ρ) та термічного коефіцієнта опору β (на вставках) від температури для плівок Ag(34)/Co(15)/П (а), Ag(21)/Co(18)/П (б) та Ag(22) + Co(15)/П (в). Ефективна концентрація атомів Co, ат. %: 32 (а), 52 (б) і 45 (в).

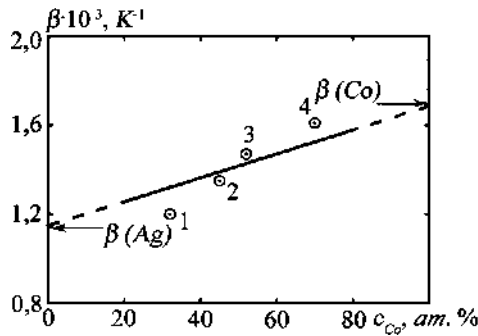


Рис. 6. Експериментальна залежність β гранульованих т.р. (Ag, Co) від ефективної концентрації атомів Co у плівкових системах Ag(34)/Co(15)/П (точка 1); Ag(21)/Co(1)/П (точка 2); Ag(22) + Co(15) (точка 3); Ag(17) + Co(26) (точка 4). Величини $\beta(\text{Ag})$ і $\beta(\text{Co})$ відповідають плівкам товщиною 40 нм.

де $\alpha = \Delta l_{\text{тp}} / r_0$ — ступінь гранульованості зразка; ρ_r та $\rho_{\text{тp}}$ — питомий опір грануль і фрагментів т.р.; β_r та $\beta_{\text{тp}}$ — термічний коефіцієнт опору грануль і фрагментів т.р. відповідно. На рисунку 6 представлено експериментальну залежність β від ефективної концентрації атомів Co у плівкових системах, одержаних при послідовній (точки 1 і 3) або одночасній (точки 2 і 4) конденсації плівкових систем із загальною товщиною 40–50 нм. Ці результати з точністю до 10% узгоджуються з розрахунковими на основі наведеного вище співвідношення.

4. ВИСНОВКИ

Вивчено умови формування гранульованого т.р. (Ag, Co) у плівкових системах, одержаних пошаровою або одночасною конденсацією

плівки Ag і Co.

Установлено кореляцію між електрофізичними властивостями (питомий опір і термічний коефіцієнт опору) гранульованих плівкових стопів та ефективною концентрацією атомів Co, які входять у ґратницю т.р. і формують наногранулі.

Здійснено апробацію феноменологічного моделю термічного коефіцієнта опору гранульованих плівкових стопів і одержано хорошу відповідність експериментальних і розрахункових даних.

Роботу виконано в межах держбюджетної НДР № 0109U001387 (2009–2011 рр.).

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. Ш. Ковач, Б. Дини, С. Р. Тейзейра, О. Редон, *Физ. мет. металловед.*, **79**, 1: 98 (1995).
2. І. В. Чешко, І. Ю. Проценко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **31**, № 7: 963 (2009).
3. С. І. Проценко, Л. В. Однодворець, І. В. Чешко, *Вісник СумДУ. Серія Фізика, математика, механіка*, **1**: 22 (2008).
4. С. І. Проценко, І. В. Чешко, Ю. М. Шабельник, *Міжнародна конференція студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики «Еврика 2011»* (Львів: ЛНУ: 2011).
5. Н. П. Лякишев, *Диаграммы состояния двойных металлических систем* (Москва: Машиностроение: 1996).
6. М. Kitada, *J. Magn. Magn. Mat.*, **208**: 244 (2000).
7. С. С. Горелик, Л. Н. Расторгуев, Ю. А. Скаков, *Рентгенографический и электронно-оптический анализ. Приложения* (Москва: Металлургия: 1970).