

**ДОСЛІДЖЕННЯ МЕТОДОМ ВІМС ВЗАЄМНОЇ ДИФУЗІЇ АТОМІВ  
У ТОНКОПЛІВКОВІЙ СИСТЕМІ Cr/Fe****В.В. Бібик, здобувач; Л.В. Однорорець, канд. фіз.-мат. наук, доцент;****І.О. Шпетний, канд. фіз.-мат. наук***Сумський державний університет, вул. Римського-Корсакова, 2, Суми, 40007*

*Наведено результати дослідження дифузійних процесів у нанокристалічній двошаровій плівковій системі Fe/Cr. Підтверджено вагомість впливу конденсаційно-стимульованої дифузії на етапі формування верхнього шару на перебіг дифузійних процесів.*

**ВСТУП**

Перспективи розвитку мікроелектроніки пов'язуються, зокрема, із переходом на 45 нм рівень в технології застосування тонких плівок. Цей фактор зумовлює інтенсивні дослідження структурно-фазового стану, електрофізичних властивостей, процесів взаємної дифузії компонентів у тонкоплівкових багатошарових системах.

Відкриття ефекту гігантського магнітоопору (ГМО) [1] у мультишарах Fe/Cr відкрило реальну перспективу в реалізації можливості надцільного запису інформації на новому технологічному рівні. Численні публікації, присвячені результатам теоретичних і експериментальних досліджень, окреслили ряд факторів і особливостей, які вагомо впливають на ефект. Так, експериментально встановлено [2-5], що до зміни опору у надрешітці Fe/Cr приводять зміни у інтерфейсі - межовій області між плівковими шарами. У роботах [2, 3] розділено вплив на розмиття інтерфейсу, зумовлений дифузією атомів та геометричним профілем рельєфу розділення шарів. Дослідники розглянули вплив як межі поділу компонент, так і структури межі на специфіку магнітних властивостей системи Fe/Cr. Автори констатують необхідність дослідження механізмів утворення і будови межового шару та морфології інтерфейсу. В роботі [6] стверджується, що стан атомів Cr в межовому шарі принципово відрізняється від інших в глибині зразка, що приводить до зміни магнітних полів на ядрах контактуючого Fe. Однак у ряді сучасних публікацій робиться висновок, що адитивний вплив на атоми Fe можливий лише всередині прошарку хрому, куди атоми потрапляють в результаті дифузії.

Дослідження відмінності інтерфейсів Fe/Cr та Cr/Fe засвідчило утворення сплаву у поверхневому шарі при напиленні Cr на Fe, що не спостерігалось при напиленні Fe на Cr. Більш детальні дослідження показали, що перемішування має місце і в цьому випадку. Автори вважають, що дифузія відбувається виключно у тонкому поверхневому шарі, і це приводить при нарощуванні плівки до "спливання" у верхні шари атомів нижнього шару і формування несиметричного інтерфейсу. Дифузія Cr по межах зерен в мультишарі Fe, на думку авторів [7, 8], може бути причиною зміни спін-залежного розсіювання електронів. У роботі [9] констатується як визначальний вплив дисперсності феромагнітних шарів та глибини зерномежової дифузії на величину ГМО.

У нашій попередній роботі [10] було проведено дослідження фазового складу тонкоплівкової системи Cr/Fe і встановлено утворення твердих розчинів ( $\alpha$ -Fe-Cr), пов'язаних із кінетичними умовами конденсації, зокрема перегрівом плівки. У даній роботі представлені результати досліджень, проведених для встановлення закономірностей дифузії в процесі конденсації та відпалювання. Для встановлення впливу іонно-

стимульованої дифузії, викликані первинними іонами вторинно-іонного мас-спектрометра, було здійснено порівняння з нашими результатами досліджень [11] методом оже-електронної спектроскопії.

### 1 МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Отримання плівкових систем на основі Cr і Fe здійснювалося методом вакуумної конденсації на установці ВУП-5М при тиску залишкових газів  $p \leq 10^{-3}$  Па на підкладки із ситалу.

Товщина зразків вимірювалася методом кварцового резонатора і контролювалася оптичним методом на інтерферометрі МП 4.

Плівкові системи відпалювалися безпосередньо у вакуумній установці. До особливостей наплення слід віднести попередній нагрів підкладки до температури 370К, що дозволило уникнути розтріскування плівок при швидкостях наплення 3 нм/с. Сконденсовані плівки витримувалися в вакуумі для стабілізації при  $T_p \approx 300$  К протягом 30 хв.

Дослідження дифузійних процесів проводилося методом вторинно-іонної мас-спектрометрії на приладі MS-7201M при енергії пучка іонів аргону 10 кеВ. Дослідження структурно-фазового стану плівкових зразків проводилося на просвічувальному електронному мікроскопі ПЕМ-125 К.

### 2 ПРОЦЕСИ ВЗАЄМНОЇ ДИФУЗІЇ

Результати дослідження дифузійних процесів плівкової системи Fe(40нм)/Cr(40нм)/П методом ВІМС показали, що у невідпаленому стані має місце досить значне взаємне проникнення атомів компонентів. Серед факторів, що призводять до такого результату, можна назвати конденсаційно-стимульовану дифузію (КСД) атомів Fe та підвищену дифузійну рухливість Cr по межах зерен. Поблизу межі поділу відбувається майже повне насичення меж зерен атомами компонентів. Крім того, слід зазначити, що нетермостабілізовані плівки мають вищу концентрацію дефектів та вищу дисперсність кристалітів, ніж відпалені зразки, що прискорює масоперенесення.

Взаємне проникнення атомів компонентів вже на стадії конденсації верхнього шару призводить до утворення твердих розчинів ( $\alpha$ -Fe, Cr) в об'ємі двошарової плівки. Цей факт підтверджують результати дослідження структурно-фазового стану (рис.1 д, е).

Відпалювання даної системи при температурі  $T_e = 700$ К протягом 15 хв. не призводить до подальшого проникнення атомів компонентів, оскільки вони характеризуються низькою взаємною розчинністю. При термообробці відбуваються насичення та перенасичення твердого розчину, що утворилися в процесі КСД. При цьому атоми домішки, що були сегреговані в межах зерен, відводяться в об'єм кристалітів і насичують розчин. Цей факт підтверджується електроннографічними дослідженнями. Із рис.1 е видно, що на електроннограмі від термостабілізованого зразка спостерігається деяке збільшення ширини та інтенсивності ліній.

### 3 РОЗРАХУНОК КОЕФІЦІЄНТІВ ДИФУЗІЇ

Розрахунок ефективного коефіцієнта дифузії здійснювався за відомим співвідношенням [12] моделі Уїппла:

$$\frac{c(x,t)}{c_0} = \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D \cdot t}}\right),$$

де  $x$ - координата, що відраховується від межі поділу;  $D$ - ефективний коефіцієнт дифузії;  $t$  - час дифузії ( $t_1$ - при КСД та  $t_2$  - при термодифузії (ТД)).

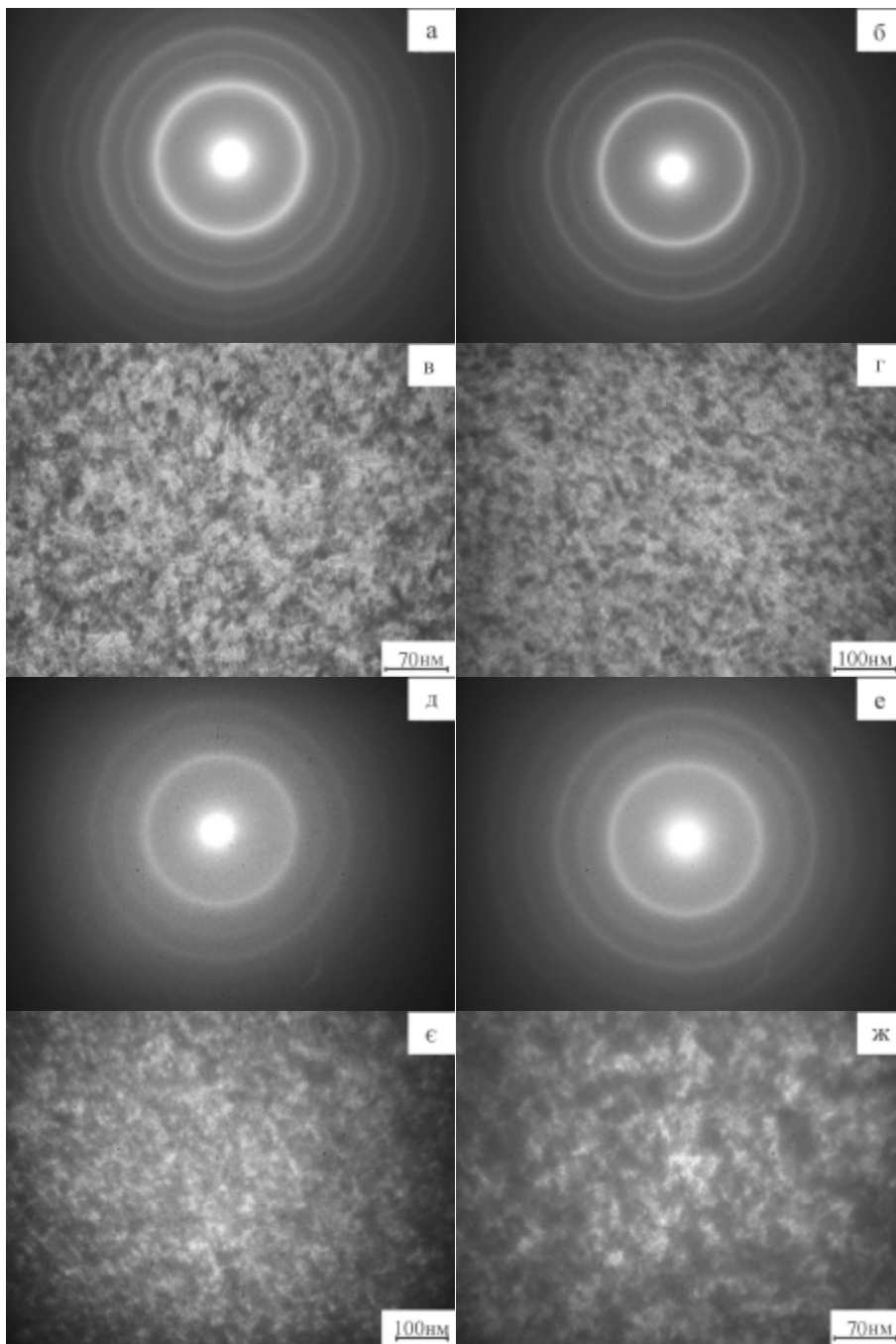


Рисунок 1 – Електронограми та кристалічна структура для одношарових плівкових зразків Cr(40 нм)(а, в), Fe(40 нм) (б, г) та двошарових Fe(40нм)/Cr(40нм)(д-ж) у невідпаленому (а-д, є) та відпаленому (е, ж) при  $T_a=700\text{K}$  станах

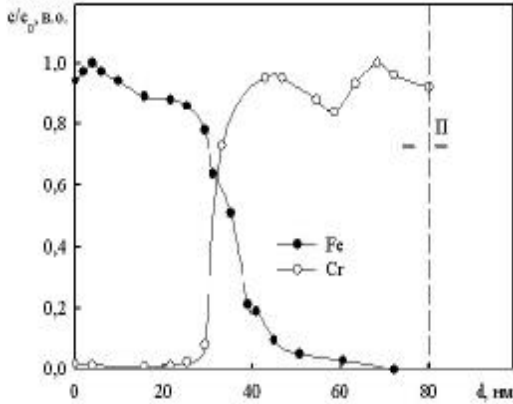


Рисунок 2 - Дифузійні профілі для плівкової системи Fe(40)/Cr(40)/П у відпаленому стані при  $T_e=700$  К

На рис.2 представлений дифузійний профіль для відпаленої протягом 15 хв при  $T_b = 700$  К плівкової системи Fe(40)/Cr(40)/П, який відображає результуючу дифузію за час  $t = t_1 + t_2$ . При обробці оже-спектрів були використані такі співвідношення:

$$l_{КСД} \cong (D_{КСД} \cdot \tau_{КСД})^{1/2} \quad \text{та}$$

$$(l_{ТВ} - l_{КСД}) \cong (D_{ТД} \cdot \tau_{ТД})^{1/2},$$

де  $l$  - довжина дифузійного пробігу.

Розрахункові значення ефективного коефіцієнта дифузії за наведеним вище співвідношенням мають величину:  $D(\text{Fe} \rightarrow \text{Cr}) = 6,5 \cdot 10^{-17} \text{ м}^2/\text{с}$ ;  $D(\text{Cr} \rightarrow \text{Fe}) = 2 \cdot 10^{-17} \text{ м}^2/\text{с}$ . Відношення  $D_{КСД}/D_{ТД} \approx 35$  (Fe→Cr) та 120 (Cr→Fe) визначає внесок КСД у порівнянні із ТД в системі Fe/Cr.

Результати даних досліджень, а також представлених в роботі [11], можна узагальнити у вигляді таблиці 1.

Таблиця 1 - Ефективні коефіцієнти дифузії атомів у плівкових системах на основі Fe і Cr

Плівкова система, нм	КСД (ОЕС)		ТД ( $T_b=673\text{К}$ ) (ОЕС)		КСД+ІСД (ВІМС)		КСД+ІСД+ТД (ВІМС)	
	l, нм	$D \cdot 10^{19}, \text{ м}^2/\text{с}$	$\Delta l^*, \text{ нм}$	$D \cdot 10^{19}, \text{ м}^2/\text{с}$	l, нм	$D \cdot 10^{19}, \text{ м}^2/\text{с}$	l, нм	$D \cdot 10^{19}, \text{ м}^2/\text{с}$
Fe(10)/Cr(10)/П	$Cr \rightarrow Fe$		$Cr \rightarrow Fe$		-	-	-	-
Cr(5)/Fe(10)/П	$\leq 3,0$	$\leq 0,5$	$\geq 2,0$	$\geq 0,004$	-	-	-	-
	$Fe \rightarrow Cr$		$Fe \rightarrow Cr$		-	-	-	-
Fe(40)/Cr(40)/П	$\leq 2,5$	$\leq 0,9$	$\geq 1,0$	$\geq 0,02$	36	6,5	-	-
	-		-		20	2,0	-	-
Fe(40)/Cr(40)/П	-		-		-		40	0,2
	-		-		-		12	0,02

\*  $\Delta l = l_{ТД} - l_{КСД}, \text{ нм}$

Як впливає із табличних даних, дослідження методом ОЕС підтверджують думку про те, що метод ВІМС дає дещо неправильні дифузійні профілі і завищені величини ефективних коефіцієнтів дифузії (таблиця) через значний вплив первинних іонів на дифузію атомів.

У випадку методу ВІМС ми могли скористатися лише співвідношенням для  $l_{(КСД+ІСД)} \cong (D_{(КСД+ІСД)} \cdot \tau_{(КСД+ІСД)})^{1/2}$ , де ІСД - іонно-стимульована дифузія, оскільки при відпалюванні зразків у них проходить не тільки пряма, але й зворотна дифузія атомів за вакансіями

у напрямі інтерфейсу. Така дифузія спричиняється результируючою дією *КСД+ІСД+ТД*. Не зважаючи на такий складний характер дифузійних процесів, структурний стан двошарової системи у вигляді т.р. ( $\alpha$ -Fe,Cr) зберігається (можливо, як уже підкреслювалося, відбувається частковий розпад пересиченого розчину).

Робота виконана при фінансовій підтримці НАТО (грант CLG982024 від 28.11.2005р.) і Міністерства освіти і науки України (договір № М/134 – 2006 від 19.04.2006р.).

## SUMMARY

### INVESTIGATION OF ATOMIC INTERDIFFUSION IN THIN-FILM SYSTEM BY SECONDARY IONIC MASS-SPECTROMETRY METHOD

**V.V.Bibyk, L.V. Odnodvoretz, I.O.Shpetsyi**

*Sumy State University, 2 R.-Korsakov St., Sumy, 40007, Ukraine*

*E-mail: [protsenko@aph.sumdu.edu.ua](mailto:protsenko@aph.sumdu.edu.ua)*

*The investigation results of diffusion processes in nanocrystalline two-layered film systems are presented. Great influence of condense-stimulated diffusion in the stage of film systems formation on diffusion processes run in the system of Cr-Fe is confirmed.*

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Magnetoresistance of (001) Fe / (001) Cr Giant magnetic superlattices / M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert et al. // Phys. Rev.Lett. – 1988. – V.61. – P.2472 – 2475.
2. Меньшов В.Н., Тугушев В.В. Механизм межслоевой магнитной связи в наноструктурах типа Fe/Cr // ЖЭТФ. – 2004. – Т.125, Вып.1. – С. 136 – 149.
3. Influence of the roughness of the buffer layer on the magnetoresistance of Co/Cu multilayers / M. Marszalek, J.Jaworski, J.Lekki et al. // Phys. stat. sol. – 2002. –V.189A, №3. – P. 653 – 658.
4. Influence of a Pb buffer layer on structural and magnetotransport properties of Co/Cu multilayers / M.Marszalek, J.Jaworski, M. Kas et al. // Vacuum.– 2004.– V. 74. – P. 287 – 291.
5. Горюнов Ю.В. Исследование магнитных свойств ультратонких эпитаксиальных бислоев Fe (001), разделенных несколькими монослоями Cr, методом ФМР// Структура и динамика мол.систем.- 2003.- Вып. X, Ч. 3.- С.164-167.
6. Гитцович В.Н., Семенов В.Г., Сергеев И.А. Изучение структуры интерфейсов и распределения эффективных магнитных полей в сверхрешетках Fe/Cr методом ядерного гамма-резонанса // Поверхность. – 2000. - №1. – С. 148 – 154.
7. Sun H., Yu K.W., Li Z.Y. Magnetoresistance through grain boundaries in a resonant – tunneling mechanism // Phys. Rev. – 2003. – V.68B. – P. 054413-1-054413-7.
8. Giant magnetoresistance of thin multilayer / K.Warda, L.Wojtczak, G.Wiatrowski et al. // J.Mag.Mag. – 2004. – V. 272 – 276. – P. 1433 – 1434.
9. Свиркова Н.Н. Влияние рассеяния электронов на межзеренных границах магнитных слоев на магниторезистивное отношение поликристаллического сэндвича при поперечном переносе заряда // ЖТФ.-2004.-Т.74, Вып.3.-С. 14-19.
10. Бібик В.В., Одневорець Л.В., Шумакова Н.І. та ін. Магнітотранспортні і терморезистивні властивості багатошарових плівкових матеріалів на основі Fe і Cr (огляд) // Вісник Сумського державного університету. Серія. Фізика, математика, механіка. – 2006. - №6(90). – С.47 – 56.
11. Бібик В.В., Гричановська Т.М., Маршалек М. та ін. Дифузійні процеси в нанокристалічних двошарових плівкових системах на основі металів //Металлофиз. новейшие технол.- 2006.- Т. 28, № 6.- С. 707 – 715.
12. Каур И., Густ В. Диффузия по границам зерен и фаз.-Москва: Машиностроение, 1991.- 447с.

*Надійшла до редакції 6 жовтня 2006 р.*