

08

Структура, проводящие и отражающие свойства аморфных гранулированных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$

© И.В. Антонец,¹ Л.Н. Котов,^{1,¶} Е.А. Голубев,² Ю.Е. Калинин,³ А.В. Ситников³

¹ Сыктывкарский государственный университет им. Питирима Сорокина, 167001 Сыктывкар, Россия

² Институт геологии Коми научного центра УрО РАН, 167982 Сыктывкар, Россия

³ Воронежский государственный технический университет, 394026 Воронеж, Россия

¶ e-mail: kotovln@mail.ru

(Поступило в Редакцию 11 мая 2016 г.)

Приведены результаты исследования микро- и наноструктуры аморфных гранулированных композитных пленок состава $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$, $0.27 < x < 0.61$, толщиной 328–772 nm, нанесенных в атмосфере азота на лавсановую подложку. Результаты получены с использованием атомно-силовой, магнитно-силовой и сканирующей электронной микроскопии. Показано, что средние размеры зерен и содержание металлической фазы определяют их проводящие и отражающие свойства в диапазоне СВЧ.

DOI: 10.21883/JTF.2017.02.44131.1885

Введение

С развитием нанотехнологий исследованиям рельефа поверхности многослойных и композитных структур, тонких металлических пленок и сплавов, выращенных различными методами и нанесенных на подложку из различных материалов, выявлению новых особенностей структуры, а также их влиянию на различные свойства уделяется значительное внимание [1–15]. Особое место в этих исследованиях занимают аморфные пленки [16–20], отличающиеся уникальными свойствами по сравнению с их кристаллическими аналогами.

Как показано в работах [11–15, 21–23] на примере тонких рентгеноаморфных металлических пленок, размеры зерен, кластеров и других поверхностных неоднородностей коррелируют с такими параметрами, как проводимость и коэффициент отражения СВЧ волн. Так, например, для пленок, имеющих кластерное строение, в работах [12, 21, 23] выявлена зависимость удельной проводимости от толщины пленки и от размеров кластеров. В работах [13, 14, 21–23] показано, что наноструктура металлических и металл-диэлектрических пленок определяет не только их проводящие, но и отражающие свойства.

Влияние микро- и наноструктур на проводящие и отражающие свойства активно исследуется и для аморфных гранулированных композитов [5, 10, 11, 19, 20, 24–26].

Выбор объекта исследования обусловлен уникальной особенностью его проводящих свойств. В работах [24–26] выявлено, что динамическая проводимость в диапазоне СВЧ, определяемая по коэффициенту отражения электромагнитных волн, пленок состава

$(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Zr}_2\text{O}_3)_{1-x}$ толщиной 70–550 nm, нанесенных на лавсановую подложку, превышает статическую, измеренную на постоянном токе, на 2–4 порядка, еще до порога перколяции металлической фазы. А, например, для пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ толщиной 2.2–5.8 μm , нанесенных на подложку из ситалла, это превышение достигает всего нескольких раз [27].

В связи с этим особый интерес вызывает исследование рельефа поверхности аморфных гранулированных композитных пленок и выявление возможной взаимосвязи между микро- и наноструктурой, проводящими и отражающими свойствами. Исследована структура пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ [10] и $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Zr}_2\text{O}_3)_{1-x}$ [11] с использованием атомно-силовой, магнитно-силовой и сканирующей электронной микроскопии. Результаты показывают, что такие параметры структуры, как средние размеры зерен и содержание металлической фазы, определяют их проводящие свойства, а зависимости проводимости и среднего размера зерен от содержания металлической фазы коррелируют между собой.

Настоящая работа является продолжением цикла работ по исследованиям аморфных наногранулированных композитных пленок. Цель ее заключается в исследованиях методами атомно-силовой, магнитно-силовой и сканирующей электронной микроскопии рельефа, микро- и наноструктуры, свойств поверхности серии композитных пленок состава $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$, нанесенных на подложку из лавсана, и в выявлении взаимосвязи структуры с проводящими и отражающими свойствами в области СВЧ.

Толщина пленок, содержание элементов, средний размер зерен, проводимость и коэффициент отражения аморфных композитных пленок

№	Толщина d , nm	Содержание Fe+Co+Zr, Me, at.%	Средний размер зерен Φ , nm	Проводимость σ , $\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$	Коэффициент отражения R на $f = 8 \text{ GHz}$
1	336	26.84	—*	$2.68 \cdot 10^{-4}$	—
2	410	31.68	—	$1.28 \cdot 10^{-2}$	$4.49 \cdot 10^{-4}$
3	328	34.00	10 ± 2	—	—
4	562	36.71	—	$2.67 \cdot 10^{-1}$	$1.45 \cdot 10^{-4}$
5	665	40.50	—	$8.35 \cdot 10^{-1}$	$3.51 \cdot 10^{-4}$
6	451	40.59	—	—	$1.80 \cdot 10^{-2}$
7	673	45.43	16 ± 3	$8.49 \cdot 10^{-1}$	$5.28 \cdot 10^{-2}$
8	545	48.36	20 ± 3	$1.23 \cdot 10^1$	$2.33 \cdot 10^{-1}$
9	711	56.83	24 ± 3	$2.29 \cdot 10^3$	$5.89 \cdot 10^{-1}$
10	510	56.98	11 ± 1	$3.41 \cdot 10^2$	$5.66 \cdot 10^{-1}$
11	600	57.01	15 ± 1	$3.09 \cdot 10^3$	$6.47 \cdot 10^{-1}$
12	772	58.08	23 ± 3	$1.89 \cdot 10^3$	$6.76 \cdot 10^{-1}$
13	697	60.23	23 ± 3	$6.80 \cdot 10^3$	$7.49 \cdot 10^{-1}$
14	535	60.77	20 ± 3	$5.30 \cdot 10^4$	$7.37 \cdot 10^{-1}$

* — Значение не определялось.

1. Методика получения и характеристика исследуемых образцов

Композитные гранулированные пленки состава $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$ (где $x \sim 0.27-0.61$) получены в атмосфере азота при давлении 0.024 Па на лавсановой подложке толщиной 0.02 mm и размером $21 \times 28 \text{ cm}^2$. Пленки изготовлены в Воронежском государственном техническом университете методом ионно-лучевого напыления. Методика получения пленок подробно описана в работах [19,20]. Для осаждения аморфной ферромагнитной металлической фазы композитов использовалась сплавная мишень состава $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$. На ее поверхности были закреплены навески ZrO. Изменение числа пластин диэлектрика и расстояния между ними позволяло изменять соотношение объемов напыляемых магнитного и диэлектрических слоев, управляя, таким образом, соотношением долей металл—диэлектрик. При этом неравномерное расположение пластин оксида циркония на поверхности мишени давало возможность получить непрерывный спектр составов компонент мишени вдоль ее длины в одном технологическом цикле нанесения. Толщина напыляемого слоя определялась временем напыления, которое составляло 120 min. Время чистки поверхности лавсана ионным пучком — 30 min. Общее давление в камере до напыления и после очистки лавсана — $1.8 \cdot 10^{-2}$ Па. Давление азота N_2 в камере — $2.4 \cdot 10^{-3}$ Па.

После формирования на подложке непрерывно меняющейся по толщине композитной пленки подложка разрезалась. Это позволило получить 14 образцов композитных пленок толщиной 328–772 nm, параметры которых приведены в таблице. Толщина оценивалась

по изображениям энергий отраженных электронов от торца пленок с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ). Гранулированный (зернистый) характер металлических включений в композитных пленках определялся методом просвечивающей электронной микроскопии, аморфное строение — по высокой степени размытия кольцевых дифракционных гало на электронных микрофотографиях [19,20].

2. Техника и методика эксперимента

2.1. Определение толщины композитных пленок

Толщины пленок определялись с помощью СЭМ Tescan Vega LMN (Чехия) с энергодисперсионным детектором X-MAX (Oxford Instruments). Измерения проводились на вырезанных фрагментах пленок с длиной стороны 1 cm. Механизмы определения толщины по электронно-микроскопическим изображениям торца скола композитной пленки описаны в работах [10,11]. Участки выбирались равномерно по всей длине измеряемого фрагмента пленки, затем строилось размерное распределение толщин и рассчитывались модальная величина толщины пленки (соответствующая максимуму указанного распределения) и дисперсия.

2.2. Элементный анализ композитных пленок

Для количественного определения элементного состава поверхности пленок использовалась рентгеновская энергодисперсионная спектрометрия (система микроанализа AZTEC с детектором X-Max 50, кремний-дрейфовый детектор активной площадью 10 mm^2 , разрешение на линии $\text{Mn } K_\alpha$ — 127 eV), при которой образец

бомбардируется высокоэнергетическими электронами, в результате чего с его поверхности происходит эмиссия рентгеновского излучения. Анализ характеристического рентгеновского излучения позволяет определить, какие элементы входят в состав образца и в каких количественных соотношениях они состоят путем сравнения интенсивности рентгеновских линий, генерируемых в образце, с интенсивностями соответствующих линий в стандартном образце (эталоне) при идентичных аналитических условиях. Энергодисперсионная спектрометрия проводилась при токе эмиссии $100\ \mu\text{A}$, токе образца $100\ \text{pA}$ и ускоряющем потенциале $20\ \text{kV}$. Диаметр пучка при элементном анализе составлял около $100\ \text{nm}$. Время накопления сигнала $120\ \text{s}$. Обработка данных рентгеноспектрального анализа осуществлялась с помощью программного приложения AZTEC (Oxford Instruments).

2.3. Исследование топографии композитных пленок

Исследование топографии поверхности образцов проводилось с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) Интегра Prima (NT-MDT, Россия) в полуконтактном и контактном режимах. Для топографического сканирования применялись кантилеверы NC10 (NT-MDT) с радиусом закругления зонда около $10\ \text{nm}$. Съемки проводились в комнатных условиях. Для исключения влияния электростатических эффектов на получаемые изображения пленки в процессе съемки были заземлены.

2.4. Магнитно-силовая микроскопия композитных пленок

Для определения магнитных областей на поверхности пленок использовались кантилеверы MFM10 (NT-MDT), силиконовый зонд, покрытый магнитным сплавом CoCr , толщиной $40\ \text{nm}$. Радиус закругления зонда — около $30\ \text{nm}$. Принцип получения изображения структуры магнитных доменов пленок описан в [10]. Частота колебаний внешней силы, действующей на кантилевер и на зонд, составляла $47\text{--}90\ \text{kHz}$. Разность фаз между внешней силой и собственными колебаниями зонда изменялась в зависимости от силы магнитного взаимодействия зонда и области поверхности пленок. Зависимость разности фаз от координат поверхности преобразовывалась в изображение, называемое магнитным фазовым контрастом, отображающее размеры и форму магнитных металлических областей пленки. Радиус закругления кончика зонда определял разрешение, которое позволяло на магнитном фазовом контрасте отдельно видеть магнитные (металлические) области с размерами в $10\text{--}15\ \text{nm}$.

2.5. Исследование проводимости композитных пленок

Удельная проводимость определялась по обратной величине удельного электрического сопротивления, измеряемого на постоянном токе двузондовым методом с использованием потенциометрической методики замещения [12,13,22,24–26].

По известной толщине пленок с учетом геометрического фактора производился пересчет измеряемого сопротивления образца в удельную проводимость.

2.6. Исследование коэффициента отражения композитных пленок

Коэффициент отражения СВЧ сигнала от тонких пленок при нормальном падении волны измерялся в диапазоне частот $8\text{--}12\ \text{GHz}$. Исследуемая пленка помещалась в прямоугольный волновод сечением $10 \times 24\ \text{mm}$ перпендикулярно его продольной оси. Пленка перекрывала все сечение волновода. На другом конце волновода позади пленки находилась согласованная нагрузка. В качестве генератора качающей частоты использовался ГКЧ Р2-65, входящий в состав комплекса панорамного измерителя коэффициента стоячих волн (КСВН). Зависимость КСВН от частоты для данного образца отображалась на индикаторе КСВН и ослабления Я2Р-67. Методика измерения коэффициента отражения описана в [13].

3. Основные результаты экспериментов и их обсуждение

3.1. Топография аморфных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$

Общей характеристикой всех пленок являлась их неоднородность, проявляющаяся в присутствии на поверхности многочисленных уплощенных островков (капель) разнообразных форм с размерами от десятка до нескольких сотен нанометров (рис. 1). Капли располагались с высокой плотностью, средние расстояния между ними составляли $50\text{--}100\ \text{nm}$, на участке $1 \times 1\ \mu\text{m}$ находилось два-три десятка капель. На поверхности пленок зачастую отчетливо проступал волокнистый рельеф лавсановой подложки с диаметром волокон около $80\text{--}100\ \text{nm}$ (рис. 2). Кроме того, наблюдались наследуемые от подложки пересекающиеся борозды протяженностью от единиц до десятков микрометров. Вплоть до пленки № 4 на поверхности встречались разрывы сплошности пленочного покрытия, как правило, в виде округлых пор. Начиная с пленки № 5, наблюдалось уже сплошное покрытие поверхности подложки напыленным материалом. Пленка по структуре представляет собой плотно упакованные, практически сливающиеся гранулы (рис. 3), размеры которых незначительно варьируют с толщиной пленок. Обособленные гранулы отчетливо

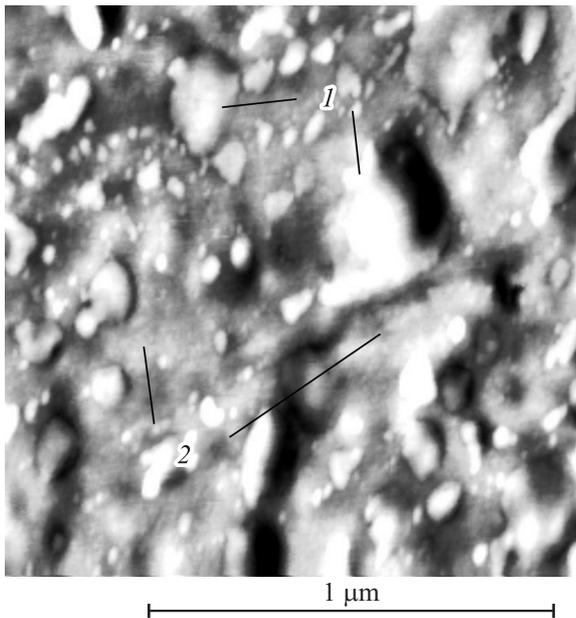


Рис. 1. Типичное АСМ изображение поверхности пленок (пленка № 7): 1 — капли на поверхности пленки, 2 — гранулированная пленка.

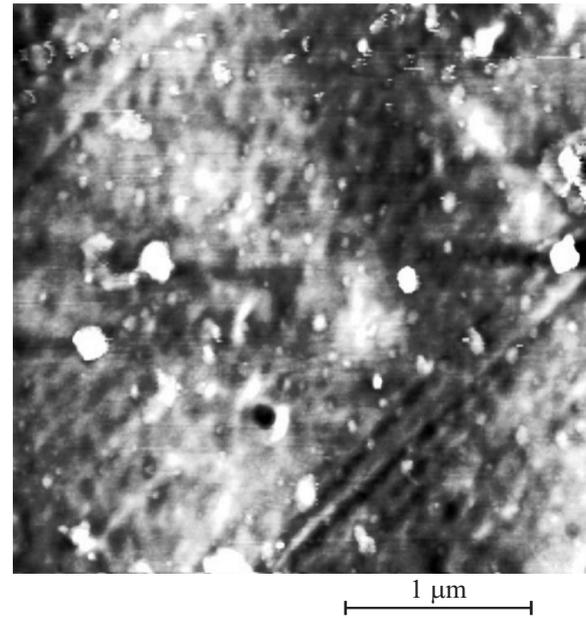


Рис. 2. Отпечатки волокнистых форм строения лавсановой подложки на поверхности пленки № 4.

просматривались на изображениях только начиная с пленки № 7, до этого гранулярное строение проявлялось лишь как наноразмерная шероховатость поверхности на участках сплошного покрытия пленкой поверхности подложки (рис. 3, *a*). На АСМ-изображениях гранулы наиболее четко проявляются в углублениях, которые, вероятно, связаны с межволоконной пористостью лавсановой подложки.

В пленках № 10, 11, 13, 14 методом магнитно-силовой микроскопии была выявлена магнитная доменная структура. Типичные структуры магнитных доменов в этих пленках показаны на рис. 4. Пленки № 11, 13, 14 имеют однородно упорядоченную, протяженную полосовую доменную структуру (рис. 4, *a–c*). Известно, что присутствие такой доменной структуры является показателем наличия в пленке перпендикулярной магнитной анизотропии [28, 29]. В пленках с наивысшим содержанием металлов № 13 и 14 (рис. 4, *a, b*) период доменной структуры составлял около 150 нм. В пленке, с чуть меньшим содержанием металлов, № 11 (рис. 4, *c*) этот период увеличивался в среднем до 200 нм. При этом доменная структура сильно зависит от структуры самой пленки, что наглядно проявляется на МСМ-изображении пленки № 11. На тех участках, где наблюдается существенное влияние на гранулярную структуру пленки элементов рельефа подложки, прежде всего в виде борозд и валов, полосовая доменная структура переходит в слабоупорядоченную (упорядоченность здесь связана со статистической ориентированностью доменов в одном направлении) лабиринтную структуру с увеличенным расстоянием между доменами. На участках

упорядоченного строения наблюдались разрывы полос, топографически связанные с крупными каплями-бугорками на поверхности пленок. Вероятно, концентрации металла в этих бугорках существенно меньше, чем в остальном объеме пленки. Также нарушения полосовой доменной структуры проявлялись в виде раздвоения полос. Пленка № 10 (рис. 4, *d*) имеет неупорядоченную доменную структуру, характерную для пленок, намагниченность которых лежит в плоскости пленки — в виде разноразмерной сетки с широким разбросом расстояний между доменами (от 200 до 500 нм). Как и в пленках с полосовой доменной структурой, увеличенные расстояния между доменами связаны в основном с элементами рельефа пленки в виде капель-бугорков.

3.2. Толщина, содержание металлической фазы и средний размер зерен аморфных композитных пленок

Результаты определения толщин, содержания металлической фазы и среднего размера зерен для аморфных композитных пленок приведены в таблице. На рис. 5, 6 показаны зависимости среднего размера зерен Φ от толщины d (рис. 5) и от содержания металлической фазы Me (рис. 6).

Как было показано выше, до пленки № 7 отчетливого гранулярного строения не просматривалось, зерна проявлялись лишь на уровне шероховатости, и измерить среднестатистические размеры не удалось. Поэтому на рис. 5, 6 представлены экспериментальные точки лишь 9 пленок (с № 7 по № 14 и пленки № 3).

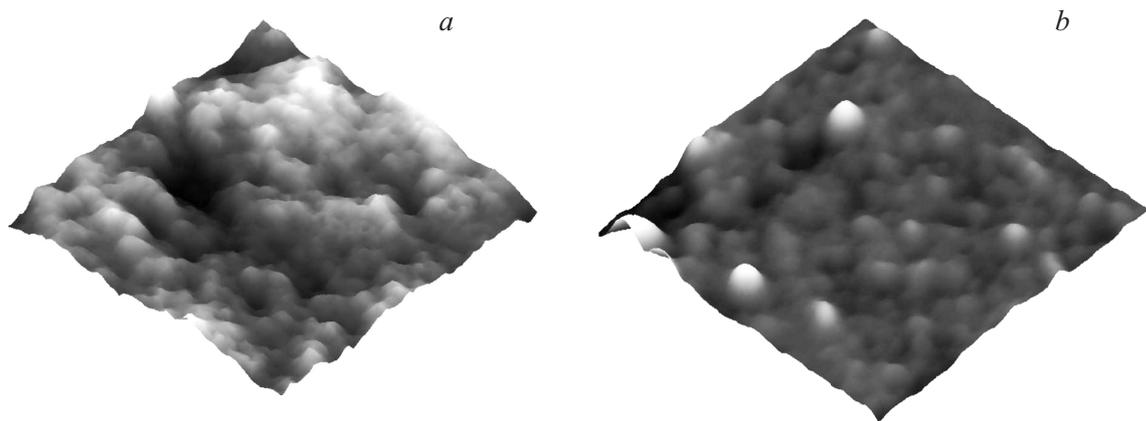


Рис. 3. Гранулированное строение пленок: *a* — пленка № 3, *b* — пленка № 8. Размер скана — 450×450 nm.

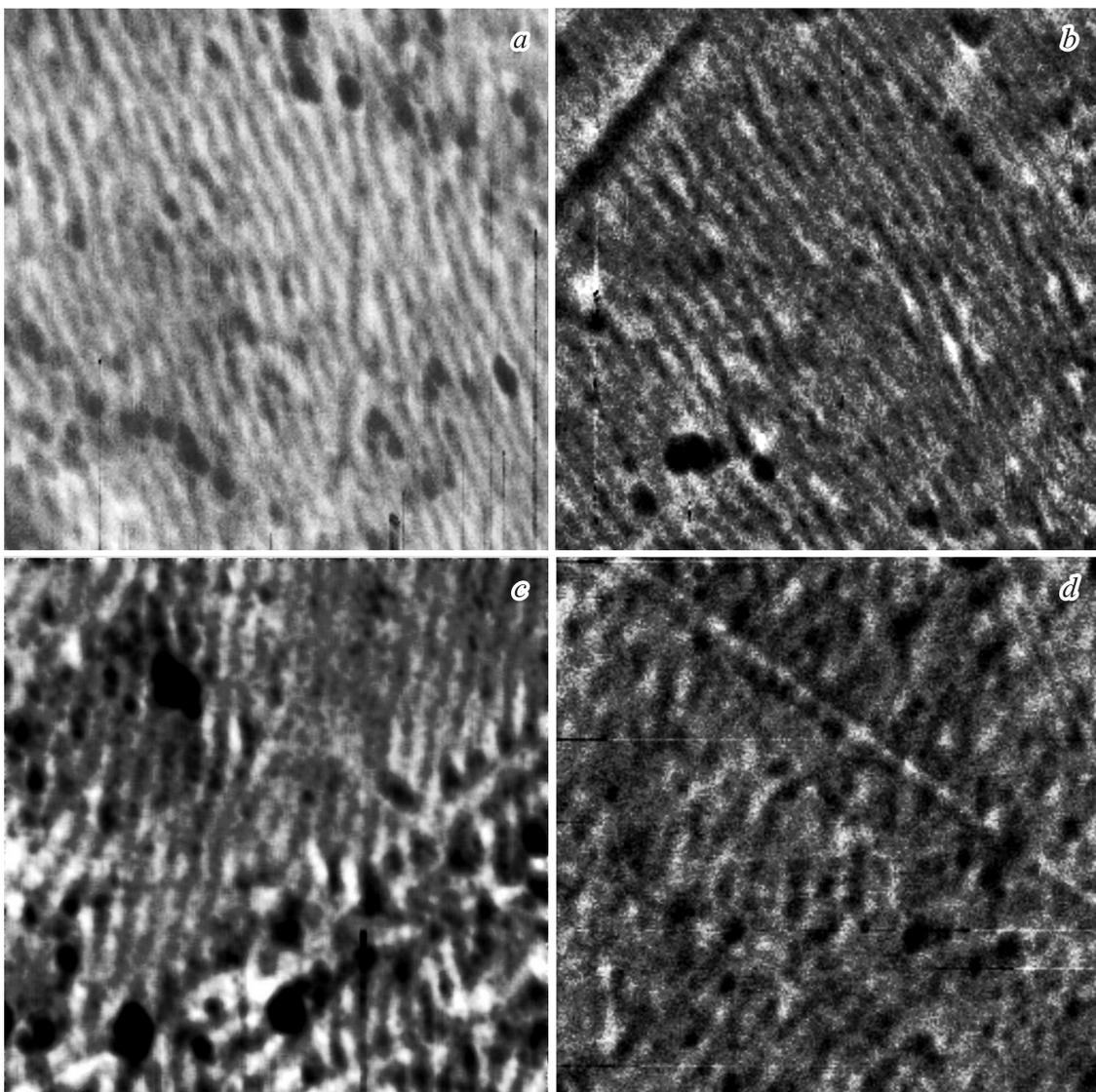


Рис. 4. MFM изображения структуры магнитных доменов в пленках: *a* — пленка № 13, *b* — пленка № 14, *c* — пленка № 11, *d* — пленка № 10. Размер скана — 3×3 μm .

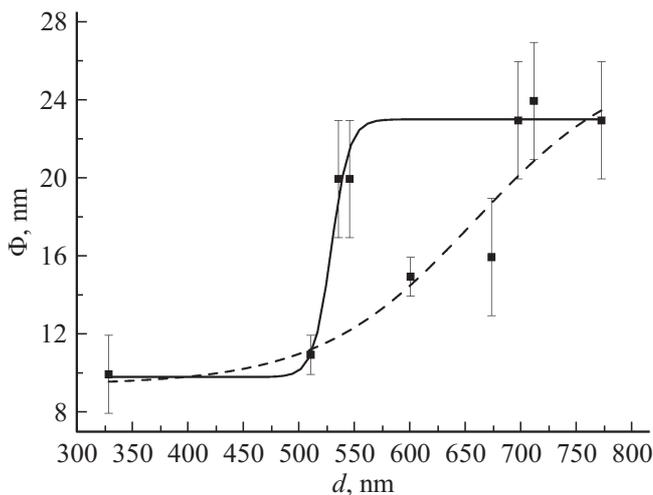


Рис. 5. Зависимость средних размеров зерен Φ от толщины d в аморфных композитных пленках. Экспериментальные точки аппроксимированы функцией (1) с параметрами: сплошная кривая — $A_1 = 9.78$ nm, $A_2 = 23.11$ nm, $x_0 = 528.43$ nm, $dx = 8.29$ nm, штриховая — $A_1 = 9.82$ nm, $A_2 = 24.08$ nm, $x_0 = 638.29$ nm, $dx = 53.57$ nm.

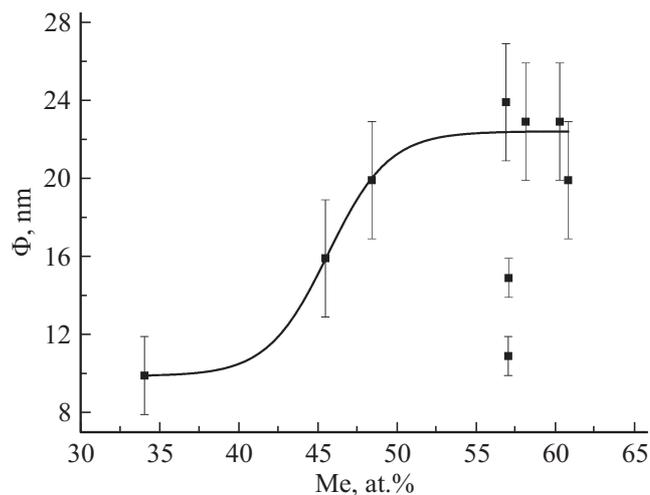


Рис. 6. Зависимость средних размеров зерен Φ от содержания металлической фазы Me в аморфных композитных пленках. Экспериментальные точки аппроксимированы функцией (1) с параметрами $A_1 = 9.97$ nm, $A_2 = 22.50$ nm, $x_0 = 45.60$ at.%, $dx = 1.91$ at.%.

Как видно из рис. 5, определить однозначную зависимость $\Phi(d)$ весьма затруднительно. Наиболее вероятное поведение среднестатистического размера зерен с толщиной (сплошная кривая на рис. 5) описывается функцией [10,11]

$$y(x) = \frac{A_1 - A_2}{1 - \exp\left(\frac{x-x_0}{dx}\right)} + A_2, \quad (1)$$

где $y(x) = \Phi(d)$, $A_1 = 9.78$ nm, $A_2 = 23.11$ nm, $x_0 = 528.43$ nm, $dx = 8.29$ nm.

В пользу данного предположения говорит тот факт, что именно этой функцией для аморфных наногранулированных композитов $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Zr}_2\text{O}_3)_{1-x}$ описывалось поведение среднего размера зерен с толщиной $\Phi(d)$ и содержанием металлической фазы $\Phi(\text{Me})$ для $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ [10,11], а также для тонких пленок различных металлов и металл-диэлектрических пленок изменение проводимости с толщиной $\sigma(d)$ [13,21,23].

Из заданной кривой аппроксимации выпадают две экспериментальные точки для пленок № 11 ($d = 600$ nm) и № 7 ($d = 673$ nm). Используя эти точки, можно построить другую вероятную кривую по формуле (1), описывающую поведение $\Phi(d)$ (штрих на рис. 5). Параметры кривой: $y(x) = \Phi(d)$, $A_1 = 9.82$ nm, $A_2 = 24.08$ nm, $x_0 = 638.29$ nm, $dx = 53.57$ nm. В этом случае также имеются две точки выброса: для пленки № 14 ($d = 545$ nm) и № 8 ($d = 535$ nm). При этом отклонение точек от аппроксимационной кривой значительно возрастает.

В работе [10] высказано предположение, что основным параметром, в зависимости от которого следует исследовать проводящие, отражающие и другие свойства аморфных композитных пленок, является не толщина, а содержание металлической фазы в случае, если Me отличается до 2.5 раза. В нашем случае толщина пленок и содержание металлической фазы изменяются практически одинаково (в 2.35 и 2.26 раза соответственно), поэтому исследование свойств пленок от Me весьма оправдано.

На рис. 6 представлена зависимость размеров зерен Φ от содержания металлической фазы для аморфных композитных пленок. Экспериментальные точки аппроксимированы функцией (1) с параметрами $y(x) = \Phi(\text{Me})$, $A_1 = 9.97$ nm, $A_2 = 22.50$ nm, $x_0 = 45.60$ at.%, $dx = 1.91$ at.%. На рис. 6 также заметны две экспериментальные точки, не укладывающиеся в общий вид зависимости: для пленок № 10 (Me = 56.98 at.%) и № 11 (Me = 57.01 at.%), причем одна из этих точек (пленка № 11) совпадает с точкой выброса на рис. 5 (сплошная кривая). Это подтверждает предположение о том, что наиболее вероятная зависимость $\Phi(d)$ описывается сплошной кривой на рис. 5.

Из рис. 5, 6 следует, что средние размеры зерен имеют ярко выраженную зависимость как от толщины, так и от содержания металлической фазы, начиная с $d = 510$ nm и Me $\sim 42 \pm 2$ at.%, и увеличиваются с ростом d и Me. При этом размер зерен изменяется в 2.1 раза с 11 до 23 nm. В работе [10] зависимость Φ от содержания металлической фазы была обнаружена при аналогичных Me ~ 44 at.% для пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$, толщина которых в 6–8 раз превосходила исследуемые. Таким образом, как для тонких, так и для более толстых пленок существенный рост среднего размера зерен наблюдается при содержании металлической фазы около 44 at.%.

3.3. Проводимость и коэффициент отражения аморфных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$

Результаты определения удельной проводимости и коэффициента отражения на частоте 8 GHz для композитных пленок представлены в таблице. Выявлено, что удельная проводимость исследуемых пленок изменялась на восемь порядков от 10^{-4} до $10^4 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$, причем ее увеличение сопровождалось в основном как увеличением содержания металлической фазы от 30 до 60%, так и коэффициента отражения от $4.5 \cdot 10^{-4}$ до $7.4 \cdot 10^{-1}$.

На рис. 7, 8 показаны зависимости проводимости σ (рис. 7) и коэффициента отражения на частоте 8 GHz (рис. 8) от содержания металлической фазы Me для аморфных композитных пленок.

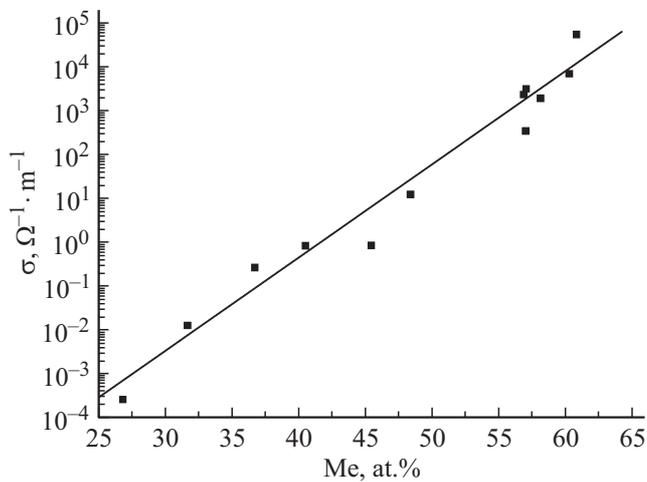


Рис. 7. Зависимость проводимости σ от содержания металлической фазы Me. Экспериментальные точки аппроксимированы функцией (2) с параметрами $A = -9.00$, $B = 0.21$.

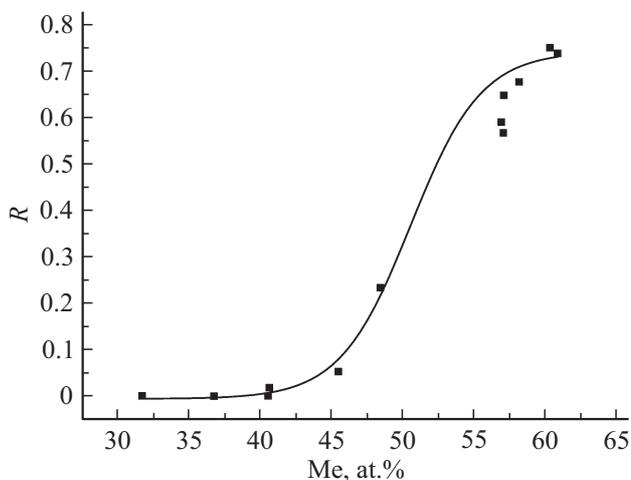


Рис. 8. Зависимость коэффициента отражения R на частоте 8 GHz от содержания металлической фазы Me. Экспериментальные точки аппроксимированы функцией (1) с параметрами $A_1 = 0$, $A_2 = 0.74$, $x_0 = 50.49 \text{ at.}\%$, $dx = 2.47 \text{ at.}\%$.

Как видно из рис. 7, экспериментальные точки проводимости с ростом Me в логарифмическом масштабе распределяются вдоль прямой

$$\sigma(\text{Me}) = A + B \cdot \text{Me}, \quad (2)$$

где $A = -9.00$, $B = 0.21$. Экспериментальная зависимость $R(\text{Me})$ (рис. 8) хорошо аппроксимируется функцией (1), которой ранее описывалось изменение размеров зерен с толщиной и содержанием металлической фазы. Здесь $y(x) = R(\text{Me})$, $A_1 = 0$, $A_2 = 0.74$, $x_0 = 50.49 \text{ at.}\%$, $dx = 2.47 \text{ at.}\%$.

При $\text{Me} < 46 \text{ at.}\%$ разброс экспериментальных точек проводимости и, следовательно, отклонение от прямой (2) весьма заметны (рис. 7). При дальнейшем увеличении содержания металлической фазы точки упорядочиваются, несмотря на значительные отличия по толщине пленок, и распределение становится более линейным. Причем именно при $\text{Me} > 46 \text{ at.}\%$ (металл начинает занимать практически половину объема) проводимость становится металлической, а коэффициент отражения при увеличении проводимости растет, что и показывает рис. 8. Следует отметить, что в том же самом интервале при $\text{Me} \sim (42-55) \pm 2 \text{ at.}\%$ значительно увеличился и размер зерен (в 2.1 раза) (рис. 6). Некоторое замедление роста $R(\text{Me})$ наблюдается при $\text{Me} > 56 \text{ at.}\%$. Однако в насыщение коэффициент отражения не выходит, так как проводимость во всем рассматриваемом диапазоне Me продолжает увеличиваться (рис. 7, 8).

В работе [10] показано, что для аморфных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ при содержании металлической фазы до формирования металлической проводимости ($\text{Me} < 44 \text{ at.}\%$) с уменьшением среднего размера зерен наблюдается некоторый спад проводимости, несмотря на увеличение Me. То есть именно одновременный рост содержания металлической фазы и размеров зерен определяет поведение как проводимости, так и коэффициента отражения.

При $\text{Me} \geq 56 \text{ at.}\%$ наблюдается значительный разброс точек и отклонение от аппроксимирующих кривых как проводимости, так и коэффициента отражения (рис. 7, 8). По-видимому, это вызвано существенным отличием параметров пленок для этих содержаний металлической фазы. Так, практически при одних и тех же Me (пленки № 9–11) толщины пленок могут отличаться на 200 nm, размеры зерен более чем в 2 раза, а проводимость на порядок (см. таблицу).

Таким образом, для аморфных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$ зависимости проводимости, коэффициента отражения и среднего размера зерен от содержания металлической фазы коррелируют между собой. Поведение коэффициента отражения описывается изменением проводимости аморфных композитных пленок, которая в свою очередь определяется одновременно особенностями их структуры и состава (параметрами Φ и Me).

4. Основные результаты работы

Исследована структура аморфных гранулированных композитных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{ZrO})_{1-x}$ на лавсановой подложке.

По данным атомно-силовой микроскопии структура всех пленок являлась неоднородной, на поверхности присутствовали многочисленные капли, отчетливо просматривался волокнистый рельеф лавсановой подложки. Вплоть до пленки № 4 на поверхности встречались разрывы, для более толстых пленок наблюдалось уже сплошное покрытие. Разрешение АСМ как с обычным зондом, так и с магнитным не позволяло зафиксировать гранулированную структуру, вплоть до пленки № 7. Это свидетельствует о хорошем перемешивании металлической и диэлектрической фаз для пленок с небольшой концентрацией металла.

Методом магнитно-силовой микроскопии визуализирована магнитная доменная структура пленок. Для ряда исследуемых пленок выявлена однородно упорядоченная полосовая доменная структура, которая сильно зависит от рельефа самой пленки. В пленках, в которых существенное влияние на гранулярную структуру оказывают элементы рельефа подложки, полосовая доменная структура переходит в слабоупорядоченную лабиринтную структуру. Для формирования полосовой доменной структуры на поверхности критическим является содержание металлической фазы, в частности кобальта. Изначально разупорядоченная, она проявляется только при Me не менее 56 at.%. С увеличением толщины пленки и содержания кобальта полосовая доменная структура пленок упорядочивается до субпараллельной с уменьшением периода от 200 до 150 nm. Тем не менее структура поверхности пленки оказывает прямое воздействие на доменную структуру, что проявляется в нарушениях периодичности и разрывах полос, топографически связанных с нарушениями гранулярной структуры пленки.

Определена зависимость среднестатистических размеров зерен от толщины и содержания металлической фазы. Наиболее выраженные зависимости средние размеры зерен от толщины и от содержания металлической фазы имеют при $d > 510$ nm и $\text{Me} > 42 \pm 2$ at.%. В соответствии с результатами предыдущих работ показано, что для тонких аморфных композитных пленок, как в настоящей работе, и для более толстых пленок, толщиной в 6–8 раз превосходящих рассматриваемые, значительный рост среднего размера зерен проявляется при содержании металлической фазы > 44 at.%.

Выявлено, что от содержания металлической фазы Me существенно изменяются проводимость σ и коэффициент отражения R . В рассматриваемом интервале Me от 26 до 61 at.% удельная проводимость исследуемых пленок увеличилась на восемь порядков от 10^{-4} до $10^4 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$, а коэффициент отражения более чем на три порядка от $4.5 \cdot 10^{-4}$ до $7.4 \cdot 10^{-1}$. В указанном интервале проводимость с ростом Me в основном

растет. При $\text{Me} < 46$ at.% разброс экспериментальных точек проводимости весьма заметен, а при дальнейшем увеличении Me распределение (в логарифмическом масштабе) становится более линейным.

Выявлен интервал содержаний металлической фазы $\text{Me} \sim (42-55) \pm 2$ at.%, при котором наблюдалась резкая зависимость размеров зерен $\Phi(\text{Me})$ и коэффициента отражения $R(\text{Me})$. Экспериментальные точки хорошо аппроксимируются функцией (1), которой для ряда других аморфных пленок описывались зависимости $\Phi(\text{Me})$ и $\sigma(\text{Me})$, а для тонких металлических, металл-диэлектрических пленок — $\Phi(d)$ и $\sigma(d)$.

Показано, что структура аморфных гранулированных композитных пленок определяет как их проводящие, так и отражающие свойства, а зависимости среднего размера зерен, проводимости и коэффициента отражения от содержания металлической фазы коррелируют между собой. Поведение коэффициента отражения описывается изменением проводимости аморфных композитных пленок, которая, в свою очередь, определяется одновременно особенностями их структуры и состава (параметрами Φ и Me).

Авторы выражают глубокую признательность С.С. Шевчуку и В.А. Радаеву (Институт геологии Коми НЦ УрО РАН) за электронно- и зондово-микроскопические исследования композитных пленок.

Список литературы

- [1] Бажин И.В., Лещева О.А., Никифоров И.Я. // ФТТ. 2006. Т. 48. № 4. С. 726–731.
- [2] Грабов В.М., Демидов Е.В., Комаров В.А. // ФТТ. 2008. Т. 50. № 7. С. 1312–1316.
- [3] Кукушкин С.А., Осипов А.В. // УФН. 1998. Т. 168. № 10. С. 1083–1116.
- [4] Муслимов А.Э., Бутахин А.В., Коновко А.А., Смирнов И.С., Роцин Б.С., Волков Ю.О., Ангелуц А.А., Андреев А.В., Шкуринов А.П., Каневский В.М., Асадчиков В.Е. // Кристаллография. 2012. Т. 57. № 3. С. 471–476.
- [5] Ганьшина Е.А., Кочнева М.Ю., Подгорный Д.А., Щербак П.Н., Демидович Г.Б., Козлов С.Н. // ФТТ. 2005. Т. 47. № 7. С. 1333–1337.
- [6] Серов И.Н., Марголин В.И., Потсар Н.А., Солтовская И.А., Фантиков В.С., Тупик В.А. // Поверхность. 2004. № 7. С. 31–35.
- [7] Житейцев Е.Р., Уланов В.А., Зарипов М.М., Желов Е.П. // ФТТ. 2005. Т. 47. № 7. С. 1212–1216.
- [8] Du J.H., Le Q., Wang L.C. // J. Phys.: Condensed Matter. 1995. Vol. 7. P. 9425–9432.
- [9] Yates H.M., Brook L.A., Sheel D.W., Ditta I.B., Steele A., Foster H.A. // Thin Solid Films. 2008. Vol. 517. № 2. P. 517–521.
- [10] Антонец И.В., Голубев Е.А., Котов Л.Н., Калинин Ю.Е., Ситников А.В. // ЖТФ. 2016. Т. 86. № 3. С. 98–105.
- [11] Антонец И.В., Голубев Е.А., Котов Л.Н. // Известия Коми научного центра УрО РАН. 2015. № 1 (21). С. 13–21.
- [12] Антонец И.В., Котов Л.Н., Некипелов С.В., Голубев Е.А. // ЖТФ. 2004. Т. 74. № 3. С. 24–27.

- [13] Антонец И.В., Котов Л.Н., Некипелов С.В., Карпушов Е.Н. // ЖТФ. 2004. Т. 74. № 11. С. 102–106.
- [14] Антонец И.В., Котов Л.Н., Макаров П.А., Голубев Е.А. // ЖТФ. 2010. Т. 80. № 9. С. 134–140.
- [15] Антонец И.В., Котов Л.Н., Голубев Е.А. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2007. № 8. С. 65–71.
- [16] Бек Г., Гюнтеродт Г.Й. Металлические стекла. М.: Наука, 1983. 454 с.
- [17] Полухин В.А., Ватолин Н.А. Моделирование аморфных металлов. М.: Наука, 1985. 288 с.
- [18] Луцев Л.В., Звонарева Т.К., Лебедев В.М. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. № 15. С. 84–89.
- [19] Калинин Ю.Е., Пономаренко А.Т., Ситников А.В., Стогней О.В. // Физика и химия обработки материалов. 2001. № 5. С. 14–20.
- [20] Золотухин И.В., Калинин Ю.Е., Неретин П.В., Ситников А.В., Стогней О.В. // Альтернативная энергетика и экология. 2002. № 2. С. 7–14.
- [21] Антонец И.В. Отражающие и проводящие свойства тонких металлических пленок и их наноструктура. Сыктывкар: Изд-во Сыктывкарского гос. ун-та, 2007. 124 с.
- [22] Антонец И.В., Котов Л.Н., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Радиотехн. и электрон. 2004. Т. 49. № 10. С. 1243–1250.
- [23] Котов Л.Н., Антонец И.В., Голубев Е.А., Петрунев С.Н. // Вестник Поморского гос. ун-та. Сер. „Естественные науки“. 2008. Т. 3. С. 50–57.
- [24] Антонец И.В., Котов Л.Н., Калинин Ю.Е., Ситников А.В., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Письма в ЖТФ. 2014. Т. 40. № 14. С. 1–6.
- [25] Антонец И.В., Котов Л.Н., Кирпичева О.А., Голубев Е.А., Калинин Ю.Е., Ситников А.В., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Радиотехн. и электрон. 2015. Т. 60. № 8. С. 839–850.
- [26] Антонец И.В., Котов Л.Н., Кирпичева О.А., Голубев Е.А., Калинин Ю.Е., Ситников А.В., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Журнал радиоэлектроники. Электронный журнал. 2014. № 4. Режим доступа: <http://jre.cplire.ru/koi/apr14/12/>
- [27] Власов В.С., Котов Л.Н., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Радиотехн. и электрон. 2014. Т. 59. № 9. С. 882.
- [28] Sulitani N. // J. Magnetism and Magnetic Materials. 2001. Vol. 231. P. 85–93.
- [29] Kohmoto O., Mineji N., Isagawa Y. // J. Magnetism and Magnetic Materials. 2002. Vol. 239. P. 36–38.