



DOI: 10.5604/20830157.1159330

WŁAŚCIWOŚCI ELEKTRYCZNE NANOKOMPOZYTÓW (FeCoZr)_x(Al₂O₃)_(100-x) WYTWORZONYCH ROZPYLANIEM WIĄZKĄ ARGONU I TLENU JAKO UKŁADY KONDENSATOROWE

Konrad Kierczyński, Tomasz Norbert Koltunowicz

Politechnika Lubelska, Wydział Elektrotechniki i Informatyki, Katedra Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć

Streszczenie. W pracy przedstawiono wyniki pomiarów określających właściwości elektryczne nanokompozytów (FeCoZr)_x(Al₂O₃)_(100-x) wytworzonych przy użyciu metody rozpylania jonowego. Do badań wykorzystano próbki wykonane jako kondensatorowy układ pomiarowy w celu zmniejszenia wpływu rezystancji badanej próbki. Określono temperaturowe i częstotliwościowe zależności pojemności, konduktancji, kąta stratności i kąta przesunięcia fazowego. Pomiaru wykonano przy użyciu prądu zmiennego o częstotliwości z przedziału od 42 Hz do 1 MHz w temperaturach z zakresu od 77 K do 373 K.

Słowa kluczowe: nanokompozyty, właściwości elektryczne, układ kondensatorowy

ЕЛЕКТРИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ НАНОКОМПОЗИТІВ (FECOZR)_x(AL₂O₃)_(100-x) В КОНДЕНСАТОРНІЙ СИСТЕМІ УТВОРЕНИХ РОЗПИЛЕННЯМ АРГОНУ І КИСНЮ

Анонція. У роботі представлені результати вимірювань електричних властивостей наноконкомпозитів (FeCoZr)_x(Al₂O₃)_(100-x) отриманих за допомогою методу іонного розпилення. У дослідженні були використані зразки, виконані у вигляді конденсаторної вимірювальної системи, щоб зменшити вплив опору досліджуваного зразка. Визначено температурні і частотні залежності ємності, провідності, кута діелектричних втрат і фазового кута. Вимірювання проводилися з використанням змінного струму в діапазоні частот від 42 Гц до 1 МГц в межах температур від 77 К до 373 К.

Ключові слова: наноконкомпозити, електричні властивості, конденсатор системи

ELECTRICAL PROPERTIES OF (FeCoZr)_x(Al₂O₃)_(100-x) NANOCOMPOSITES PRODUCED BY SPUTTERING OF ARGON AND OXYGEN BEAM AS CAPACITOR SYSTEMS

Abstract. The paper presents the results of measurements which determine the electrical properties of nanocomposites (FeCoZr)_x(Al₂O₃)_(100-x) which were produced using the ion-sputtering. In the research samples, which were made as capacitor measurement system, were used to reduce the impact of resistance of the sample. Temperature and frequency dependence on capacity, conductance, loss angle and phase angle were determined. Measurements were performed using alternating current at a frequency range from 42 Hz to 1 MHz at temperatures range from 77 K to 373 K.

Keywords: nanocomposites, electrical properties, capacitor system

Wstęp

Od dłuższego czasu wiele uwagi poświęca się materiałom, których wymiary zbliżone są do wymiarów nanometrowych. Materiały takie nazywamy nanomateriałami. Wiele ośrodków naukowo-badawczych na całym świecie wierzy, że materiały te mogą zmienić wiele dziedzin życia. Wielkie znaczenie naukowe jak i praktyczne mają również badania mające na celu określenie ich właściwości elektrycznych, magnetycznych, mechanicznych i wielu innych. Właściwości tych materiałów zależą w dużym stopniu od wielkości ziaren oraz ich połączeń tworzących całą strukturę materiału, jak również od właściwości stopów elementó, z których zostały wykonane oraz stosunek fazy metalicznej x do fazy dielektrycznej $(100-x)$.

Bardzo ciekawe pod tym względem są nanokompozyty, w których ziarna metalu wielkości kilku nanometrów znajdują się w matrycy z materiału izolacyjnego. Materiały o wymiarach mikro i milimetrowych posiadają szereg różnych właściwości fizyko-chemicznych.

Ze względu na bardzo interesujące właściwości magnetyczne oraz elektryczne takie jak dodatkowa termicznie aktywowana polaryzacja w materiałach o przewodzeniu elektrycznym materiały te mogą znaleźć zastosowanie w technice.

We wcześniejszych pracach dotyczących nanokompozytów wytwarzanych przez rozpylanie za pomocą wiązki czystego argonu [2, 7] oraz kombinowanej wiązki argonu i tlenu [4, 8] przedstawiono częstotliwościowe zależności konduktywności σ oraz wpływu wygrzewania na właściwości elektryczne. Model przewodnictwa skokowego i jego eksperymentalną weryfikacja na prądzie przemiennym i stałym zostały przedstawione w pracach [1, 3, 5].

Вступ

Протягом довгого часу, багато уваги приділяється матеріалам, розміри яких наближені до нанометрових. Такі матеріали називаються наноматеріалами. Багато науково-дослідних центрів по всьому світу вважають, що ці матеріали можуть змінити різні сфери життя. Велике наукове і практичне значення мають дослідження пов'язані з визначенням їх електричних властивостей, а також магнітних, механічних та інших. Властивості цих матеріалів багато в чому залежить від розміру зерен і їх зв'язків, які формують всю структуру матеріалу, а також від властивостей сплаву елементів з яких були виготовлені, а також співвідношення металевої фази x до діелектричної фази $(100-x)$.

Цікавими у цьому відношенні є наноконкомпозити, в яких зерна металу, розміром в декілька нанометрів, знаходяться в матриці з ізоляційного матеріалу. Матеріали мікро і міліметрових розмірів мають ряд різних фізико-хімічних властивостей.

З погляду на цікаві магнітні та електричні властивості, такі як додаткова теплова активована поляризація в електропровідних матеріалах, ці матеріали можуть знайти застосування в техніці.

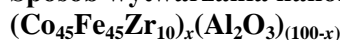
У попередніх роботах, які стосувалися наноконкомпозитів, що отримані шляхом розпилення за допомогою в'язки чистого argonu [2, 7], а також комбінованих в'язки argonu і кисню [4, 8] показано частотну залежність провідності σ і вплив відпалювання на електричні властивості. Модель стрибкової провідності і її експериментальна верифікація на змінному і постійному струмі наведені в роботах [1, 3, 5].

Jak wiadomo z prac [2, 4, 7, 8] w nanokompozytach metal-dielektryk, w zależności od zawartości fazy metalicznej x i progu perkolacji x_c , występują różne mechanizmy przewodzenia. Obserwowany wzrost konduktywności wraz ze wzrostem temperatury świadczy o występowaniu w nanokompozycie przewodzenia typu „dielektrycznego”. Zawartość fazy metalicznej w tym przypadku jest mniejsza od progu perkolacji ($x < x_c$). Obniżenie konduktywności wraz ze wzrostem temperatury pomiarowej świadczy o tym, że w nanokompozycie mamy do czynienia z przewodzeniem typowym dla metali. Dla tego przypadku zawartość fazy metalicznej w nanokompozycie jest większa od progu perkolacji ($x \geq x_c$). Gdy wartość fazy metalicznej x przekroczy wartość progu perkolacji x_c zachodzi zmiana mechanizmu przewodzenia z dielektrycznego na metaliczny. Zmiany te zaobserwowano w nanokompozytach $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ wytworzonych rozpyleniem złożonej tarczy ze stopu metali i dielektryka wiązką składającą się z jonów argonu [7].

Materiały wybrane do badań wykonane są jako kondensatorowy układ pomiarowy w celu zmniejszenia wpływu rezystancji badanej próbki. Zawierają one nanostruktury i są nanokompozytami składającymi się z nanocząsteczek fazy metalicznej na bazie żelaza i kobaltu $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$, które są losowo rozmieszczone w matrycy dielektrycznej z Al_2O_3 .

Celem pracy było przedstawienie wyników pomiarów kondensatorowego układu, w którym rolę dielektryka pełnią warstwy nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ wytworzonego metodą rozpylania jonowego w atmosferze mieszaniny gazów argonu i tlenu. Określono temperaturowe i częstotliwościowe zależności pojemności, konduktancji, tangensa kąta strat dielektrycznych oraz kąta przesunięcia fazowego dla nanokompozytu o zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at. %.

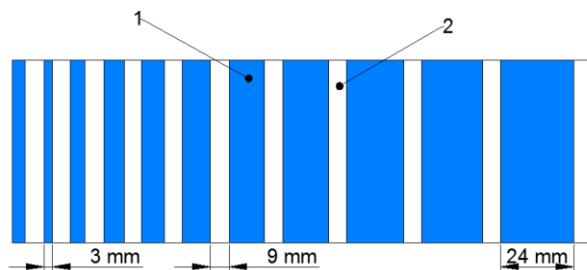
1. Sposób wytwarzania nanokompozytów



Metodą, którą wytworzono nanokompozyty o strukturze metal-dielektryk jest metoda dwuzródłowego rozpylania jonowego dwóch jednakowych tarcz. Paski dielektryka Al_2O_3 przyciśnięte do płytki ze stopu metalu $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$ tworzą tarczę (rys. 1), której ukształtowanie pozwala wykonać cienkie warstwy nanokompozytu o grubości od 1 do 6 μm o różnym stosunku fazy metalicznej do dielektrycznej.

Metalowy stop wykonano w próżni z wykorzystaniem pieca indukcyjnego łącząc czyste kobalt (99,98 %), żelazo (99,9 %) oraz cyrkon (99,8 %) o składzie atomowym Co_{45} , Fe_{45} i Zr_{10} . Płytki tlenku aluminium miały grubość 2 mm i szerokość 9 mm. Rozmieszczone w odległości od 3 mm na jednym brzegu tarczy do 24 mm na drugim. Zmiana odległości między nimi wpływała na zmianę stosunku pomiędzy objętością metalu i dielektryka, co dawało możliwość zmiany składu kompozytu.

Przy rozpyleniu dwóch tarcz na obracającym się podłożu równocześnie osadzane były atomy obu komponentów. Składnik metaliczny, ze względu na większą wartość energii powierzchniowej, będzie formował się jako ziarna o kształcie bliskim do kulistego. Dzięki temu powstają struktury składające się z nanoziaren metalicznych rozmieszczonych losowo w matrycy dielektrycznej.



Rys. 1. Widok rozpylanej tarczy składającej się ze stopu metalu $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$ (1) oraz z płytek z tlenku aluminium Al_2O_3 (2)

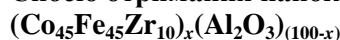
Рис. 1. Форма розпилюваної мішені, що складається з металевого сплаву $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$ (1) і пластинок з оксиду алюмінію Al_2O_3 (2)

Як відомо з робіт [2, 4, 7, 8] в нанокomпозитах метал-діелектрик, залежно від вмісту металевої фази x і порога перколяції x_c , існують різні механізми провідності. Збільшення провідності разом зі зростом температури вказує на те, що в нанокomпозиті має місце "діелектрична" провідність. Вміст металевої фази в цьому випадку менший, ніж поріг перколяції ($x < x_c$). Зменшення провідності при підвищенні температури вимірювання показує, що нанокomпозит має тип провідності характерний для металів. У цьому випадку, вміст металевої фази в нанокomпозиті більший порога перколяції ($x \geq x_c$). Коли вміст металевої фази x перевищує значення порогу перколяції x_c відбувається зміна механізму провідності з діелектричної на металічну. Ці зміни спостерігалися в нанокomпозитах $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ утворених розпиленням складної мішені зі сплаву металів і діелектрика в'язкою яка складається з іонів аргону [7].

Матеріали, вибрані для випробувань виконані у вигляді конденсаторної вимірювальної системи, щоб зменшити опір досліджуваного зразка. Вони включають в себе nanoструктури і є нанокomпозитами, що складаються з наночастинок металевої фази на основі заліза і кобальту $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$, які випадковим чином розподілені в діелектричній матриці Al_2O_3 .

Метою дослідження було представлення результатів вимірювань конденсаторної системи, в якій в якості діелектрика використаний шар нанокomпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ отриманого шляхом розпилення в атмосфері газової суміші аргону і кисню. Визначено температурні і частотні залежності ємності, провідності, тангенса кута діелектричних втрат і кута зсуву фаз нанокomпозиту з вмістом металевої фази $x = 82,28$ ат. %.

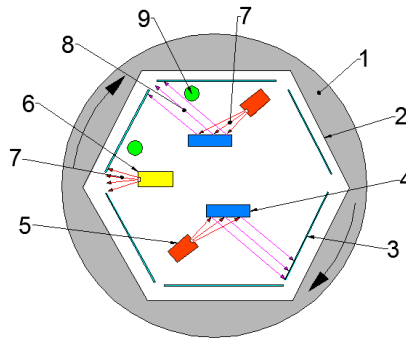
1. Спосіб отримання нанокomпозитів



Спосіб, яким було отримано нанокomпозити зі структурою метал-діелектрик є способом іонного напилення двох однакових мішеней. Пластини діелектрика Al_2O_3 , прикріплені до металевого сплаву $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$ утворюють мішень (рис. 1), форма якої дозволяє створювати плівки нанокomпозиту, що мають товщину від 1 до 6 μm з різним співвідношенням металевої фази до діелектрика.

Металевий сплав створений у вакуумі з використанням індукційної печі поєднуючи чистий кобальт (99,98%), залізо (99,9%) і цирконій (99,8%) з атомним складом Co_{45} , Fe_{45} і Zr_{10} . Пластини оксиду алюмінію мають товщину 2 мм і ширину 9 мм. Розташовані на відстані від 3 мм з одного кінця пластини і до 24 мм, з іншого. Зміна відстані між ними впливає на зміну співвідношення між вмістом металу і діелектрика, що дає можливість змінювати склад композиту.

При розпиленні двох мішеней на обертову підкладку одночасно осаджувались атоми двох компонентів. Металевий компонент через більш високе значення поверхневої енергії був сформований, як зерна близькі до сферичної форми. Завдяки цьому утворюються структури, що складаються з металевих нанозерен розподілених випадковим чином в діелектричній матриці.



Rys. 2. Widok z góry części stanowiska do dwuźródłowego rozpylenia jonowego [6]: 1 – komora próżniowa; 2 – obracający się bęben do mocowania jednocześnie sześciu podłoży; 3 – podłoża dielektryczne, szklyano-ceramiczne o rozmiarze 200 mm × 60 mm; 4 – rozpylane tarcze chłodzone bieżącą wodą; 5 – źródło jonowo-wiązkowego rozpylenia; 6 – źródło do jonowego oczyszczania podłoży; 7 – strumień jonów z gazem (argon lub argon i tlen); 8 – strumienie rozpylanych atomów; 9 – źródła elektronów tzw. kompensatory

Рис. 2. Вид зверху частини пристрою до двуджерельного розпилення [6]: 1 – вакуумна камера; 2 – обертовий барабан для закріплення одразу шести підкладок; 3 – діелектрична підкладка, скляно-керамічна розміром 200 мм × 60 мм; 4 – розпилювані мішені охолоджувані водою; 5 – джерело іонно-пучкового розпилення; 6 – джерело для іонного очищення підкладок; 7 – струмінь іонів з газом (аргон або аргон і кисень); 8 – струмені розпилюваних атомів; 9 – джерела електронів, так звані компенсатори

Rysunek 2 przedstawia widok z góry stanowiska do źródłowego rozpylenia jonowego. Dwa źródła jonowo-wiązkowego rozpylenia (5) służą do rozpylenia materiału, z którego wykonana jest tarcza (4). Trzecie źródło (6) wspólnie ze źródłami elektronów (7) służą do oczyszczania podłoża. Wszystkie elementy zamontowane są w komorze próżniowej (1). (2) obraca się z prędkością do 2 obr./min. w komorze próżniowej (1), a na jego zewnętrznej części rozmieszczono sześć sztuk szklyano-ceramicznych podłoży (3) o wymiarach 200 mm × 60 mm każde. Ze źródła jonowo-wiązkowego rozpylenia (5) strumień jonów argonu i tlenu (8) padają na tarczę wybijając z niej atomy metalu i dielektryka tworząc strumień atomów (8), który tworzy warstwę nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$. W celu eliminacji dodatniego potencjału, który pojawia się podczas rozpylenia materiałów dielektrycznych na powierzchni podłoża izolacyjnego zastosowano źródło intensywnej promieniowania elektronowego (9) do rozładowania podłoży.

Aby uzyskać materiały o różnych zawartościach fazy metalicznej należy zmienić parametry osadzania, ciśnienie gazów technologicznych (argonu lub argonu z tlenem) oraz prędkość obrotu podłoży.

Do wytworzenia próbek nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ do źródła doprowadzana była mieszanina argonu z tlenem o ciśnieniu $9,6 \cdot 10^{-2}$ Pa przy ciśnieniu tlenu $4,41 \cdot 10^{-2}$ Pa.

Analizator promieni rentgenowskich w skaningowym mikroskopie elektronowym LEO 1455VP pozwolił na określenie stężenia składników w wytworzonym nanokompozycie z błędem mniejszym niż 1%. Grubości cienkich warstw w przybliżeniu określone były za pomocą SEM na powierzchni wytworzonej próbki z błędem nie większym niż 3–4%. Całkowity błąd nie przekroczył 5%.

2. Pomiary

Pomiar parametrów oraz badanie właściwości elektrycznych materiałów można przeprowadzić za pomocą urządzeń wykorzystujących prąd stały jak i prąd przemienny. Stanowisko do badań częstotliwościowo-temperaturowych zależności znajdujące się w laboratorium Katedry Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Politechniki Lubelskiej i umożliwia przeprowadzenie badań właściwości elektrycznych nanokompozytów $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$. Wykorzystanie prądu zmiennego do badań parametrów elektrycznych pozwala na określenie wielu istotnych parametrów, takich jak pojemność, konduktancja, konduktywność, kąt stratności dielektrycznej czy kąt przesunięcia fazowego w funkcji częstotliwości.

Pomiary właściwości elektrofizycznych przy napięciu zmiennym w szerokim zakresie częstotliwości pozwalają uzyskać dodatkowe informacje o mechanizmie przenoszenia ładunku. W przypadku zwykłego przewodnictwa w jednym z pasm

Rysunek 2 представляє вид зверху пристрою для іонного розпилення. Два джерела іонно-пучкового розпилення (5) використовуються для розпилення матеріалу, з якого зроблена мішень (4). Третє джерело (6) разом з джерелами електронів (7) використовується для очищення підкладки. Всі компоненти закріплені у вакуумній камері (1).

Барабан (2) обертається зі швидкістю 2 об./хв. у вакуумній камері (1), і на його внутрішній стороні розташовані шість скляно-керамічних підкладок (3) розміром 200 мм × 60 мм кожна. З джерела іонно-пучкового розпилення (5) струмені іонів аргону і кисню (8) потрапляють на мішень вибиваючи з неї атоми металу і діелектрика утворюючи струмінь атомів (8), який утворює шар нанокomпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$. З метою усунення додатнього потенціалу, який з'являється під час розпилення діелектричних матеріалів на поверхні ізоляційної підкладки застосовується джерело інтенсивного електронного випромінювання (9) для розрядження підкладок.

Щоб отримати матеріали з різним вмістом металічної фази потрібно змінити параметри осадження, тиск технологічних газів (argonu або argonu з киснем) і швидкість обертання підкладок.

Для утворення зразків нанокomпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ до джерела подавалась суміш argonu і кисню під тиском $9,6 \cdot 10^{-2}$ Па при тиску кисню $4,41 \cdot 10^{-2}$ Па.

Аналізатор рентгенівських променів в скануючому електронному мікроскопі LEO 1455VP дозволив визначити концентрації компонентів в отриманому нанокomпозиті з похибкою меншою ніж 1%. Товщина тонких шарів в наближенні була визначена за допомогою SEM на поверхні отриманого зразка з похибкою не більше 3–4%. Сумарна похибка не більше ніж 5%.

2. Вимірювання

Вимірювання параметрів і вивчення електричних властивостей матеріалів можна виконати за допомогою пристроїв, що використовують постійний і змінний струм. Установка для досліджень частотно-температурних залежностей, знаходиться в лабораторії кафедри електричних пристроїв і технологій високої напруги Люблінської Політехніки і дозволяє досліджувати електричні властивості нанокomпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$. Використання змінного струму для вимірювання електричних параметрів дозволяє визначити ряд важливих параметрів, таких як ємність, провідність, кондуктивність, кут діелектричних втрат, кут зсуву фаз як функції частоти.

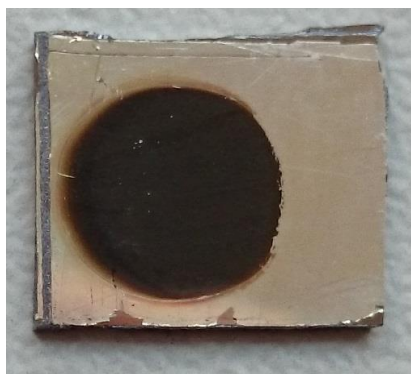
Вимірювання електрофізичних властивостей на змінній напрузі у широкому діапазоні частот дозволяє отримати додаткову інформацію про механізм переносу заряду. У випадку звиклої провідності в одній з дозволених зон немає

dozwolonych brak jest zależności częstotliwościowej, natomiast wzrost konduktywności wraz ze wzrostem częstotliwości obserwowany jest podczas skokowego przenoszenia ładunków.

Widok z góry badanej próbki przedstawiony jest na rysunku 3.

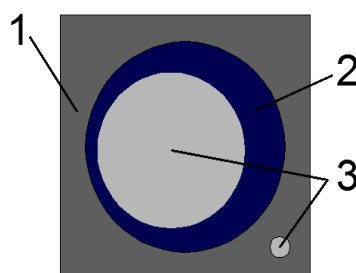
частотної залежності, в той час, як збільшення провідності зі збільшенням частоти, спостерігається в ході стрибкового переміщення заряду.

Вид згори досліджуваного зразка показано на рисунку 3.



Rys. 3. Fotografia (widok z góry) badanej próbki kompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$

Рис. 3. Фото (вид зверху) досліджуваного зразка композиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$



Rys. 4. Widok z góry próbki nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$: 1 – cienka warstwa srebra; 2 – nanokompozyt $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$; 3 – styki z pasty srebrnej

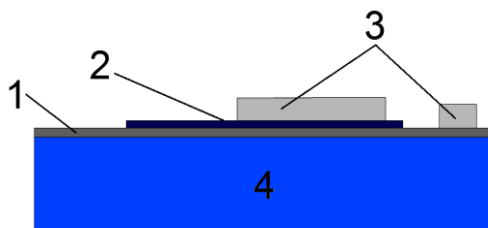
Рис. 4. Вид зверху зразку нанокмпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$: 1 – тонкий шар срібла; 2 – нанокмпозит $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$; 3 – контакти з срібної пасту

Styki wykonano ze srebra o znikomо малей rezystancji w celu zwiększenie powierzchni styku oraz wyeliminowanie możliwości wystąpienia niekorzystnej sytuacji styku punktowego. Jeden styk umieszczono na materiale kompozytowym, drugi zaś na cienkiej warstwie srebra utworzonej pod warstwą kompozytu, tworząc w ten sposób kondensatorowy układ pomiarowy. Widok z góry oraz przekrój poprzeczny badanej próbki przedstawione są odpowiednio na rysunkach 4 i 5.

Pomiary właściwości elektrycznych $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ wykonywane były na stanowisku przy użyciu prądu zmiennego. Dokonano pomiaru takich parametrów elektrycznych jak: kąt przesunięcia fazowego θ , tangens kąta strat $\text{tg}\delta$ oraz pojemności C_p i rezystancji R_p w układzie zastępczym równoległym w przedziale temperatur od 77 K (temperatura ciekłego azotu) do 373 K z krokiem pomiarowym 5 K dla wybranych częstotliwości z zakresu od 42 Hz do 1 MHz.

Контакти виготовлені зі срібла з малим опором для того, щоб збільшити поверхню контакту і елімінувати можливість некорисного впливу на вимірювання їх опору в точці контакту. Один контакт був зроблений на композитному матеріалі, другий на тонкому шарі срібла, утвореного під шаром композиту, тим самим утворюючи конденсаторну систему вимірювання. Вид згори і поперечний переріз досліджуваного зразка представлені на рис. 4 і 5.

Вимірювання електричних властивостей $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ були виконані на установці з використанням змінного струму. Були виміряні електричні параметри, такі як, кут зсуву фаз θ , тангенс кута втрат $\text{tg}\delta$, ємності C_p , і опору R_p в паралельній схемі заміщення в діапазоні від 77 K (температура рідкого азоту) до 373 K з кроком вимірювання 5 K для обраних частот в діапазоні від 42 Гц до 1 МГц.



Rys. 5. Przekrój poprzeczny badanych próbek kompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$: 1 – cienka warstwa srebra; 2 – nanokompozyt $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$; 3 – styki z pasty srebrnej; 4 – płytka krzemowa

Рис. 5. Поперечний переріз досліджуваних зразків композиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$: 1 – тонкий шар срібла; 2 – нанокмпозит $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$; 3 – контакти з срібної пасту; 4 – пластина з кремнію

Do badań wybrano nanokompozyty metal-dielektryk wytworzone przy użyciu rozpylania wiązką mieszaniny jonów argonu i tlenu tarczy składającej się ze stopu $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$ oraz pasków dielektryka Al_2O_3 . Wytworzono próbki w postaci kondensatorów, gdzie dolna okładzina została wykonana z warstwy srebra, naporowanej próżniowo na podłoże z krzemu. Następnie na warstwę srebra metodą rozpylania jonowego

Для досліджень вибрані нанокмпозити метал-діелектрик отримані з використанням розпилення мішені пучком суміші іонів аргону і кисню, що складається зі сплаву $\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10}$ і смужок діелектрика Al_2O_3 . Утворено зразки у вигляді конденсаторів, де нижній шар підкладки виконаний з шару срібла, шляхом наплення у вакуумі на кремнієву підкладку. Потім на шар зі срібла методом іонного розпилення нанесено

naniesiono nanokompozyty $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ o różnych zawartościach fazy metalicznej x w zakresie od 72,52 at.% do 89,74 at.%. Grubość warstwy nanokompozytu wynosiła około 1 μm . Druga okładzina została wykonana z pasty srebrnej, naniesionej bezpośrednio na powierzchnię warstwy nanokompozytu. W pracy przedstawiono wyniki pomiarów dla nanokompozytu o zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at. %.

3. Wyniki pomiarów i ich omówienie

Rozdział ten przedstawia wyniki badań nanokompozytów metal-dielektryk $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.% wytworzonego metodą jonowo wiązkowego rozpylania w atmosferze mieszaniny argonu i tlenu, polegających na określeniu częstotliwościowych i temperaturowych zależności pojemności, konduktancji, kąta stratności $\text{tg}\delta$ oraz kąta przesunięcia fazowego θ .

Próbki zmierzono dla częstotliwości z przedziału od 50 Hz do 1 MHz i temperatur pomiarowych z zakresu od 77 K (temperatura ciekłego azotu) do 323 K z krokiem 5 K.

Rysunek 6 przedstawia częstotliwościową zależność pojemności odpowiednio dla próbki $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.%. Zauważyć można, że dla niskich temperatur pomiarowych dla częstotliwości ok. 100 Hz widoczne są wyraźne minima, które wraz ze wzrostem temperatury pomiarowej stają się coraz mniejsze, a krzywe stają się coraz gładkie. Dla temperatury 293 K minimum to praktycznie zanika a charakterystyka w całym zakresie częstotliwości jest płaska. Dla częstotliwości, dla której widoczne jest wyraźne minimum mamy do czynienia z występowaniem rezonansu napięć. Dla wyższych częstotliwości wartości pojemności oscylują w granicach poniżej 0,1 nF.

Na rysunku 7 przedstawiono częstotliwościowe zależności konduktancji, na których zauważyć można zmiany konduktancji w szerokim zakresie częstotliwości. Minima funkcji dla wszystkich wybranych temperatur pomiarowych „przesuwają się” w zakres niższych częstotliwości wraz ze wzrostem temperatury pomiarowej T_p . Wyjątkiem jest krzywa dla temperatury 293 K, gdzie nie dostrzeżemy żadnego minimum konduktancji. Dla częstotliwości dla których widoczne są minima konduktancji występuje rezonans prądów.

nanokompoziti $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ z różnym wмістом metalowej fazy x в межах 72,52 ат.% до 89,74 ат.%. Товщина шару наноконкомпозиту близько 1 μm . Другий шар виконаний зі срібної пасты, нанесеної безпосередньо на поверхню наноконкомпозитного шару. У роботі представлені результати вимірювань наноконкомпозиту з вмістом металевї фазы $x = 82,28$ ат. %.

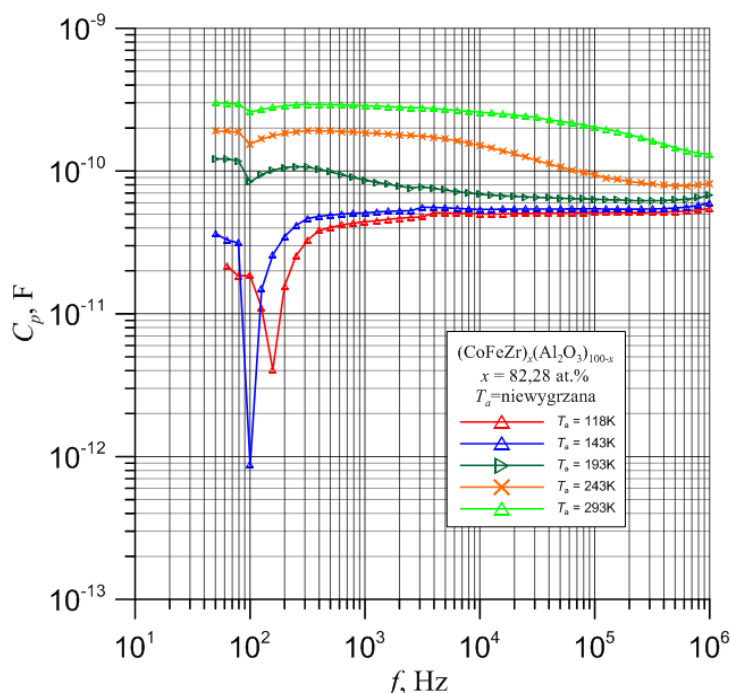
3. Результати вимірювань та їх обговорення

У цьому розділі представлені результати досліджень наноконкомпозитів метал-діелектрик $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ з вмістом металевї фазы $x = 82,28$ ат.% утвореного методом іонно-пучкового розпилення в атмосфері суміші аргону і кисню, які полягають на визначенні частотних і температурних залежностей ємності, провідності, кута втрат $\text{tg}\delta$ і кута зсуву фаз θ .

Зразки були досліджені для діапазону частот від 50 Гц до 1 МГц і температур вимірювання від 77 К (температура рідкого азоту) до 323 К з кроком 5 К.

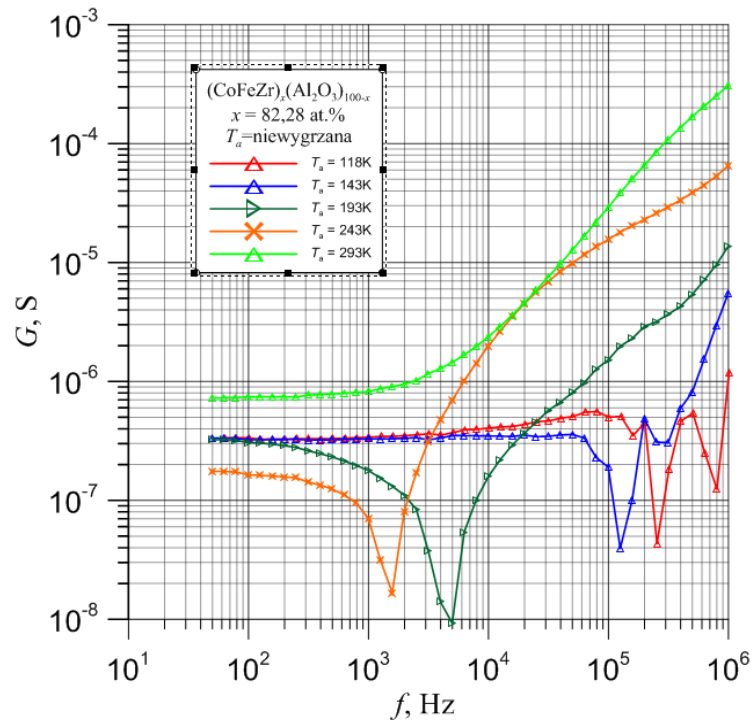
Рисунок 6 показує частотну залежність ємності, для зразка $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$, що має вміст металевї фазы $x = 82,28$ ат.%. Можна зауважити, що при низьких температурах вимірювання для частоти приблизно 100 Гц, виразно видно мінімуми, що зі збільшенням температури вимірювання стають все менші, а криві стають більш гладкими. Для температури 293 К мінімум практично зникає, а характеристика у всьому діапазоні частот є плоскою. При частоті, для якої чітко видно мінімум маємо справу з явищем резонансу напруги. Для більш високих частот значення ємності коливається в межах менше 0,1 наноФ.

На рисунку 7 показано частотні залежності провідності, на яких можемо спостерігати зміни в широкому діапазоні частот. Мінімуми функцій для всіх обраних температур вимірювання „пересуваються” в діапазон низьких частот зі збільшенням температури вимірювання T_p . Виняток становить крива для температури 293 К, де не помітно жодного мінімуму провідності. Для частот, для яких спостерігаються мінімуми провідності, виникає резонанс струму.



Rys. 6. Częstotliwościowe zależności pojemności dla próbki nanokompozytu o składzie $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ i zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.% dla wybranych temperatur pomiarowych T_p .

Рис. 6. Частотна залежність ємності зразка наноконкомпозиту $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ з вмістом металевї фазы при $x = 82,28$ ат. % для вибраних температур вимірювання T_p .

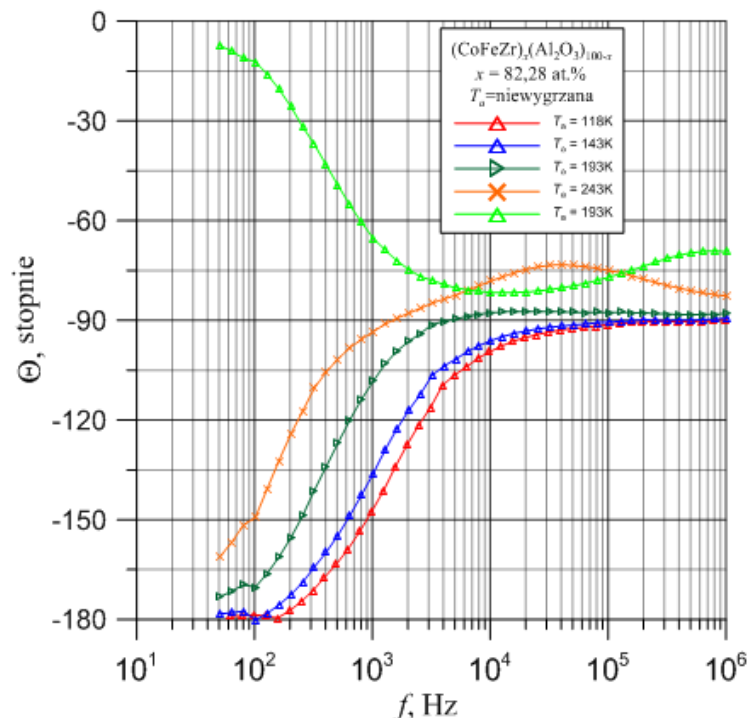


Rys. 7. Częstotliwościowa zależność konduktancji dla próbki nanokompozytu o składzie $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ i zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.% dla wybranych temperatur pomiarowych T_p

Рис. 7. Частотна залежність провідності для зразка нанокмпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ з вмістом металевої фази при $x = 82,28$ ат.% для вибраних температур вимірювання T_p

Zależności kąta przesunięcia fazowego θ w funkcji częstotliwości przedstawiono na rysunku 8. Zauważyć można, że dla niskich temperatur pomiarowych oraz paśmie niskich częstotliwości kąt fazowy θ osiąga wartości ok. $\theta = -180^\circ$. Wzrost temperatury pomiarowej powoduje, że kąt ten rośnie do wartości ok. $\theta = -90^\circ$. Wyjątkiem jest temperatura $T_p = 293$ K, dla której wartość kąta przesunięcia fazowego wraz z wzrostem częstotliwości maleje od wartości ok. $\theta = -90^\circ$ a dla niskiej częstotliwości osiąga wartość bliską $\theta = 0^\circ$. Przejście kąta przez wartość $\theta = -90^\circ$ związane jest z występowaniem rezonansu prądów.

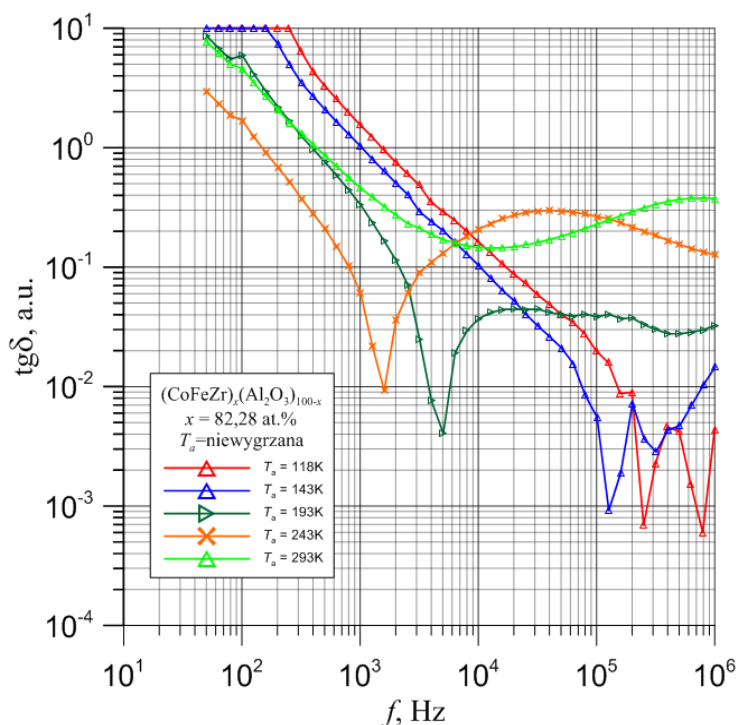
На рисунку 8 показані залежності кута зсуву фаз θ в функції від частоти. Можна зауважити, що при низьких температурах вимірювання і низькій частоті кут θ досягає значення приблизно $\theta = -180^\circ$. Підвищення температури вимірювання призводить до того, що кут збільшується до значення приблизно $\theta = -90^\circ$. Винятком є температура $T_p = 293$ K, для якої значення кута зсуву фаз разом зі збільшенням частоти зменшується від значення приблизно $\theta = -90^\circ$, а для низькочастотних досягає значення, приблизно $\theta = 0^\circ$. Проходження залежності через значення $\theta = -90^\circ$ пов'язане з виникненням резонансних струмів.



Rys. 8. Częstotliwościowa zależność kąta przesunięcia fazowego θ dla próbki nanokompozytu o składzie $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ i zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.% dla wybranych temperatur pomiarowych T_p

Рис. 8. Частотна залежність кута фазового зсуву θ для зразка нанокмпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ з вмістом металевої фази $x = 82,28$ ат.% для вибраних температур вимірювання T_p

Na rysunku 9 określone zostały częstotliwościowe zależności kąta stratności dielektrycznej $\text{tg}\delta$. Dostrzec na nim można wzrost wartości kąta stratności wraz ze zmniejszającą się częstotliwością dla wszystkich temperatur pomiarowych. Na przebiegach $\text{tg}\delta(f)$ wyraźnie widać częstotliwości występowania rezonansu napięć, co oznacza, że wartość $\text{tg}\delta$ powinna wzrastać w nieskończoność. Zastosowane mierniki impedancji mają górny zakres pomiarów $\text{tg}\delta$ ograniczony do wartości 10, co wyraźnie widać na rysunku 8. Na częstotliwościach, dla których θ przyjmuje wartości -90° , występują wyraźne minima wartości $\text{tg}\delta$.



Rys. 9. Częstotliwościowa zależność kąta stratności $\text{tg}\delta$ dla próbki nanokompozytu o składzie $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ i zawartości fazy metalicznej $x = 82,28$ at.% dla wybranych temperatur pomiarowych T_p

Рис. 9. Частотна залежність кута діелектричних втрат $\text{tg}\delta$ для зразка нанокмпозіту $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$ з вмістом металевої фази при $x = 82,28$ ат. % для вибраних температур вимірювання T_p

Z powyższych wykresów można zaobserwować pewne zależności. Można stwierdzić, że przesuując się w zakres wyższych częstotliwości, od minimum pojemności, wzrasta wartość kąta przesunięcia fazowego. Zaobserwować można również, że przesuując się w zakres wyższych częstotliwości, od minimum konduktancji, przestaje wzrastać kąt przesunięcia fazowego i stabilizuje się na poziomie $\theta = -90^\circ$.

4. Podsumowanie

W pracy zbadano częstotliwościowe i temperaturowe zależności kąta przesunięcia fazowego θ , kąta strat $\text{tg}\delta$, pojemności C_p i konduktancji G dla kondensatorów, w których jako dielektryk wykorzystano nanokompozyt $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$, wytworzony metodą rozpylania jonowego.

Ustalono, że na zależnościach $C_p(f)$, $G(f)$ oraz $\text{tg}\delta(f)$ występują wyraźne minima. Część z nich związana jest z występowaniem rezonansu napięć. Pozostałe związane są z występowaniem rezonansu prądów.

На рисунку 9 представлені частотні залежності кута діелектричних втрат $\text{tg}\delta$. На ньому можна побачити збільшення значення кута втрат разом з пониженням частоти для всіх температур вимірювання. На залежностях $\text{tg}\delta(f)$ виразно видно частоту резонансу напруги, що означає, що значення $\text{tg}\delta$ повинно зростати до нескінченності. Застосовані вимірювачі імпеданції мають верхній діапазон вимірювань $\text{tg}\delta$ обмежений до значення 10, що чітко видно на рисунку 8. Для частот, при яких θ приймає -90° , з'являються чіткі мінімуми значення $\text{tg}\delta$.

З наведених вище характеристик, можна прослідкувати деякі залежності. Можна зробити висновок, що переходячи в діапазон високих частот, від мінімуму ємності, збільшується значення кута зсуву фаз. Можна також спостерігати, що переміщаючись в діапазон високих частот, від мінімуму провідності, кут фазового зсуву перестає рости і стабілізується на рівні $\theta = -90^\circ$.

4. Висновок

В роботі досліджено частотні і температурні залежності кута фазового зсуву θ , кута втрат $\text{tg}\delta$, ємність C_p і провідність G для конденсаторів, в яких був використаний, в якості діелектрика, нанокмпозіт $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(100-x)}$, утворений шляхом іонного розпилення.

Було встановлено, що на залежностях $C_p(f)$, $G(f)$ і $\text{tg}\delta(f)$ є виразні мінімуми. Деякі з них пов'язані з виникненням резонансу напруги. Інші пов'язані з виникненням резонансу струму.

Podziękowania

Praca powstała w ramach projektu PL-NTU Transgraniczna wymiana doświadczeń PBU.03.01.00-06-386/11-00 współfinansowanego w ramach Programu Współpracy Transgranicznej Polska-Białoruś-Ukraina 2007-2013 finansowanego ze środków Unii Europejskiej w ramach Europejskiego Instrumentu Sąsiedztwa i Partnerstwa.

Niniejsza publikacja została stworzona przy pomocy Unii Europejskiej. Wyłączną odpowiedzialność za zawartość niniejszej publikacji ponoszą Konrad Kierczyński i Tomasz N. Kołtunowicz oraz w żaden sposób nie może być ona postrzegana jako odzwierciedlenie poglądów Unii Europejskiej.

Badania są finansowane z projektu badawczego Nr IP2012 026572 w ramach konkursu Iuventus Plus Ministerstwa Nauki i Szkolnictwa Wyższego pt: „Właściwości strukturalne, elektryczne i magnetyczne nanokompozytów stop ferromagnetyczny-matryca dielektryczna oraz określenie możliwości ich zastosowania”.

Konrad Kierczyński i Tomasz N. Kołtunowicz są uczestnikami projektu „Kwalifikacje dla rynku pracy – Politechnika Lubelska przyjazna pracodawcy”, współfinansowany przez Unię Europejską z Europejskiego Funduszu Społecznego.

Literatura || Література

- [1] Kołtunowicz T.N., Zhukowski P., Fedotova V.V., Saad A.M., Larkin A.V., Fedotov A.K.: The features of real part of admittance in the nanocomposites $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ manufactured by Ion-Beam Sputtering Technique with Ar Ions. Acta Physica Polonica A 120(1), 2011, 35-38.
- [2] Kołtunowicz T., Zukowski P., Fedotova Y.A., Larkin A.V.: Experimental verification of a model of hopping conductivity at alternating current in nanocomposites produced by ion-beam sputtering. International Conference Radiation Interaction with Material and its Use in Technologies 2008, 24-27 September, 2008, 274-278.
- [3] Larkin A.V., Fedotov A.K., Fedotova J.A., Kołtunowicz T.N., Zhukowski P.: Temperature and frequency dependences of impedance real part in the FeCoZr-doped PZT nanogranular composites. Materials Science-Poland, 30(2), 2012, 75-81.
- [4] Zhukowski P., Kołtunowicz T.N., Fedotova J.A., Larkin A.V.: An effect of annealing on electric properties of nanocomposites $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ produced by magnetron sputtering in the atmosphere of argon and oxygen beyond the percolation threshold. Przegląd Elektrotechniczny 86(7), 2010, 157-159.
- [5] Zhukowski P., Kołtunowicz T.N., Węgierek P., Fedotova J.A., Fedotov A.K., Larkin A.V.: Formation of Noncoil-Like Inductance in Nanocomposites $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ Manufactured by Ion-Beam Sputtering of Complex Targets in Ar+O₂ Atmosphere. Acta Physica Polonica 120(1), 2011, 43-45.
- [6] Zukowski P., Kołtunowicz T., Partyka J., Fedotova Yu.A., Larkin A.V.: Hopping conductivity of metal-dielectric nanocomposites produced by means of magnetron sputtering with the application of oxygen and argon ions. Vacuum 83(1), 2009, S280-S283.
- [7] Żukowski P., Kołtunowicz T., Partyka J., Węgierek P., Fedotova J.A., Fedotov A.K., Larkin A.V.: The effect of annealing on electrical properties of $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ nanocomposites. Przegląd Elektrotechniczny 84(3), 2008, 244-246.
- [8] Żukowski P., Kołtunowicz T., Partyka J., Węgierek P., Kolasik M., Larkin A.V., Fedotova J.A., Fedotov A.K., Komarov F.F., Vlasukova L.A.: Model przewodności skokowej i jego weryfikacja dla nanostruktur wytwarzanych technikami jonowymi. Przegląd Elektrotechniczny 84(3), 2008, 247-249.

Mgr inż. Konrad Kierczyński
e-mail: k.kierczynski@pollub.pl

Urodzony w Zamościu w 1988 roku. Ukończył studia magisterskie i otrzymał tytuł magistra inżyniera w 2012 roku na kierunku elektrotechnika, specjalność: Projektowanie urządzeń elektrycznych na Politechnice Lubelskiej. Pracuje jako asystent w Katedrze Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Politechniki Lubelskiej. Jego zainteresowania badawcze obejmują mechanizm elektrycznego przenoszenia ładunków w nanokompozytach o strukturze metal-dielektryk oraz diagnostykę izolacji w transformatorach wysokiego napięcia.



Магістр інж. Конрад Керчинський
e-mail: k.kierczynski@pollub.pl

Народився в м. Замость в 1988. Закінчив магістратуру і отримав ступінь магістра в 2012 році, за напрямком електротехніка, спеціальність: Проектування електричних приладів в Люблінській Політехніці. Працює асистентом на кафедрі електричних приладів і технологій високої напруги в Люблінській Політехніці. Його дослідницькі інтереси включають механізм перенесення електричного заряду в нанокomпозитах зі структурою метал-дielekтрик та діагностики ізоляції в трансформаторах високої напруги.

Dr inż. Tomasz Norbert Kołtunowicz
e-mail: t.koltunowicz@pollub.pl

Urodził się w 1979 roku. W Katedrze Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Wydziału Elektrotechniki i Informatyki Politechniki Lubelskiej pracuje od października 2004 roku początkowo na stanowisku asystenta a od marca 2011 roku adiunkta. W swojej pracy naukowej zajmuje się badaniami wpływu procesów technologicznych na właściwości elektryczne nanokompozytów i półprzewodników wytwarzanych technikami jonowymi.



К.т.н. інж. Томаш Норберт Колтунович
e-mail: t.koltunowicz@pollub.pl

Народився в 1979 році. На кафедрі електричних приладів і технологій високої напруги факультету електротехніки та інформатики Люблінської Політехніки працює з жовтня 2004 року спочатку, як асистент, а з березня 2011 року на посаді ад'юнкта. У своїй науково-дослідній роботі займається вивченням впливу технологічних процесів на електричні властивості нанокomпозитів і напівпровідників утворених методами іонізації.