

ИЗМЕНЕНИЕ СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ ПЛЕНОК Fe-Nd-B ПРИ ИЗОТЕРМИЧЕСКИХ ВЫДЕРЖКАХ

© С. И. Рябцев, Н. А. Куцева, И. С. Рябцев

Дніпропетровський національний університет

Проведено експериментальні дослідження впливу хімічного складу, режимів напылення і наступної термообробки на фазовий склад плівок системи Fe-Nd-B. Визначено температурні межі стабільності фазового складу плівок. Виявлено, що у процесі структурної релаксації електроопір і розмір області когерентного розсіяння змінюються по кривій з насиченням та оцінено енергію активації процесу структурної релаксації. Встановлено склад плівок з високими магнітними властивостями.

Исследование ферромагнитных пленок на основе системы Fe-Nd-B представляет как научный, так и практический интерес. Структура тонких пленок, осажденных на холодную подложку методом ионно-плазменного напыления, по своей природе является неравновесной. При этом степень метастабильности структуры пленки зависит от условий получения и последующей обработки. Применение модернизированного трехэлектродного метода ионно-плазменного напыления позволяет управлять структурой пленок: степенью дисперсности кристаллитов, наличием внутренних напряжений, текстуры и т. д. Таким образом, появляется возможность варьирования физическими свойствами, например, намагниченностью, температурой Кюри, анизотропией, электросопротивлением, температурным коэффициентом электросопротивления и т. д. При повышенных температурах в пленках протекают процессы перестройки структуры, понижающие свободную энергию. Совокупность этих процессов сопровождается изменением физических свойств, и их объединяют термином структурная релаксация. Исследование этих процессов представляет несомненный интерес. Кроме того, эти пленки могут использоваться в качестве миниатюрных магнитов, пленочных элементов устройств магнитной записи информации, прецизионных тонкопленочных резисторов.

С помощью модернизированного трехэлектродного метода ионно-плазменного напыления [4] были получены из мозаичной мишени пленки сплавов: 1) Fe + 12 ат. % Nd + 8 ат. % B; 2) Fe + 15.1 % Nd + 8.3 % B; 3) Fe + 16 % Nd + 9.5 % B; 4) Fe + 16 % Nd + 20 % B; 5) Fe + 13 % Nd + 21 % B; 6) Fe + 12 % Nd + 20 % B + 4 % Al и 7) Fe + 10 % Nd + 21 % B + 3 % Al.

При получении сплавов стартовый вакуум дости-

гал 1.1 мПа, рабочий вакуум составлял 5.3 сПа, ускоряющее напряжение составляло 1.2 кВ для сплавов 1, 2 и 2 кВ для остальных пленок, кроме того, варьировалась толщина пленок.

Тонкие (толщиной 10—30 нм) свеженапыленные пленки (2, 3) характеризуются аморфной структурой. Изучение ближнего порядка пленок с аморфной структурой в зависимости от режима проводили методом дифракции электронов [1, 3]. На рис. 1 и 2 представлены функции радиального распределения атомов (ФРР) для сплавов 3 и 2 соответственно. Для пленок 3 первый пик ФРР приходится на $r = 0.29$ нм, его площадь составляет $Q = 6.1$ у. е., что всего на 3 % отличается от расчетного [2] значения при статистическом распределении атомов компонентов. Наличие в сплаве микрообластей чистых компонентов или химических соединений приводит к расчетным значениям, значительно отличающимся от полученных результатов.

Полученные пленки характеризуются большой одноосной магнитной анизотропией в плоскости

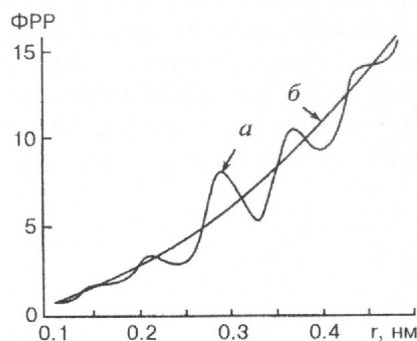


Рис. 1. Функция радиального распределения атомов пленки состава 3 (А) и 2 (Б): а — ФРР атомов; б — средняя атомная плотность $4\pi r^2 \rho_0$

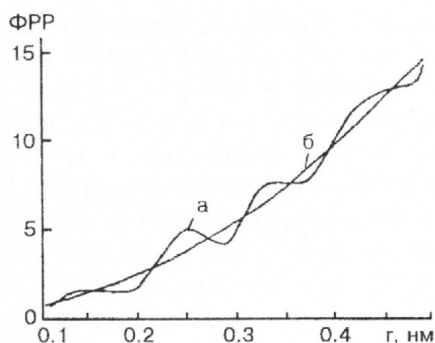


Рис. 2. Функция радиального распределения атомов пленки состава 2: а — ФРР атомов; б — средняя атомная плотность $4\pi r^2\rho$

пленок. Поэтому все значения магнитных характеристик приводятся для случая, когда приложенное магнитное поле параллельно плоскости пленок. Кривые зависимости вектора намагниченности от напряженности приложенного поля в трудном направлении имеют вид безгистерезисных кривых. Намагниченность насыщения M_s пленок 3 составляет 0.4 МА/м, коэрцитивная сила $H_c = 6$ кА/м, остаточная намагниченность $M_r = 0.3$ МА/м.

Для пленок 2 первый пик ФРР соответствует значению $r = 0.255$ нм, площадь под пиком $Q = 4.1$ у. е. Атомный радиус Fe составляет 0.126 нм [2], вполне возможно, что в первом пике ФРР отражены расстояния Fe—Fe. Если предположить, что в пленках 2 имеются микрообласти чистого Fe, а атомы Nd и В распределены статистически, то расчетное значение для площади под пиком будет отличаться от экспериментального всего на 5 %. При статистическом распределении атомов всех компонентов, а также при наличии в пленках 2 химического соединения рассчитанные значения значительно отличаются от полученных результатов. Поэтому мы считаем, что в пленках 2 имеются микрообласти чистого железа. В этих пленках $M_s = 1.5$ МА/м, $H_c = 10.3$ кА/м, $M_r = 1.2$ МА/м. Намагниченность насыщения массивного железа $M_s = 1.7$ МА/м, что сравнимо с полученным значением, и может также свидетельствовать в пользу существования в пленках 2 микрообластей чистого железа.

Метод построения политерм электросопротивления и рентгенофазовые исследования после нагревов показали, что в интервале 250—440 °С в пленках происходит распад АФ с образованием дисперсных выделений α -Fe. Повышение температуры до 560 °С в пленках 3 приводит к росту количества выделений α -Fe, период решетки кото-

рых составляет $a = 0.2870$ нм. Кроме того, в структуре пленок присутствуют следы фазы Fe_3B и $\text{Nd}(\text{OH})_3$. Магнитные характеристики этих пленок достигают $H_c = 10$ кА/м, $M_r = 0.5$ МА/м, $M_s = 0.56$ МА/м. При нагреве до 700 °С в пленках 3 уменьшается объемная доля выделений α -Fe, при этом период решетки α -Fe составляет $a = 0.2853$ нм, а доля фазы Fe_3B увеличивается, кроме того имеются следы фазы FeO. Это приводит к возрастанию H_c до 53 кА/м, но уменьшению M_r до 0.3 МА/м и M_s до 0.4 МА/м. В структуре пленок 2 при нагреве до 700 °С есть достаточно крупные равновесные выделения α -Fe ($a = 0.2865$ нм) и следы сложных окислов на основе Nd. Поэтому магнитные характеристики пленок изменяются: $H_c = 39.5$ кА/м, $M_r = 1.1$ МА/м, $M_s = 1.5$ МА/м.

Следует отметить, что в близких по химическому составу тонких пленках 3 и 2 образовались различные структуры, и как следствие, пленки имеют различные магнитные свойства. Сам метод ионно-плазменного распыления, связанный с большими пконденсации, приводит к возникновению в тонких пленках неравновесных состояний, образование которых в первую очередь определяется механизмами конденсации. Огромное влияние на кинетику образования вакуумных конденсатов, а также на процессы, происходящие в пленках после окончания конденсации, оказывают условия получения. Изменение ускоряющего напряжения с 1.2 кВ в 2 до 2 кВ в 3 привело к повышению кинетической энергии осаждающихся на подложку атомов, а также к увеличению скорости конденсации атомов, которая значительно влияет на степень неравновесности пленок. Для пленок 3 это выразилось в увеличении кратчайшего межатомного расстояния до 0.29 нм и статистическом распределении атомов компонентов. Для пленок 2, полученных при менее неравновесных условиях, энергетически выгодно образование микрообластей α -Fe.

В толстых пленках 1, 2, 4—7 (толщиной 100 нм и выше) фиксируется формирование нанокристаллической структуры в исходном состоянии. Характер изменения структуры и физических свойств после нагревов и длительных выдержек свидетельствует о протекании релаксационных процессов. Так размер области когерентного рассеяния (ОКР) пленок, напыленных на скол NaCl, с ростом температуры уменьшается от 10.5 нм при комнатной температуре до 4.5 нм после 4-часовой выдержки при 160 °С, а затем возрастает до 7 нм и стабилизируется после таких же выдержек при температурах от 200 до 350 °С. После 1 года выдержки пленок в вакууме ОКР уменьшается до 3.0 нм, но характер изменения ОКР после выдер-

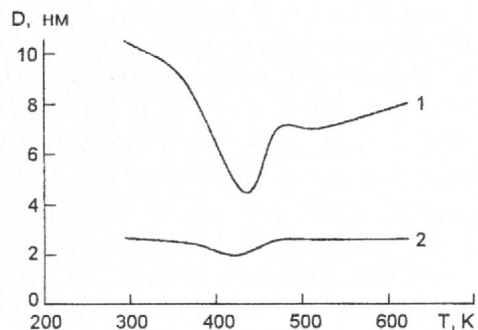


Рис. 3. Температурная зависимость размера области когерентного рассеяния после 4-часовой выдержки: 1 — для свеженанесенных толстых пленок состава 2; 2 — для пленок состава 2 после 1 года хранения

жек остается таким же, только уменьшение ОКР выражено слабее (рис. 3). Такой же характер изменения ОКР после выдержек при повышенных температурах наблюдался и в пленках, нанесенных на танталовую и медную подложки. У пленок, нанесенных на ситалловую подложку, исследовалось изменение поверхностного электросопротивления в ходе таких же выдержек. Увеличение температуры выдержки от 90 до 160 °С характеризуется наличием максимума на временной зависимости сопротивления, т. е. сопротивление вначале возрастает, а затем уменьшается. Выдержки при более высоких температурах сразу сопровождаются уменьшением сопротивления, что свидетельствует не о релаксационных процессах, а о начале фазовых превращений. Так, в структуре пленок 2 после нагрева выше 600 °С есть крупные равновесные выделения α -Fe с $a = 0.2865$ нм, следы ферромагнитной фазы $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ и сложных окислов на основе Nd. В пленках составов 4-7 кроме крупных равновесных зерен α -Fe есть следы фазы Fe_3B и

сложных окислов. Такой же характер изменения электросопротивления наблюдается и в пленках после 1 года хранения в вакууме, но этот эффект, как и для ОКР, выражен слабее. По результатам изменения электросопротивления мы оценили энергию активации процесса структурной релаксации. В свеженанесенном состоянии энергия активации составляет 680 К, а в пленках после 1 года выдержки 1340 К. Свеженанесенные толстые пленки состава 2 имеют магнитные характеристики, занимающие промежуточное значение между свеженанесенными и отожженными тонкими пленками этого же состава. Для пленок состава 1, 4-7 магнитные характеристики ближе к характеристикам пленок чистого железа.

1. Набитович И. Д., Стецов Я. И., Волощук Я. В. Определение когерентной интенсивности и интенсивности фона по экспериментальной кривой рассеяния электронов // Кристаллография.—1967.—№ 12.—С. 584—587.
2. Скрыпешевский А. Ф. Структурный анализ жидкостей и аморфных тел. — М.: Высш. шк., 1980.—328 с.
3. Татарина Л. И. Электронография аморфных веществ. — 1972.—102 с.
4. Bashev V. F., Dotshenko F. F., Miroshnichenko I. S., Palsalsky V. H. Structure and electrical properties of Ag-W films in metastable states // Phys. of Metals and Metallography.—1992.—73, N 2.—P. 152—156.

STRUCTURE AND PROPERTIES MODIFICATION OF Fe-Nd-B FILMS AT ISOTHERMAL DELAY

S. I. Ryabtsev, N. A. Kutseva, I. S. Ryabtsev

It is carried out the experimental examinations of the influence of chemical composition, conditions of an ion-plasma sputtering and subsequent heat treatment on a phase composition of Fe-Nd-B films. There were defined the temperature intervals of stability of a phase composition of films. It is revealed, that during a structural relaxation the electro resistance and size of region of coherent scattering vary on a curve with saturation. There was evaluated the magnitude of activation energy of a structural relaxation process. There were determining the compositions of films with a high magnetic properties.