

SZILÁRDTEST-REAKCIÓ NANOSKÁLÁN

Cserhádi Csaba,¹ Parditka Bence,¹ Tomán János,¹ Csik Attila,² Erdélyi Zoltán¹¹Debreceni Egyetem TTK Szilárdtest Fizikai Tanszék²MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen

A technikai eszközök méretének drasztikus csökkenésével került előtérbe a szilárd testekben lejátszódó reaktív diffúziós folyamatok kezdeti szakaszának vizsgálata, amelynek során nagy szerepet játszik az új fázisok nukleációja és azok növekedése. Fontosságuk ellenére ezen folyamatok mikroszkopikus (atomi) részletei nem tisztázottak. Különösen igaz ez azokban az esetekben, amikor nagy a ∇c koncentrációgradiens a kialakított vagy kialakult határfelületeken. Ebben az esetben ugyanis az új fázis keletkezését és növekedését nemcsak a termodinamika, hanem a folyamat kinetikája is befolyásolja. Az irodalom háromféle nukleációs módot különböztethet meg: a polimorfikus, a keresztirányú és a teljes keverési sémát [1–3].

Polimorfikus módban az új intermetallikus fázis csírái az anyafázisok eredeti határfelületénél keletkeznek, miután a beinduló kölcsönös diffúzió hatására kialakuló koncentrációprofil gradiense elég kicsivé válik. Az új fázis csírája ekkor az atomok lokális átrendeződése során jön létre anélkül, hogy a koncentrációprofil menete megváltozna. Ez a fázisképződési

mód akkor játszhat szerepet, ha az összetevők az anyafázisban megfelelően nagy oldékonysággal rendelkeznek, valamint a keletkező fázisban az egyik összetevő jóval mozgékonyabb, mint a másik. A nagyobb mozgékonyabb ahhoz szükséges, hogy a gyors lokális átrendeződés anélkül mehessen végbe, hogy a teljes profil menete megváltozna. Ebben a nukleációs sémában az éles koncentrációprofil akadályozza a csíráképződést.

Amennyiben a kiindulási anyagokban az oldékonyság erősen korlátozott, a csíráképződés végbemehet úgy, hogy a szomszédos tartományból az embrió irányába a koncentrációgradiensre merőlegesen áramlik az anyag. Ez a keresztirányú, más néven transzverzális nukleációs mód. Éles koncentrációgradiens esetén ez a séma sem garantálja az új fázis góccinak kialakulását.

Ha a képződő új fázisban mindkét összetevő diffúziója jóval nagyobb, mint a kiindulási anyagokban, a ∇c irányában folyó kölcsönös diffúzió elég anyagot szállít az embrió kialakulásához. Ezt az esetet teljes keverési sémának hívják. Ebben az esetben a határfelületi éles koncentrációgradiens növeli az új fázis kialakulásának hajtóerjét.

Kevés olyan méréssel találkozni az irodalomban, amelyek alapján megbízhatóan lehet különbséget tenni ezen növekedési módok közt [2], mivel az ilyen vizsgálatokhoz nano, vagy még inkább atomi felbontású mérésekre van szükség.

Még ennél is kevesebbet lehet tudni, mi történik a kezdeti növekedési szakaszban, vagyis a csírák kialakulása és az állandósult növekedés közti időszakban.



Cserhádi Csaba egyetemi docens, okleveles fizikus, 1989-től a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Intézetének munkatársa. Több külföldi egyetemen volt vendégkutató. Kutatási tevékenysége a szilárd testekben különböző méretskálán lejátszódó diffúziós, valamint szilárdtest-reakciós jelenségek – elsősorban kísérleti – vizsgálata. Az ELFT Anyagtudományi szakcsoportjának elnöke.



Parditka Bence István egyetemi adjunktus. 2014-ben szerezte PhD fokozatát Franciaországban anyagtudományból, a Debreceni Egyetemen pedig fizikából. Jelenleg a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének munkatársa. Kutatási területe félvezető- és oxidalapú vékonyrétegek gyártása fizikai (porlasztás és párologtatás) és kémiai (ALD) módszerekkel, illetve ezen vékonyrétegekben végbemenő szilárdtest-reakciók vizsgálata.



Tomán János egyetemi tanársegéd, okleveles anyagtudós. 2016-tól a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének munkatársa. Kutatásának gerincét a szilárd testekben lezajló atommozgási folyamatok különböző módszerekkel történő számítógépes szimulációja képezi. Tagja a háromdimenziós sztochasztikus kinetikus átlagtermodell (SKMF) fejlesztőcsapatának. Jelenleg az Új Nemzeti Kiválóság Program ösztöndíjasa.



Csik Attila okleveles fizikus, az MTA Atommagkutató Intézet tudományos főmunkatársa. Kutatási tevékenysége vékonyrétegek és rétegrendszerek magnetronos porlasztással történő előállítására, röntgendiffrakciós és tömegspektrometriás vizsgálata. Az ELFT Vákuumfizikai Szakcsoport és a Magyar Vákuumtársaság titkára.



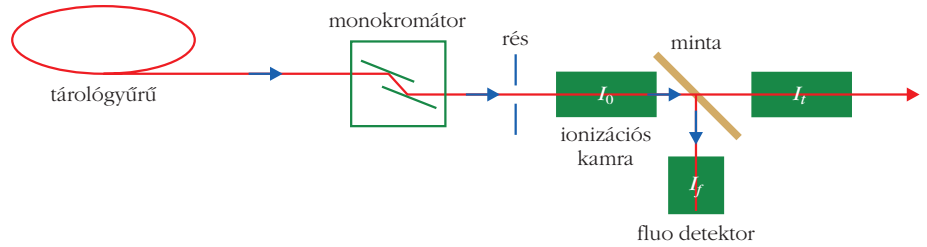
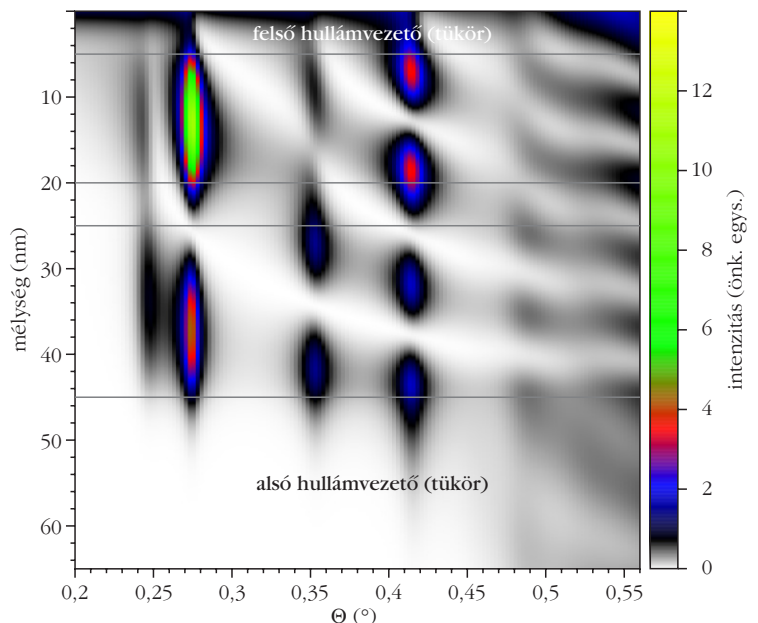
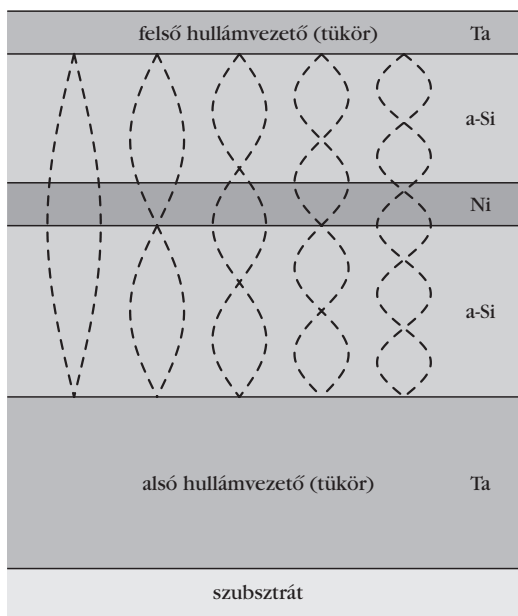
Erdélyi Zoltán az MTA doktora, a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszékének tanszékvezető egyetemi tanára. PhD fokozatot anyagtudományból Franciaországban, fizikából a Debreceni Egyetemen szerzett. Több európai és egy japán egyetemen volt vendégprofesszor, vendégkutató. Főbb kutatási területe az atommozgási folyamatokkal összefüggő jelenségek kísérleti és elméleti vizsgálata. Munkásságát Selényi Pál-díjjal ismerték el.

Különböző kísérleti technikákat, valamint számítógépes szimulációs módszert használva próbáltunk ismereteket gyűjteni a fázisnövekedés ezen szakaszáról. A kísérleti technikák közül kiemelendő a sűrűlő beeséses röntgenfluoreszcencia-analízis (GIXRF) és a kiterjesztett röntgenabszorpció finomszerkezet (EXAFS) vizsgálatának kombinációja, amely módszert csoportunk elsőként alkalmazta Co-Si kétalkotós rendszerben intermetallikus fázis növekedésének vizsgálatára [4].

Kísérletek

A mérésorozat mintáit az ATOMKI és a Debreceni Egyetem Szilárdtest Fizikai Tanszéke közös Anyagtudományi Laboratóriumában készítettük és minősítettük. Magnetronos porlasztással Ta (5 nm) / a-Si (12 nm) / Ni (10 nm) / a-Si (14 nm) / Ta (30 nm) / SiO₂ (szubsztrát) szerkezetű vékonyfilm-geometriájú mintákat készítettünk (a-Si: amorf Si). A Ta-réteget egyrészt azért választottuk, mert nagy rendszáma miatt jó hullámvisszaverő tulajdonságú anyag, másrészt a Ta/Si határfelületen nem történik diffúzió, mivel ezen anyagok termodinamikai okok miatt nem keverednek egymással. A mintákat vákuumban ($\approx 10^{-5}$ Pa) 463 K és 503 K hőmérsékleten, különböző ideig hőkezeltük. Ezen mintákat a GIXRF-EXAFS mérésekben használtuk fel. Ezen kívül készítettünk (Ni₂₀ nm/Si₂₀ nm) 10 multiréteg-szerkezetű mintákat is, amelyekben hőkezelés közben szimultán röntgendiffrakció (XRD) és 4-pontos ellenállásmérés (4WR) is végeztünk. A GIXRF-EXAFS méréseket a

2. ábra. Balra a hullámvezető szerkezet látható. A Ta-tükrök között helyezkedik el az a-Si/Ni/a-Si szerkezet. A hullámvezető szerkezetben az első öt lehetséges módot ábrázoltuk. Jobbra a 8,4 keV fotonenergiaánál számolt elektromos tér intenzitását ábrázoltuk. A különböző módusokat a beesési szög függvényében ábrázoltuk.



1. ábra. Mérési elrendezés a GIXRF reflektivitás- és EXAFS-mérésekhez.

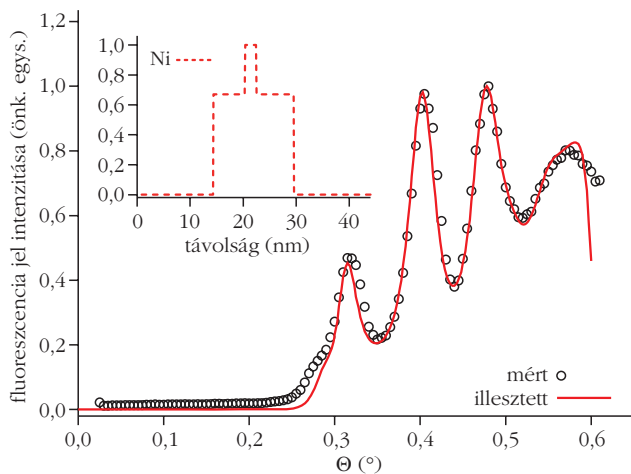
Bessy II (Helmholtz-Zentrum Berlin) szinkrotronforrás KMC2 minősített monokromatikus nyalábcatornáján, míg a XRD-4WR méréseket a 7TMPW nagy áramú és fluxusú nyalábcatornáján végeztük. A mérések részleteit a [4] publikációban fejtettük ki, a mérési összeállítást az 1. ábra mutatja.

GIXRF-mérések hullámvezető struktúrában

Az első módszer, amit alkalmaztunk, a GIXRF-módszer volt, amit röntgen állóhullámmódszerrel egészítettünk ki. A technika alkalmazása során a vizsgálni kívánt diffúziós párt két Ta-réteg közé rétegeztük. A Ta, nagy rendszámú elem lévén, kis beesési szögeknél tükröként viselkedik. A geometriának köszönhetően röntgen állóhullám alakul ki a Ta-tükrök között, mivel azokon a beeső sugárzás teljes visszaverődést szenved, és önmagával interferálva meghatározott beesési szögeknél állóhullámot generál. A rezonancia feltétele:

$$\Theta_m = \frac{(m+1)\pi}{kd}, \quad (1)$$

ahol k a beeső röntgensugárzás hullámszámvektorának abszolút értéke, d pedig a tükrök közötti távolság. Ezen feltétel mellett jön létre az m -edik transz-



3. ábra. GIXRF mért (körök) és illesztett (piros vonal) adatok. A mintát 503 K-en 4,5 órás hőkezelésnek vetettük alá. Az inzert az illesztésnek megfelelő Ni-koncentrációprofilját mutatja.

verzális elektromos módus (TE). A 2. ábra mutatja a kialakult elektromos teret. A beeső és a visszaverődő nyaláb által alkotott síkra merőlegesen egy energiadiszperzív röntgendetektort helyeztünk el, amely a keletkezett röntgenfluoreszcencia-jelet méri. A jel a kialakult elektromos állóhullám és a mérni kívánt (esetünkben Co, illetve Ni) elemek által elfoglalt térfogat átlapolásakor keletkezik. Ahhoz, hogy fluoreszcenciajelet kapjunk, a beeső röntgennyaláb energiáját úgy állítottuk be, hogy az csak a számunkra érdekes elemet gerjessze (például $E_{beam} = 8,33$ keV nyalábenergia esetén csak a Ni $K\alpha$ vonala gerjesztődik). *Parrot* [5] módszere alapján – a minta geometriájának ismeretében – a struktúrában keletkező állóhullám, valamint a generált fluoreszcenciajel intenzitása is kiszámítható [6, 7]:

$$I(\Theta) = \int_0^L c(x) E^2(\Theta, x) dx, \quad (2)$$

ahol c a keresett anyag koncentrációja (Co vagy Ni), E az elektromos tér amplitúdója, L a teljes mintavastagság (tükrökkel együtt) és Θ a nyaláb beesési szöge. A beesés szögét változtatva az elektromos tér és így az állóhullám módusa is változik. Ugyanígy változik az előbbieken leírt átlapolt zóna helyzete és mérete, vagyis a fluoreszcenciajel intenzitása (3. ábra). Eszerint a minta geometriájának ismeretében, a (2) egyenlet felhasználásával a fluoreszcenciajel intenzitása a röntgennyaláb beesési szögének függvényében kiszámítható. A számításokhoz kifejlesztett programunk az IMD 4.1.1 optikai adatbázisát használja [8]. A mért és számolt intenzitásértékeket a minta szerkezetének finomhangolásával lehet illeszteni [4, 9].

EXAFS

Ha a mintára beeső röntgenfotonok energiája megegyezik, vagy nagyobb a vizsgálandó elem valamely elektronjának kötési energiájánál, az elnyelt röntgen-

fotonok száma drámaian megnő, a röntgenfluoreszcencia intenzitása csökken. A röntgensugárzás abszorpció spektrumát mérve ez a jelenség az abszorpció él megjelenéséhez vezet. Az abszorpció együttható fluoreszcenciaelrendezésben arányos a fluoreszcencia és a beeső röntgennyaláb intenzitásának hányadosával:

$$\mu(E) \propto \frac{I_f}{I_0}. \quad (3)$$

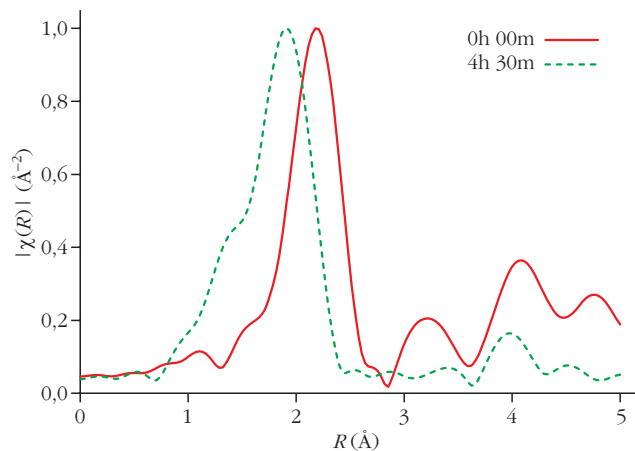
Az EXAFS-spektrum az abszorpció együtthatót ábrázolja az energia függvényében az abszorpció él feletti 50–1000 eV tartományban. A röntgenabszorpció hatására az atom fotoelektront emittál, amelynek kinetikus energiája a beérkező foton energiájának és az elektron kötési energiájának különbsége. Az emittált fotoelektron-hullám szóródik a környező atomokon. Könnyen elképzelhető, hogy a visszazórt elektronhullám különböző módusokat létrehozva önmagával interferál. Ez az interferencia befolyásolja a beérkező röntgenfoton abszorpciójának valószínűségét és oszcillációként jelenik meg a mért abszorpció spektrumon. Az oszcilláció paraméterei – többek között – a legközelebbi atomok távolságától, koordinációs számától, valamint rendszámától függenek. A duzzadóhelyek, illetve a csomópontok helyét a keletkezett fotoelektron hullámhossza, valamint a megtett út (a gerjesztett atomtól a legközelebbi szomszédokig és vissza) határozza meg aszerint, hogy az interferencia során erősítés vagy kioltás jön létre. Az EXAFS-jel valójában az abszorpció együttható normált oszcilláló része:

$$\chi(E) = \frac{\mu(E) - \mu_0(E)}{\Delta\mu(E_0)}, \quad (4)$$

ahol $\mu(E)$ a mért abszorpció együttható, $\mu_0(E)$ egy izolált atom abszorpció együtthatója, $\Delta\mu(E_0)$ pedig az abszorpció együttható ugrása az E_0 abszorpció élnél. A sugárirányban különböző távolságokban lévő szóró atomokhoz tartozó oszcillációk az EXAFS-jel Fourier-transzformálásával szeparálhatók. Az abszorpció spektrum mérése során változtatni kell a beeső röntgennyaláb energiáját. Ennek hatására a hullámvezetőben keletkezett állóhullám is megváltozik. Az állóhullám módusának fixen tartásához folyamatosan kell változtatni a nyaláb beesési szögét. Ezzel a módszerrel a minta adott mélységéből (a korábban leírt információs térfogatból), körülbelül 2 nm-es vastagságból kémiai információt kapunk. Az elektromos tér módusát változtatva az információs térfogat helye változik, így a határfelület(ek) környéke feltérképezhető.

Mérési eredmények

503 K-en, különböző ideig hőkezelt mintákat vizsgáltunk. A 3. ábra a mért és a számolt GIXRF-intenzitásdiagramot mutatja (4,5 óra hőkezelési idő után), az inzert pedig a rekonstruált Ni-koncentrációprofil.



4. ábra. A (4) egyenletben definiált $\chi(k)$ 1-re normált Fourier-transzformáltjának abszolút értéke. A folytonos vonal a hőkezeletlen, a szaggatott pedig a hőkezelt (503 K, 4,5 óra) minta görbéje. Az első nagy csúcs a legközelebbi szomszédok átlagos távolságát jelzi.

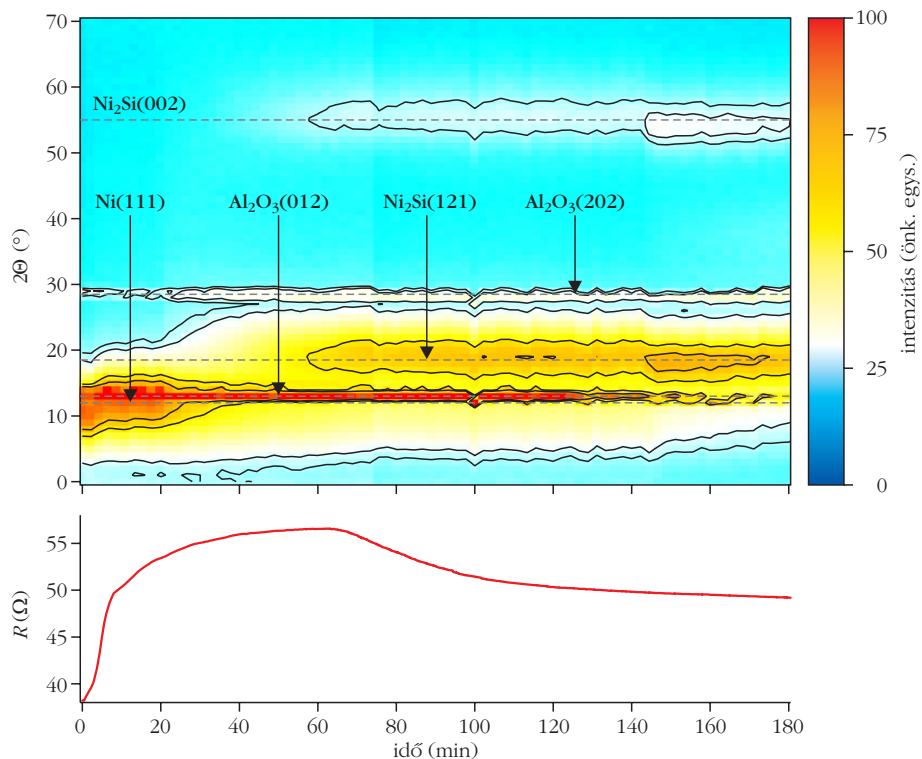
A mérések tanúsága szerint már a hőkezeletlen mintákban is 2:1 arányú összetételben találni Ni- és Si-atomokat (amorf vagy kristályos szerkezetben) a Ni-réteg mindkét oldalán. A jelenség nem ismeretlen, a magnetronos porlasztással készített minták esetében gyakran előfordul [10–12]. EXAFS-méréseket végeztünk a Ni abszorpciós élének közelében. A 4. ábra egy hőkezeletlen és egy hőkezelt (4,5 óra) minta Fourier-transzformált EXAFS-spektrumát mutatja.

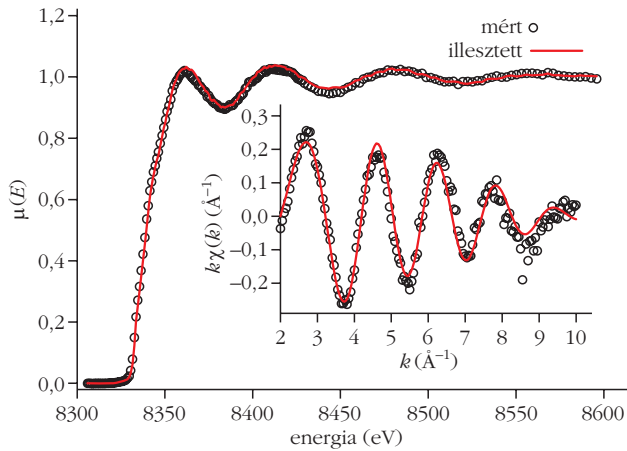
A legközelebbi szomszédok átlagos távolságát az első csúcs maximumának helye mutatja. Látható, hogy a hőkezelés hatására a legintenzívebb csúcs helye a kisebb R értékek felé tolódik, jelezve, hogy a legközelebbi szomszédok átlagos távolsága csökkent. Ez a tapasztalat egyrészt összhangban van azzal az elvárással, miszerint a hőkezelés során a diffúziós zónában Ni_2Si intermetallikus fázis keletkezik; másrészt arra is utal, hogy a hőkezeletlen mintában a határfelületeken a Ni- és Si-atomok ugyan 2:1 arányban vannak jelen, de a két anyag csak valamilyen, valószínűleg amorf szerkezetű keveréket alkot. Ezt a feltevényt támasztja alá az XRD-4WR mérés is (5. ábra). Az ábra felső részén a hőkezelés során felvett diffrakciós görbéket látjuk, a függőleges tengelyen a diffrakciós szöget, a vízszintes tengelyen pedig a hőkezelési időt ábrázoltuk. A csúcsok intenzitását a jobb oldali skála jelzi. Az ábra alsó része a minta hőkezelés közben mért ellenáll-

lását mutatja. A diffrakciós görbén kezdetben csak a Ni (111) csúcsa látható. A hőkezelés megkezdésével e csúcs intenzitása csökkenni kezd, a minta ellenállása pedig növekszik. Ez a folyamat egészen addig tart, amíg a hőkezelés hatására (~60 percnél) megjelennek a Ni_2Si -fázis csúcsai. Ekkor a minta ellenállása csökkenni kezd. A megfigyelés azt a korábbi feltevést támasztja alá, miszerint kezdetben a kis ellenállású Ni-fázis mennyisége csökken és egy jóval nagyobb ellenállású Ni-Si keverék jön létre. Amikor ez a keverék Ni_2Si -formában kristályosodni és növekedni kezd, az ellenállás is csökken.

A 6. ábra a (3) egyenletben definiált abszorpciós együttható illesztését mutatja (503 K, 4,5 óra). Az ismeretlen összetételű mintán mért spektrum illesztését Ni- és Ni_2Si -etalonokon mért abszorpciós spektrumok felhasználásával végeztük el, amihez az ATHENA-ARTEMIS szoftvercsomagot [14] használtuk. Ez egy tudományos célra kifejlesztett, első elviken alapuló FEFF-módszert [15] használó interaktív grafikus felület, kísérleti EXAFS-adatok illesztéséhez. Az illesztéssel meghatároztuk a minta kristályos Ni- és rendezett Ni_2Si -fázisának relatív mennyiségét. A szoftvercsomag segítségével a (4) egyenletben definiált EXAFS-jel k hullámszámmal súlyozott spektrumát is illesztettük. Az analízis során kristályos Ni-, rendezett Ni_2Si - és 2:1 arányban kevert rendezetlen Ni-Si szerkezetekből indultunk ki [13]. A különböző anyagok relatív mennyiségeit változtatva illesztettük a mért spektrumot. Az analízis megmutatta, hogy a

5. ábra. Az ábra felső része a hőkezelés során (467 K) felvett diffrakciós görbéket, az alsó rész a minta hőkezelés közben mért ellenállását mutatja. A hőkezelés elején a Ni (111) csúcsának intenzitása csökken, a minta ellenállása pedig növekszik. A Ni_2Si (002) és (121) csúcsának megjelenésével az ellenállás csökkenni kezd. Az Al_2O_3 -csúcsok a szigetelő anyagú hordozótól származnak.



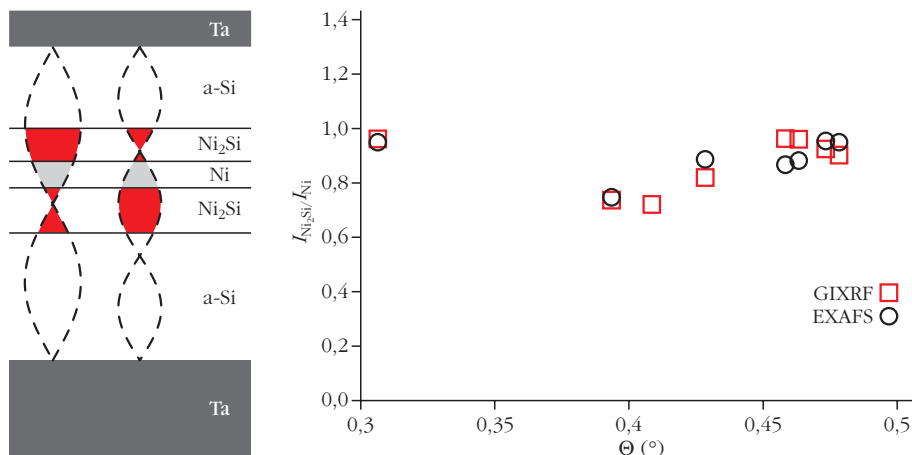


6. ábra. Az EXAFS-adatok illesztése $\theta = 0,4285^\circ$ -nál. A Ni- és Ni_2Si -etalonok súlyozása 0,113, illetve 0,887 volt. Az inzert a hullámszámvektor nagyságával súlyozott EXAFS-jel illesztését mutatja. Az illesztés során használt kristallográfiai paramétereket a [13] tartalmazza.

határfelületeket a hőkezeletlen mintában csak egy rendezetlen, 2:1 összetételű Ni-Si keverék, míg a hőkezelt mintákban a rendezett Ni_2Si -fázis fedti. Továbbá azt találtuk, hogy 5,5 óra hőkezelés után, a teljes Ni-réteg Ni_2Si -fázissá alakul át. Ez a tapasztalat összhangban van a GIXRF-, valamint az XRD-4WR mérésünkkel is.

A fluoreszcens jel mind a GIXRF-, mind az EXAFS-mérések esetében abból az információs térfogattól származik, ahol a tiszta Ni és a keletkezett Ni_2Si átfed a Ta-tükrök között kialakult elektromos állóhullámmal (7. ábra). A Ni_2Si -ből, illetve a tiszta Ni-ből származó intenzitások $I_{\text{Ni}_2\text{Si}}/I_{\text{Ni}}$ hányadosa meghatározható a GIXRF-mérésekből és illesztésekből, mivel ez egyenlő kell legyen a Ni_2Si által átlapolt terület $2/3$ -ával (a Ni_2Si $2/3$ -a Ni-atom) és a Ni által átlapolt terület hányadosával. Másrészt pedig az $I_{\text{Ni}_2\text{Si}}/I_{\text{Ni}}$ hányados egyenlő az EXAFS-mérések etalonos illesztéséből kapott súlyfaktorok hányadosával. A két mérés eredményei minden hőkezelési időnél jó egyezést mutat (7. ábra).

7. ábra. A bal oldali ábra a fluoreszcenciajel forrását ábrázolja két különböző állóhullámmódus esetén. A teljes jel a tiszta Ni (szürke tartomány), illetve a Ni_2Si (piros tartomány) által elfoglalt térfogat, valamint az állóhullám átfedéséből keletkezik. A jobb oldali ábrán az egyes információs térfogatokban keletkezett intenzitások hányadosát az EXAFS-mérések illesztéséből kapott adatokkal együtt ábrázoltuk. A mintát 503 K -en $4,5$ óráig hőkezeltük.



1. táblázat

A fémes réteg két oldalán keletkezett fázis vastagsága, valamint azok különbsége a hőkezelési idővel együtt

	idő (óra)	a-Si/fém	fém/a-Si	kül. (nm)
Ni-Si	0	5,4	6,2	0,8
	4,5	6,0	7,1	1,1
	4,75	6,6	8,1	1,5
	5,5	6,7	8,5	1,8
Co-Si	0	0,0	0,9	0,9
	1	0,5	2,5	2,0
	3	1,5	3,5	2,0

A hőkezelés hőmérséklete a Ni-Si rendszer esetén 503 K , a Co-Si rendszerénél 500 K volt.

Összegezve, a GIXRF-mérések kiértékelésnél kellett tételeznünk, hogy a magnetronos porlasztás során eltemetett Ni-réteg mindkét oldalán (amorf vagy kristályos) 2:1 arányú Ni-Si keverék keletkezik. Az XRD-4WR mérések megmutatták, hogy ez a fázis rendezett, intermetallikus Ni_2Si -fázissá alakul a hőkezelés során, és egészen addig növekszik, amíg a Ni nem fogy. A mérések során az is kiderült, hogy a Ni két határfelületén a keverékréteg vastagsága nem egyforma. Az alsó, hordozóhoz közelebbi oldalon a réteg vastagsága mintegy $0,8\text{ nm}$ -rel nagyobb, mint a felülethez közelebbi oldalon. A jelenség az úgynevezett dinamikus szegregáció következménye [16], vagyis amikor Ni-atomokat rétegezzünk a Si tetejére, a Si a felület felé igyekszik, mivel a rendszer számára energetikailag kedvezőbb, ha a Si a felületre szegregál. Amennyiben azonban Si-atomokat rakunk a Ni-rétegre, a Si a felületen marad a Ni pedig alatta. Keveredés csak a felületre érkezés nagy energiája miatt történhet. Eszerint a hordozóhoz közelebb a dinamikus szegregáció segíti, míg a felülethez közel gátolja a Ni-Si keverék létrejöttét.

A mérések meglepő módon arra engednek következtetni, hogy a vastagabb réteg gyorsabban vastagszik, mint a vékonyabb (1. táblázat), holott az ellen-

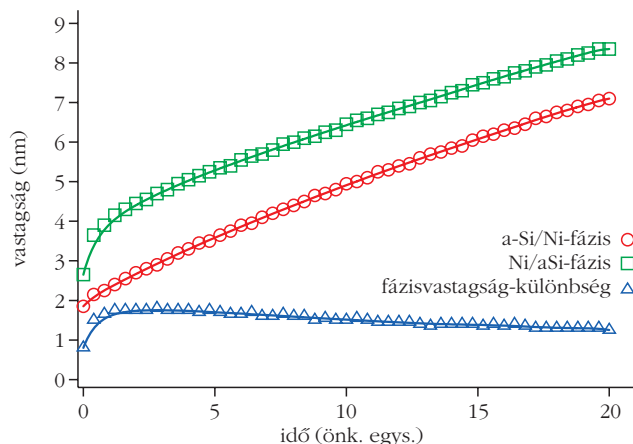
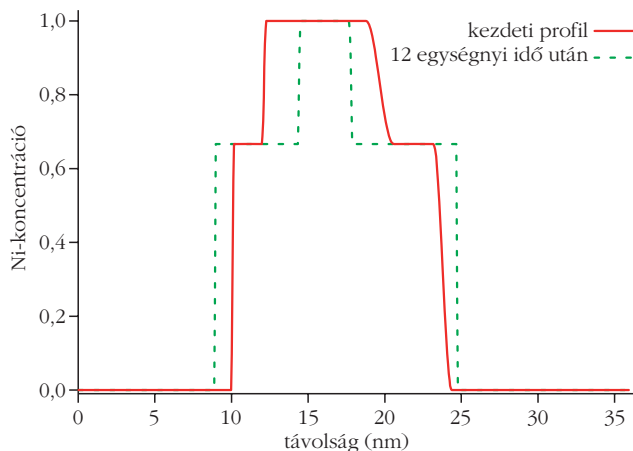
kezőjét várnánk. A diffúzió alapegyenletei alapján tegyük fel ugyanis, hogy az intermetallikus réteg x vastagsága a hőkezelési idő négyzetgyökével arányosan növekszik:

$$x \propto \sqrt{t},$$

úgynevezett parabolikus növekedés. Ekkor a növekedés sebessége a vastagság reciprokával változik:

$$\frac{dx}{dt} \propto \frac{1}{\sqrt{t}} \propto \frac{1}{x},$$

azaz a hőkezelés során a vastagabb réteg lassabban növekszik. Amennyiben a másik



8. ábra. Fölül a Ni koncentrációprofilját rajzoltuk fel a folyamat kezdetén és kis idővel később (12 időegység). A kiinduló állapotként a Ni-réteg bal oldalán 0,2 nm-es diffúz réteget, 1,8 nm vastag intermetallikus réteget és 0,3 nm vastag elmosott réteget állítottunk be. A 6,5 nm vastag Ni-réteg másik oldalán az 1,8 nm vastag elmosott réteget 2,6 nm-es Ni_2Si -fázis követi, majd 1,2 nm diffúz réteg ismét a tiszta szilíciumig. Alul a két oldalon keletkező intermetallikus réteg vastagságát és különbségüket ábrázoltuk a szimulációs (hőkezelési) idő függvényében. A diffúziós együtthatók 100-szor, illetve 1000-szer nagyobbak voltak a Ni_2Si -, illetve az a-Si fázisokban, mint a tiszta Ni-ben.

határesetet tételezzük fel, azaz $x \propto t$ (úgynevezett lineáris kinetika), a dx/dt sebesség állandó, amely szerint a kezdeti vastagságkülönbség nem változhat. Ugyanilyen viselkedést tapasztaltunk a korábban vizsgált [4] a-Si/Co/a-Si rendszerben is (1. táblázat). A megoldást a számítógépes szimulációs kísérletek adták. A modell részleteit [17] mellőzve, B/A/B réteges szerkezetben számoltunk, ahol B és A az a-Si, illetve a Ni- vagy Co-rétegeket jelentik. A kísérleteknek megfelelően az egyik határfelületre vastagabb, míg a másikra vékony Ni-Si (2:1), illetve Co-Si (1:1) keveréket

raktunk. A modellben szereplő diffúziós együtthatókat reálisan megválasztva, a kialakuló fázisban az együtthatókat 5–500-szor, míg az a-Si-ban 1000–10 000-szer nagyobbak vettük, mint a fémes anyagban. Ezen paraméterekkel mindkét rendszerre tudtuk reprodukálni a kísérletben kapottakat. A Ni-Si rendszerre számolt eredményt a 8. ábra mutatjuk. Látható, hogy a kezdeti 0,8 nm-es vastagságkülönbség a folyamat elején egészen 1,8 nm-ig növekszik, majd lassan csökkenni kezd.

A szimuláció tehát azt mutatja, hogy ha a határfelületen lévő átmeneti fázis vastag, ott több A (Ni vagy Co) és B (Si) anyag van, így könnyebben keletkezik és növekszik az új fázis, vagyis a kezdeti növekedési sebességek különbsége ezzel magyarázható. Ugyancsak lényeges, hogy az intermetallikus fázisban gyors a diffúzió. A számítások azt is megmutatták, hogy ha a keletkezett fázisban a diffúzió gyorsabb, akkor a kezdeti maximális vastagságkülönbség nagyobb lesz. Mindez azt mutatja, hogy az intermetallikus fázis növekedésének időbeli lefolyását a kezdeti koncentrációprofil alakja, azaz a kezdeti határfelület szélessége, valamint a kialakult fázisbeli diffúzió sebessége együttesen befolyásolja. A határfelület kezdeti szélessége – ami összefügg a szerkezet előállítási módjával – és a rendszerbeli atomi mobilitások különbözősége eszerint fontos szerepet játszanak a nanotechnológiai folyamatok tervezésében és megvalósításában.

Irodalom

- Hodaj, F., Gusak, A., *Acta Materialia* 52 (2004) 4305.
- Pasichnyy, M., Schmitz, G., Gusak, A., Voyk, V., *Phys. Rev. B* 72 (2005)
- Gusak, A., Zaporozhets, T., Lyashenko, Y., Kornienko, S., Pasichnyy, O., Shirinyan, A.: *Diffusion-controlled Solid State Reactions: in Alloys, Thin-Films, and Nanosystems*. John Wiley & Sons (2010) ISBN 9783527408849.
- Erdélyi, Z., Cserhádi, C., Csik, A., Daróczy, L., Langer, G., Balogh, Z., et al., *X-ray Spectrometry* 38 (2009) 338.
- L. G. Parratt, *Phys. Rev.* 95 (1954) 359.
- D. L. Windt, *Comput. Phys.* 12 (1998) 360.
- S. K. Ghose, B. N. Dev, *Phys. Rev. B* 63 (2001) 245409.
- D. L. Windt, *Comput. Phys.* 12 (1998) 360.
- A. Gupta, C. Meneghini, A. Saraiya, G. Principi, D. K. Avasthi, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 212 (2003) 458.
- Oukassi, S., Moulet, J., Lay, S., Hodaj, F., *Microelectron. Eng.* 86 (2009) 397.
- Mattoso, N., *J. Matter. Sci.* 30 (1995) 3242.
- Clevenger, L., Thomson, C., *J. Appl. Phys.* 67 (1990) 1325.
- Villars, P.: *Pearson's handbook: crystallographic data for intermetallic phases*. Materials Park, OH: ASM International; (1997)
- Ravel, B., Newville, M., *J. Synchrotron. Rad.* 12 (2005) 537.
- J. J. Rehr, R. C. Albers, *Rev. Mod. Phys.* 72 (2000) 621.
- Ibrahim, M., Balogh, Z., Stender, P., Schlesiger, R., Greiwe, G. H., Schmitz, G., et al., *Acta Materialia* 76(0) (2014) 306–313.
- Erdélyi, Z., Schmitz, G., *Acta Materialia* 60(4) (2012) 1807–1817.



**Az Eötvös Társulat
főnt van a facebook-on!**

