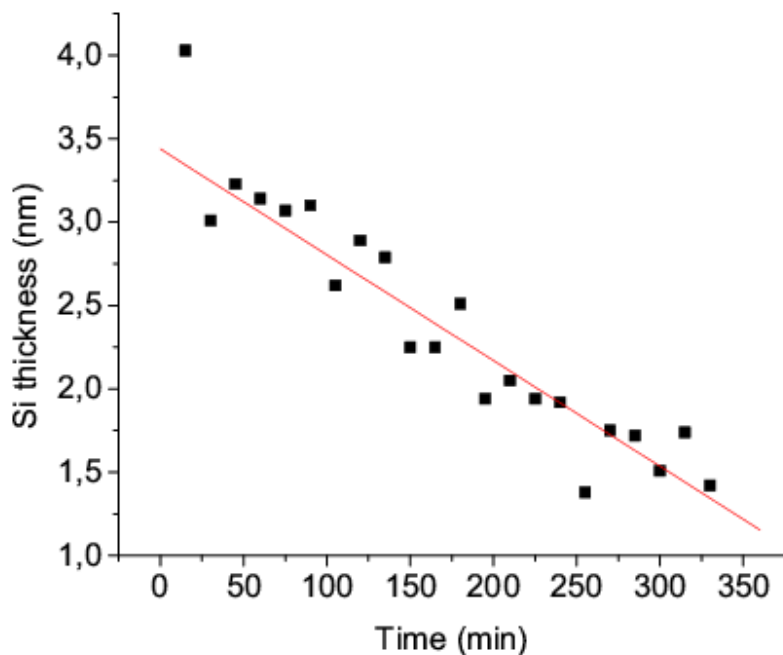


A munkatervben szereplő három fő problémakör (idézet a munkatervből: “A pályázatban nanoszerkezetekben előforduló csökkenő méreteknek a szilárdtest diffúziós folyamatokra gyakorolt hatásait fogjuk vizsgálni. Ehhez a diffúziós jelenségek három alaptípusát fogjuk vizsgálni: • Határfelületeken átfolyó diffúziós áramok fémes illetve félvezető bi- és multirétegekben. • Diffúzió megfelelő hordozókra leválasztott gömbszerű nanorészecskékben valamint nanoszigetekben • Diffúzió különféle hordozókon lévő nanoszigetek között.) vizsgálatában - bizonyos hangsúlyeltolódásokkal - minden részterületen kaptunk eredményeket. Az első problémakör vizsgálatát elsősorban amorf és kristályos SiGe két és többrétegű rendszerekben végeztük kísérletileg, az eredetileg tervezettnél nagyobb intenzitással. A másik két területen a kísérleti munka – elsősorban az Ulmi Egyetem történt személyi változás (Dr. Hans-Gerd Boyen egyetemi docens, aki korábbi években az együttműködés kulcsfigurája volt és a tervekben is így szerepelt, váratlanul egyetemi tanári kinevezést kapott a Hasselt-i Egyetemre, Belgiumba) miatt csak némi késéssel és bizonyos hangsúly eltolódásokkal indult el. Ennek ellenére, mint látni fogjuk, ígéretes eredmények itt is vannak, de természetesen a már megjelent publikációk, illetve beküldött cikkek elsősorban az első témakörhöz kapcsolódnak. A második két témakörhöz kapcsolódóan ugyanakkor korábbi tapasztalatainkra támaszkodva kiterjedtebb szimulációkat végeztünk Debrecenben. Megjegyzem továbbá, hogy a Mo/V multirétegekben illetve Ni/Si, Ni/NiSi/Si típusú rendszerekben tervezett vizsgálatokat elvégeztük (Ni helyett Co-t használva), de minthogy ezekben végül, a fenti okok miatt is, az ulmi kollégák nem vettek részt az ezekről szóló közleményekben a kiegészítő OTKA számát nem, azaz csak az alap OTKA pályázat számát, tüntettük fel.

Az eredmények részletesebb bemutatása:

Megmutattuk, hogy Si-nak amorf Ge-ba történő beoldódásakor a kezdetben éles határfelület éles marad és eltolódása nem követi a parabolikus törvényt. Az eltolódást az $x \sim t^k$ hatványfüggvénnyel illetve azt kaptuk, hogy a k kinetikai exponens értéke kezdetben 0.7 ± 0.1 és hosszabb idő után átmegy a parabolikusnak megfelelő 0.5 ± 0.1 értékbe. Ez összhangban van korábbi szimulációs eredményünkkel és ez az első kísérleti indikáció az átmenet megfigyelésére. (közlemény megjelent az App. Phys. Letters-ben).

Hasonló elrendezésben vizsgáltuk Si beoldódását egykristály Ge-ba és azt kaptuk, hogy a kinetikai exponensek értéke nagyobb, mint amorf esetben (0.9 ± 0.1) jelezve, hogy itt erősebb a diffúziós aszimmetria (erősebb a diffúziós együttható összetétel-függése). (A közleményt a napokban küldjük be a J. of Appl. Phys.-be).

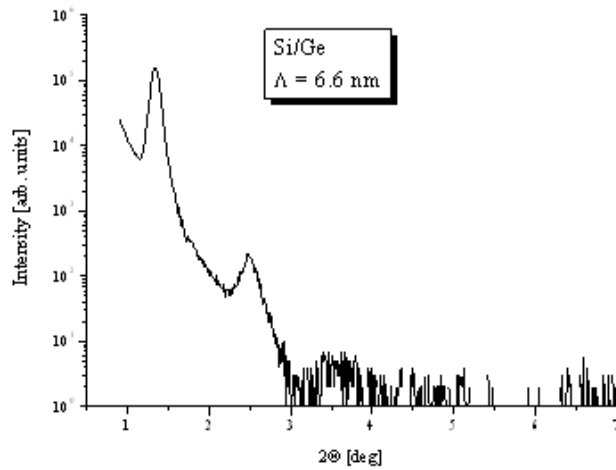


Si belodódása kristályos Ge-ba 755 K-en. Látható, hogy (a 0.9-es meredekségnek megfelelően) közel lineáris a Si rétegvastagság csökkenése

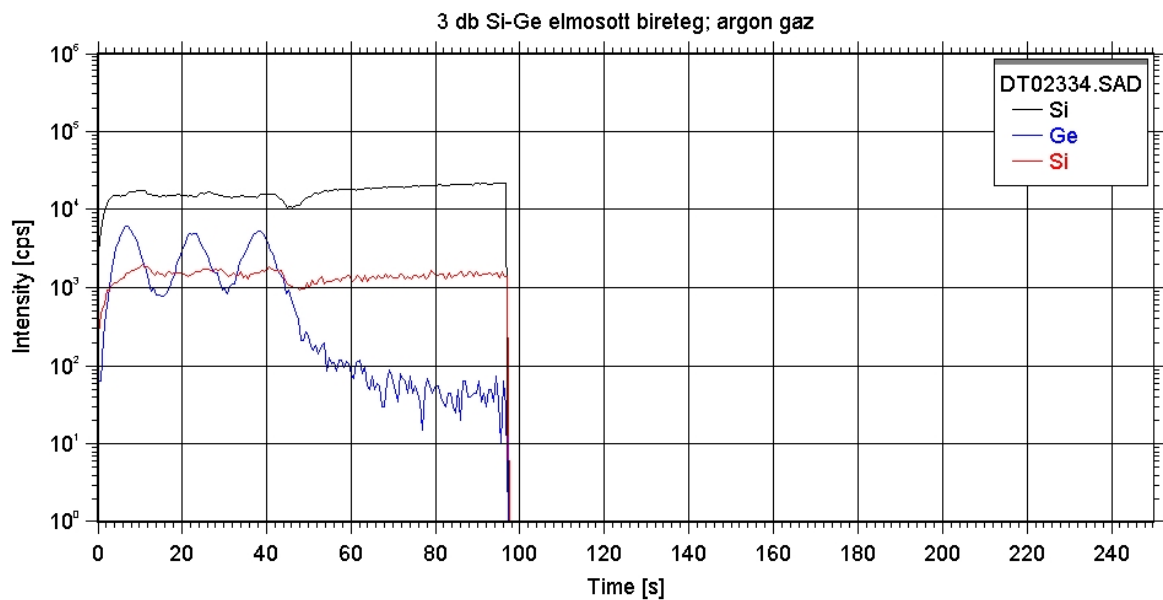
Előállítottunk elmosott és éles határ-felületekkel rendelkező amorf Si-Ge multirétegeket (a kontrolláltan kémiaiilag elmosott határfelületet a világon először kristályos, Mo-V, rendszerben mi állítottunk elő: ez volt az egyik alapja egy korábbi Science cikkünknek) és most ezt amorf Si-Ge rendszerben is megoldottuk. A multirétegeket szekunder neutrális rész tömegspektrométerrel (SNMS) és alacsonyszögű röntgen-diffrakcióval vizsgáltuk. A kísérletekhez ötféle rétegszerkezetet gyártottunk. A röntgen-diffrakciós vizsgálatokhoz 25 biréteget tartalmazó, ~6 nm biréteg-vastagsággal, éles és elmosott határfelülettel rendelkező multiréteget készítettünk. SNMS mérésekhez 3 biréteges, ~20 nm biréteg-vastagságú, éles és elmosott határfelületű multiréteget porlasztottunk. Ugyancsak az SNMS vizsgálatokhoz gyártottunk még háromrétegű Si-Ge-Si, körülbelül 10 nm egyedi rétegvastagsággal rendelkező rendszereket is. A kémiaiilag elmosott határfelületekkel rendelkező multirétegeket egy kúp alakú, az oldalán szabályozható nyílással rendelkező árnyékoló segítségével készítettük. Az árnyékolót a porlasztó rendszer alaplapjához képest 60°-os szögbe beállított magnetronok közé helyeztük és forgását léptető motorral szabályoztuk. Ez az elrendezés lehetővé tette, hogy párhuzamosan, rövid ideig mindkét porlasztó forrásból atomok jussanak a Si egykristály hordozóra. A kúpos árnyékoló oldalán levő nyílást szabályozva ~6 nm és ~20 nm periódusvastagsággal rendelkező kémiaiilag elmosott (elmosottság mértéke ~1.5 nm és ~10 nm) amorf Si-Ge multirétegeket porlasztottunk.

Az 1-2 nm-es mélységi feloldással bíró SNMS sajnos, a Si sajátos porlasztási effektusai miatt, nem tudta megfelelően szétválasztani a 10 nm egyedi rétegvastagsággal rendelkező rendszert. Az SNMS kísérletekben különböző porlasztógázokat használtunk, de a Si szerkezetet tekintve egyik sem adott kielégítő eredményt. Ez persze csak azt

jelenti, hogy a mi kísérleti technikánkkal nem tudjuk pl. a hőkezelés hatására (a diffúziós aszimmetria miatt) bekövetkező határfelület élesedést követni. A mintákat szinkrotronos mérésekhez fogjuk vinni Berlinbe illetve, Japánban nagy gravitációs térben fogjuk vizsgálni a (diffúziós aszimmetriához viszonyítva különböző előjellel alkalmazott) gravitációs tér hatását.



Si-Ge multiréteg alacsony szögű röntgen-diffrakciós spektruma



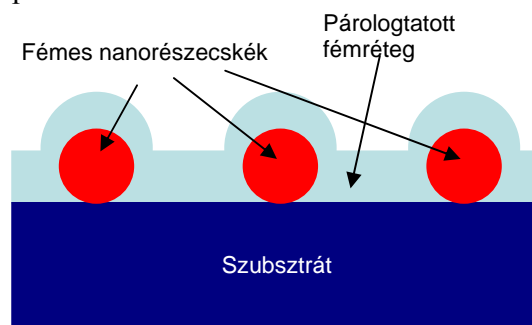
File: DT02334.SAD
 Date: 2/20/2009 3:48:38 PM

Si-Ge multiréteg szekunder neutrális rész tömegspektrometriás felvétele argon porlasztó gázzal

Vizsgáltuk továbbá, terven felül, hidrogénezett amorf Si-Ge multirétegekben a diffúziós hőkezelések során fellépő szerkezeti változásokat, és azt is megállapítottuk, hogy a diffúziós keveredés lassúbb a hidrogén tartalmú mintákban. (Közlemény megjelent a J. of Mat. Sci.: Mat. in Electronics-ben illetve a 2 cikk a Vacuum-ban illetve a Superlattices and Microstructures-ben, ez utóbbiak nem tartalmazzák a kiegészítő OTKA számát, csak az alap pályázatát).

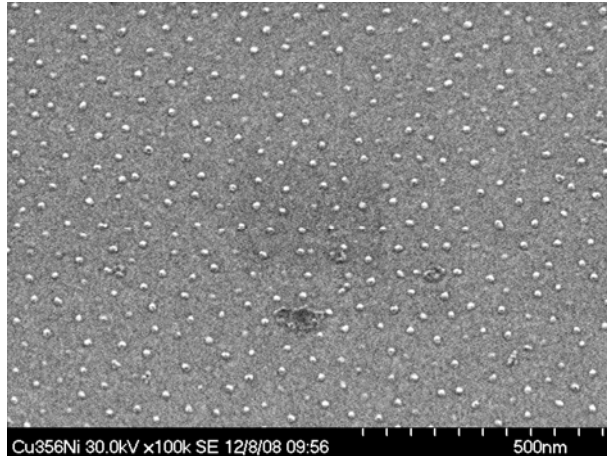
Szigetes Ni illetve Cu részecskéket hoztunk létre kerámia hordozókon és vizsgáltuk gömbi, vagy félgömbi geometriában az oxidáció hatását (létre jönnek-e Kirkendall-eredetű üregek, vagy sem). Az első kísérleteket most ismételjük meg és terjesztjük ki hasonló geometriában szilárdtest reakciók vizsgálatára.

Ebben a kísérletsorozatban az 1-es ábrán látható elrendezésben, az A fémből álló 5-10nm átmérőjű nanorészecske és a rápárolgatott 5-10nm-es B fémből álló vékonyfilm diffúziós viselkedésének tanulmányozását tűztük ki. A és B rendre Cu és Ni. Mivel a kísérletek több komplex lépést tartalmaznak, ezért az első feladat a mintakészítés és a kísérleti körülmények optimalizálása volt.



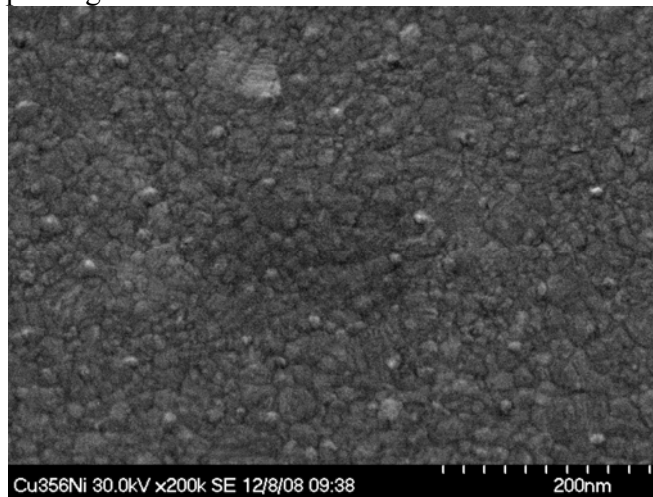
1. ábra: a kísérlet elvi vázlatja

Az 5-10nm átmérőjű fémes Cu és Ni gömböket az Ulmi Egyetemen alkalmazott micella-technikával készítettük. A felmerítésnél Si (100) illetve Al_2O_3 szubsztrátot alkalmaztunk, a Si szubsztrát legfőbb előnye, hogy félvezetőként alkalmas hordozó nagyfelbontású (<1nm) pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatokhoz (SEM). Míg az Al_2O_3 hordozó előnye, hogy a későbbi lépések során alkalmazott plazma kezeléssel szemben teljesen inertnek tekinthető. A következő lépcsőben a micellákat és a bennük oldott fémsókat magas hőmérsékletű (~500°C) oxigénplazmás maratásnak tettük ki. Ennek során a micellát alkotó szerves anyagok elbomlanak, és a hordozón visszamarad egy fém-oxid gömb (2-es ábra).



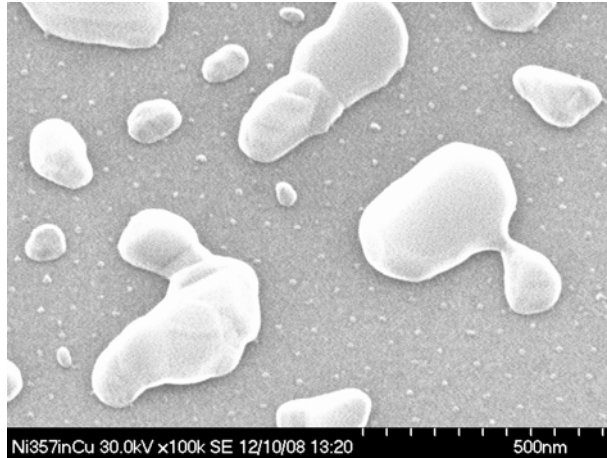
2. ábra: réz-oxid gömbök Si hordozón

A fémes nanorészecskét végül az oxid hidrogén-plazmával végzett redukciójával kaphatjuk meg. A nanorészecske oxidáltságát a rendszerhez csatlakoztatott XPS berendezéssel vizsgáltuk meg. A részecskék ellenőrzése után megkezdjük a Ni vékonyfilm párologtatását, majd az így elkészített rendszeren ismét XPS ellenőrzést végeztünk. Az in situ hőkezeléseket 400 °C-on végeztük el. A Ni-lel fedett Cu gömbök esetén ezen a hőmérsékleten komolyabb változásokat nem tapasztaltunk (3. ábra). A szisztematikus vizsgálatokat sajnos ebben a rendszerben nem tudtuk végezni, ugyanis a Ni-t csak wolfram-csónakból tudtuk párologtatni, ami meglehetősen nehézkes. Egy új elektronsugaras párologtató jelenleg beszerzés alatt van, ez a rendszer már jóval könnyebbé teszi a párologtatást.



3. ábra: a Ni-lel fedett Cu gömbök a hőkezelés után

A kifordított rendszer (Ni gömbök és Cu film) esetén a Si hordozón nagymértékű Ni szigetképződést tapasztaltunk. Jól megfigyelhető az is (4. ábra), hogy a Ni nanorészecskék megőrizték eredeti pozíciójukat. Ez vélhetően a Si hordozóban az oxigén plazmakezelés során bekövetkező változások következménye. Annak vizsgálata, hogy kis szigetek valóban a kívánt Cu-Ni, mag-héj szerkezetűek-e most van folyamatban.



4. ábra: Cu szigetek és a helyükön maradt Ni nanorészecskék

Szimulációkat végeztünk arra vonatkozóan, hogy a klasszikus nukleációs és növekedési folyamatban, a kritikus nukleációs sugár hogyan függ a diffúziós aszimmetria paramétertől és azt kaptuk, hogy értéke akár egy nagyságrenddel is lecsökken (a szimmetrikus diffúziós esethez viszonyítva), ha a diffúzió jóval gyorsabb a mátrixban mint a kiválásban. Ez az eredmény alapvető a klasszikus nukleációs és növekedési folyamatok jobb megértéséhez. A kapott kinetikai effektus lényegében annak a következménye, hogy a kiválás atomjai mintegy „odaragadnak” a nukleuszhoz. A gyakorlati esetek jelentős részében ez nem elhanyagolható, gondoljunk csak a kristályosodásra, vagy számos precipitációs folyamatra. (A cikk lényegében elkészült, néhány héten belül beküldjük valamely vezető folyóirathoz az alábbi két ábra illusztráció ebből)

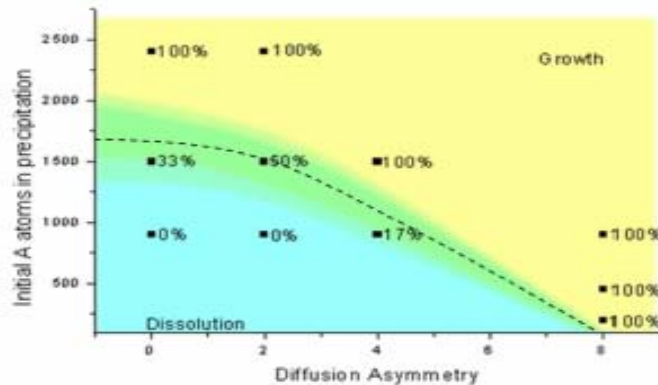


FIG. 1: Nuclei size – diffusion asymmetry map. The black squares show the points from which the simulations started and the numbers give the chance of growth. The yellow (light gray in black and white) area corresponds to super-critical while the blue (medium gray in black and white) to sub-critical nuclei, respectively. The intermediate green (dark gray in black and white) area represents the critical size range. The dashed curve corresponds to the estimated 50% probability of growth i.e. to the critical nucleus size.

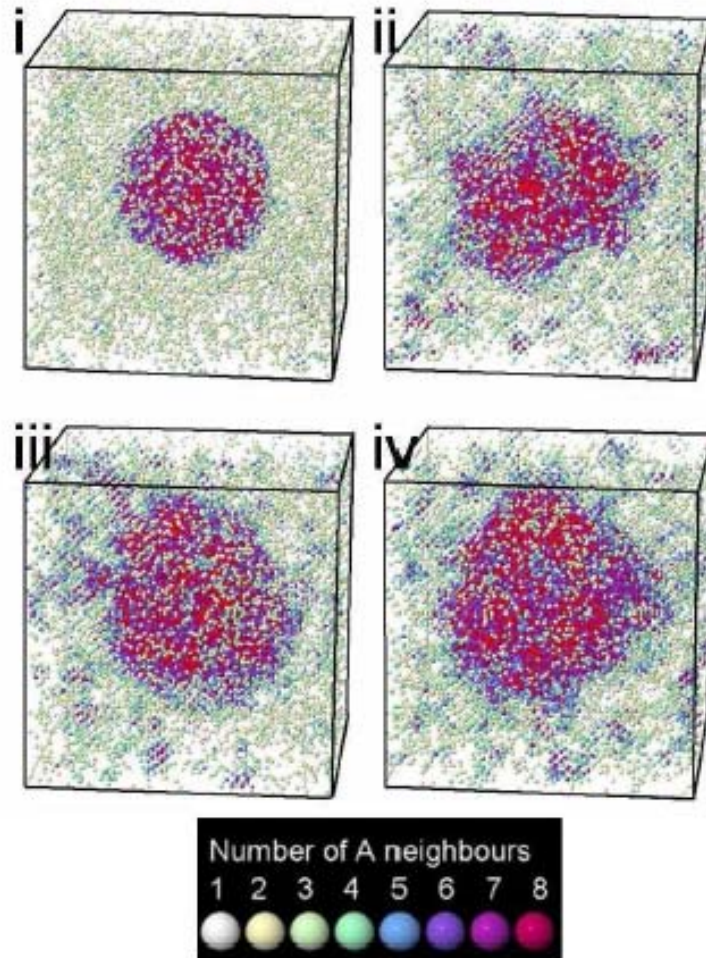


FIG. 2: Sequences of 3D images of a nucleus during a growth process with $m' = 0$. Only the A atoms are plotted. The colour scale illustrates how many A neighbours (numbers of preferred bonds) has an A atom. i) initial nucleus; ii) three phenomena can be observed: small, unstable A -rich clusters are formed in the matrix, in agreement with the classical nucleation and growth theories, the large, supercritical nucleus grows apparently, however its shape is deformed; iii) and iv) further growth of the nucleus can be observed.