Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

А. Д. Васильев, Е. А. Иванов, Влияние ультразвука на диффузию в тонких поликристаллических пленках, *Вестн. Сам. гос. техн. ун-та. Сер. Физ.-мат. науки*, 2005, выпуск 38, 78–81

DOI: <https://doi.org/10.14498/vsgtu375>

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением
<http://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 35.173.137.237

26 апреля 2023 г., 03:17:32

Физика твердого тела

УДК 539.219

А. Д. Васильев, Е. А. Иванов

ВЛИЯНИЕ УЛЬТРАЗВУКА НА ДИФФУЗИЮ В ТОНКИХ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ

Проведен анализ влияния ультразвука на диффузионные процессы в тонкопленочной поликристаллической системе Pd/Ag при частотах, близких к резонансной частоте дислокационных трубок.

Влияние ультразвука на диффузию в металлах изучено в основном при сравнительно больших деформациях образцов [1]. С точки зрения исследования механизмов влияния ультразвука на диффузию более ценным являются эксперименты с малой величиной деформации образца. Одним из объектов, в которых до сих пор нет ясности о механизмах диффузии, являются тонкие поликристаллические пленки [2]. Поэтому исследование особенностей диффузии в поликристаллических пленках при помощи ультразвука является актуальным. Целью настоящей работы является исследование механизмов диффузии в тонкой поликристаллической системе Pd/Ag с помощью ультразвука частотой в десятки мегагерц.

В качестве источника ультразвука использовалась пластина пьезокварца с модой колебаний — сдвиг по толщине. Одной из обкладок этой пластины является биметаллическая пленка, в которой исследуется диффузия (рис. 1). Кварцевый резонатор включается в схему генератора электрических колебаний в качестве элемента обратной связи, в результате чего генератор возбуждается на частоте резонанса кварцевого резонатора, что обеспечивало максимальную амплитуду механических колебаний.

Рис. 1. Схема образцов, используемых при исследовании влияния ультразвука на диффузию в тонких пленках:
1 и 3 — серебряные пленочные электроды; 2 — кварцевая пластина;
4 — палладиевая пленка

Биметаллическая пленка готовится напылением в вакууме сначала серебра на кварцевую пластину, а затем — палладия на полученную серебряную пленку. Толщина пленок серебра и палладия равна 0,1 мкм. Средний размер зерен в пленках палладия и серебра примерно равен толщине пленок и составляет величину около 0,1 мкм. Эффективный коэффициент диффузии вычисляет с помощью анализа формы

мы рентгеновской дифракционной линии (111) диффузионной зоны биметаллической пленки [3].

Исследования проводились на 5 частотах: 6, 15, 26, 45 и 104 МГц. В поликристаллах дислокации практически не откликаются на частоты ниже 10 МГц, к тому же в этом случае добавляется сложность технического характера. Для резонаторов с колебаниями типа «сдвиг по толщине» на частотах ниже 10 МГц при необходимых значениях деформации образцов напряжения на кварцевом резонаторе должны достигать нескольких сотен вольт, что приводит к ряду неудобств при проведении эксперимента. При использовании резонаторов с другим типом колебаний возникает проблема сравнения результатов эксперимента, т. к. будет меняться вид деформации тонкой пленки.

Проведение экспериментов на частотах выше 100 МГц связано с большими техническими трудностями. С увеличением частоты, в целом, уменьшаются размеры кварцевого резонатора, а это приводит к сложностям в процессе рентгеновской съемки образца. На частоте 100 МГц

резонатор возбуждается на пятой гармонике, с повышением частоты растет и порядковый номер гармоники. Это ведет к повышению чувствительности резонатора к различным внешним воздействиям, например к затуханию в тонкой пленке, в результате чего генератор может возбудиться не на резонансной частоте или генерация может сорваться совсем. Чем выше частота, тем сложнее решать проблему размещения самого резонатора с напыленными пленками в печи, где производился диффузионный отжиг, а самого генератора — вне печи при комнатной температуре. С учетом всего вышеизложенного был выбран диапазон частот от 6 до 104 МГц.

На рис. 2 приведены значения эффективного коэффициента диффузии в тонкой палладиевой пленке при воздействии ультразвука и без этого воздействия. Частота ультразвука была 104 МГц, деформация пленки вблизи границы серебро-палладий была 10^{-5} . Видно, что под действием ультразвука происходит увеличение эффективного коэффициента диффузии в несколько раз.

На рис. 3 представлена частотная зависимость роста эффективного коэффициента диффузии при действии ультразвука. Приведенная частотная зависимость имеет характер сильно задемпфированного резонанса. Резонанс находится в области высоких частот — 100 МГц, а может быть на еще более высоких частотах.

В настоящее время полагается, что в тонких поликристаллических пленках доминирует диффузия по границам зерен [2]. Но в этом случае очень трудно объяснить влияние ультразвука на диффузию, так как границы зерен не взаимодействуют с ультразвуком частотой в десятки мегагерц и деформацией 10^{-5} [4, 5]. Результаты, полученные в настоящей работе, удастся объяснить, если предположить, что в тонких поликристаллических пленках большую роль играют движущиеся дислокации, как это было предложено для случая крупнокристаллических пленок [6].

Известно, что в анализируемой области частот ультразвука находится резонанс поперечных колебаний дислокационных трубок [4, 5]. Колебания дислокационных трубок под действием ультразвука при наличии напряжений приводят к увеличению скорости движения дислокаций. Феноменологически это проявляется в ускорении пластической деформации при воздействии ультразвука [7]. В случае доминирования в образцах диффузии по движущимся дис-

Рис. 2. Значения эффективных коэффициентов диффузии в палладиевой пленке:

1 — без воздействия ультразвука; 2 — при воздействии ультразвука

Рис. 3. Зависимость отношения эффективного коэффициента диффузии серебра под действием ультразвука $D_{уз}$ к коэффициенту диффузии при его отсутствии D от частоты f ультразвука в тонкопленочной паре Pd/Ag в области содержания 90–95% Pd. Деформация $3 \cdot 10^{-6}$, температура диффузионного отжига 470 К

локациям, под влиянием ультразвука возрастает скорость перемещения таких дислокаций и, как следствие, увеличится эффективный коэффициент диффузии.

Для увеличения достоверности полученных результатов использовались контрольные образцы двух типов.

Контрольные образцы первого типа — это образцы с тонкими поликристаллическими металлическими пленками на стекле. Эти контрольные образцы готовились одновременно с образцами на кварцевых кристаллах, при помощи которых изучалось влияние ультразвука на диффузию в тонких пленках. Применяемая методика позволяла получать одновременно до 30 образцов. Поскольку образцы готовились одновременно при одинаковых условиях (одинаковый вакуум, скорость осаждения конденсата и т. д.), то структура всех образцов примерно одинакова. Диффузионный отжиг исследуемых и контрольных образцов производился одновременно в одной и той же печи. Единственным отличием было то, что в исследуемых образцах возбуждались высокочастотные механические колебания, а в контрольных образцах эти колебания не возбуждались. После диффузионного отжига в обоих видах образцов рассчитывались значения эффективных коэффициентов диффузии. При корректной постановке эксперимента в контрольных образцах эти значения должны были совпадать с величинами эффективных коэффициентов диффузии, приведенными на рис. 2 под цифрой 1. Разность в значениях эффективных коэффициентов диффузии, полученных в исследуемых и контрольных образцах, объяснялась действием ультразвуковых колебаний.

Вторым типом контрольных образцов являлись образцы, по структуре идентичные образцам, на которых исследовалось влияние ультразвука на диффузию. Но в контрольных образцах второго типа генератор высокочастотных электрических колебаний настраивался не на частоту резонанса кварцевого резонатора, а на некоторую соседнюю частоту, которая была меньше или больше резонансной частоты кварцевого резонатора на 10 – 20%. Для этого использовалась паразитная емкость кварцевого резонатора. В этом случае при обычной амплитуде электрических колебаний амплитуда механических колебаний была значительно (по крайней мере, в десятки раз) меньше, и механические высокочастотные колебания уже практически не должны были влиять на диффузию в тонких пленках. Эксперимент показал, что в данном случае значения эффективного коэффициента диффузии были такими, как показано на рис. 2 под цифрой 1, а не такими, как под цифрой 2. Полученный результат можно расценить как свидетельство в пользу корректности экспериментов, в которых исследовалось влияние ультразвука на диффузию в тонких поликристаллических пленках.

Таким образом, в тонкопленочной поликристаллической системе Pd/Ag при воздействии ультразвука частотой в десятки мегагерц наблюдается увеличение эффективного коэффициента диффузии. Наиболее простым объяснением наблюдаемому факту является предположение о преобладании в рассматриваемом случае диффузии по движущимся дислокациям, и ускорения движения таких дислокаций под действием ультразвука.

Полезную информацию о процессах, происходящих в тонких поликристаллических пленках в процессе диффузии, дает анализ поглощения ультразвука в образце. Исследования проводились на частоте 45 МГц. Затухание ультразвука в тонких пленках определялось по изменению амплитуды электрических колебаний генератора.

На рис. 4 представлено изменение во времени затухания ультразвука в образце в процессе диффузионного отжига. Здесь приведено изменение во времени температуры образца при диффузионном отжиге.

Из рис. 4 видно, что в начале диффузионного отжига (точка *B*), спустя некоторое время, затухание ультразвука начинает увеличиваться и довольно быстро достигает максимального значения (точка *D*), после чего некоторое время держится постоянным (до точки *E*), а затем начинает уменьшаться. Но во время диффузионного отжига затухание ультразвука (участок *D–F*) так и не достигает значения, существовавшего до начала диффузионного отжига. После окончания диффузионного отжига затухание ультразвука уменьшается (участок *F – G*) и становится примерно равным значению, существовавшему в образце до диффузионного отжига.

Объяснить изменение затухания ультразвука в образце в процессе диффузионного отжига можно, предположив существование в поликристаллической системе Pd/Ag дислокаций несоответствия. Перед диффузионным отжигом дислокации несоответствия закреплены и поэтому плохо откликаются на ультразвуковые колебания, вследствие чего затухание ультразвука в образце невелико. В начале диффузионного отжига напряжения, возникающие в процессе диффузии, отрывают дислокации несоответствия от точек закрепления. Эти дислокации начинают колебаться под действием ультразвука, вследствие чего энергия механических колебаний пре-

образуется в тепловую энергию, т. е. затухание ультразвука в образце увеличивается. Пока диффузия не пройдет на всю толщину палладиевой пленки, поглощение ультразвука остается постоянным. При достижении диффузионной зоны свободной поверхности палладиевой пленки дислокации несоответствия начнут выводиться за пределы образца, их плотность начнет уменьшаться, а значит, начнет уменьшаться и поглощение механических колебаний этими дислокациями, и затухание ультразвука начнет падать. После окончания диффузионного отжига дислокации несоответствия частично будут выведены за пределы образцов, а частично будут снова закреплены, и затухание ультразвука должно вернуться к значению, близкому к существовавшему в образце до начала диффузионного отжига.

Из приведенного анализа следует, что при диффузионном отжиге при более низких температурах, когда диффузия не проходит на всю толщину палладиевой пленки, изменение затухания ультразвука с течением времени будет более простым. В начале диффузионного отжига первоначально закрепленные дислокации начинают двигаться, поглощая ультразвук, и затухание будет увеличиваться. Во время всего диффузионного отжига дислокации несоответствия остаются незакрепленными, и плотность их остается постоянной. Поэтому затухание ультразвука должно оставаться постоянной величиной и иметь большее значение, чем до начала диффузионного отжига. После завершения диффузионного отжига, когда температура образца сравнивается с комнатной температурой, произойдет прекращение движения дислокаций несоответствия, они будут закреплены и не смогут откликаться на ультразвуковые механические колебания. В этот момент затухание ультразвука станет таким, каким оно было до начала диффузионного отжига. Эксперимент полностью подтверждает описанное здесь изменение затухания ультразвука в образцах в процессе диффузионного отжига.

Рис. 4. Изменение затухания ультразвука частотой 45 МГц W (а) и температуры T (б) в тонкопленочной поликристаллической системе Pd/Ag в процессе диффузионного отжига

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Кулемин А. В. Ультразвук и диффузия в металлах. М.: Металлургия, 1978. 200 с.
2. Беггин Дж., Поут Дж. Тонкие пленки. Взаимная диффузия и реакции. М.: Мир, 1982. 209 с.
3. Пинес Б. Я., Чайковский Э. Ф. Рентгенографическое определение коэффициента гетеродиффузии в сплавах, образующих твердые растворы замещения // ДАН СССР, 1956. Т. 111, № 6. С. 1234–1237.
4. Криштал М. А., Головин С. А. Внутреннее трение и структура металлов. М.: Металлургия, 1976. 375 с.
5. Постников В. С. Внутреннее трение в металлах. М.: Металлургия, 1974. 351 с.
6. Бекренев А. Н., Васильев А. Д. Низкотемпературная диффузия в крупнокристаллических пленках в эпитаксиальных системах Ni/Cu и Pd/Ag // Металлофизика, 1992. Т. 14, № 3. С. 91–93.
7. Лебедев А. Б. Внутреннее трение в процессе квазистатического деформирования кристаллов // ФТТ, 1993. Т. 35, № 9. С. 2305–2341.

Поступила 24.05.2005 г.