

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ УКРАЇНИ  
СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

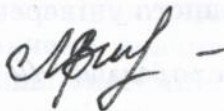
На правах рукопису

ОДНОДВОРЕЦЬ ЛАРИСА ВАЛЕНТИНІВНА  
КІНЕТИЧНІ ЯВИЩА В БАГАТОШАРОВИХ  
ПЛІВКОВИХ КОНДЕНСАТАХ НА ОСНОВІ  
ХРОМУ, КОБАЛЬТУ, НІКЕЛЮ ТА ГЕРМАНІЮ

Спеціальність 01.04.07 - фізика твердого тіла

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття вченого ступеня  
кандидата фізико-математичних наук



СУМИ - 1996


548  
539

46.36.439

Дисертація є рукопис.

Роботу виконано  
державного педагогічного  
прикладної фізики  
університету.

кафедри фізики Сумського державного університету  
ЛННБ України ім.В.Стефаніка



00760699 (.)

Науковий керівник:  
доктор фізико-математичних наук,  
професор **Проценко І. Ю.**

Офіційні опоненти:  
доктор фізико-математичних наук,  
професор **Стасюк З. В.**

доктор фізико-математичних наук,  
професор **Погребняк О. Д.**

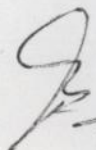
Провідна організація:  
Харківський державний університет

Захист дисертації відбудеться " 16 " січня 1997 р.  
о 15 год. на засіданні спеціалізованої ради К 22.01.01  
при Сумському державному університеті за адресою:  
244007, м.Суми, вул.Римського-Корсакова, 2, ауд. 216,  
каб. ЕТ.

З дисертацією можна ознайомитися в бібліотеці  
Сумського державного університету.

Автореферат розіслано "14" грудня 1996 р.

Вчений секретар  
спеціалізованої вченої ради  
кандидат фізико-математичних  
наук

  
А.С. Опанасюк

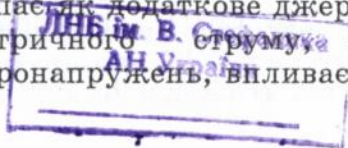
## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Тонкі плівки за своєю природою - це об'єкти з різноманітними властивостями, так як їх фізичні характеристики можуть відрізнятись від властивостей цих же матеріалів в масивному стані. Результати досліджень зразків малих розмірів (тонкі плівки, проволоки, малі частинки та ін.) застосовують для вирішення деяких фундаментальних питань фізики твердого тіла, а саме, розмірні ефекти в структурних, електрофізичних та термодинамічних властивостях, а також для одержання інформації про деякі загальні властивості твердих тіл.

В останній час в багатьох галузях мікроелектроніки, приборобудування, електронної техніки широке використання одержали не тільки металеві плівки, але й багатошарові плівкові композиції, головною вимогою до яких є їх термічна стабільність. В порівнянні з одношаровими, в багатошарових плівках мають місце свої особливості в розмірних явищах, так як поряд з традиційними механізмами розсіювання носіїв електричного струму на фонах, дефектах кристалічної ґратки, межах зерен та зовнішніх поверхнях з'являється додатковий, пов'язаний з межами розділу між шарами. Якщо ж один з шарів взяти з напівпровідника, то це приведе до зміни знаку термічного коефіцієнту опору та коефіцієнту стабільності, а також зменшення їх абсолютної величини. Таку особливість можна використовувати при розробці плівкових терморезисторів та тензодатчиків.

**Актуальність теми.** Дослідженню фізичних властивостей одношарових плівок перехідних металів в теперішній час присвячена значна кількість робіт. Але, багатошарові плівкові системи є не менш цікавими та перспективними в плані вивчення кінетичних явищ.

Це пов'язано з тією обставиною, що в цих системах межа розділу шарів виступає як додаткове джерело розсіювання носіїв електричного струму, яке спричиняє також появу макронапружень, впливає на



процеси взаємної дифузії і є місцем сегрегації домішкових атомів.

У зв'язку з цим, багатошарові плівкові системи з довільним чергуванням шарів різної товщини (багатошарові плівкові структури загального типу) та періодичні багатошарові структури, де структура загального типу виступає як фрагмент, котрий повторюється декілька разів, являють собою інтерес як об'єкти для дослідження закономірностей та явищ, які не спостерігаються в одношарових зразках.

Таким чином, вивчення кристалічної структури (фазового та елементного складу) та кінетичних явищ (розмірної і температурної залежностей опору  $R$ , термічного коефіцієнту опору  $\beta$  (ТКО), коефіцієнту стабільності  $S$ , коефіцієнтів повздовжньої  $\gamma_l$  та поперечної  $\gamma_t$  тензочутливості) багатошарових плівкових конденсатів на основі Cr, Co, Ni та Ge є актуальною науковою проблемою, яка дозволяє пояснити відомі і нові явища та закономірності.

**Мета роботи.** У відповідності з цією науковою проблемою основний напрямок дисертаційної роботи полягав в вивченні розмірної та температурної залежності опору, ТКО, коефіцієнту стабільності та коефіцієнтів повздовжньої та поперечної тензочутливості в багатошарових плівках на основі хрому, кобальту, нікелю та германію, з різним чергуванням шарів та кількістю фрагментів, одержаних в вакуумі  $10^{-4}$ - $10^{-5}$  Па при відкачуванні дифузійним пароструйним та магніторозрядними насосами.

При цьому біли розв'язані такі задачі:

а) досліджені кристалічна структура, фазовий та елементний склад плівок Cr, Co, Ni, Ge, Cr/Ge/П (П - підкладка), Cr/Co/Cr/П, Co/Cr/Co/П, Co/Ni/Co/П, Ni/Co/Ni/П, Cr/Co/Ni/П, Ni/Co/Cr/П, Cr/Ge/Cr/П, Cr/Ni/Co/Cr/П, Ge/Cr/Ge/Cr/П, Ni/Co/Cr/Ni/Co/Cr/П, Cr/Co.../Cr/Co/П, ...Co/Ni/Co/Ni/П (до десяти шарів);

б) вивчено розподіл елементів за товщиною трьохшарових плівок Cr/Co/Cr/П, Co/Cr/Co/П, Co/Ni/Co/П, Ni/Co/Ni/П. Cr/Ge/Cr/П;

в) досліджено залежність від температури, загальної товщини багатошарової структури ( $d$ ) та товщини фрагменту ( $d_{\phi}$ ) ТКО, коефіцієнтів стабільності та тензочутливості;

г) в рамках макроскопічної моделі одержано співвідношення для розрахунку ТКО та коефіцієнту повздовжньої тензочутливості багатошарових металевих плівок з довільною кількістю шарів, на основі яких проведено розрахунок діаграм " $\beta - d$ " та " $\gamma_I - d$ ", підтверджених експериментально;

д) одержано численні розрахункові залежності, основні з яких підтверджено експериментально, для ТКО та коефіцієнту повздовжньої тензочутливості від кількості шарів в багатошарових структурах загального типу та кількості фрагментів в багатошарових періодичних структурах.

Вибір багатошарових плівкових структур на основі хрому, кобальту, нікелю та германію як об'єктів дослідження був пов'язаний з такими причинами:

- на момент постановки задачі досліджень розмірно-температурні ефекти в багатошарових зразках не вивчались взагалі;
- теоретичною можливістю збільшення коефіцієнта тензочутливості порівняно з одношаровими зразками;
- практичним використанням багатошарових структур як елементів мікросхем та тензодатчиків.

**Наукова новизна.** В дисертаційній роботі вперше одержані експериментальні результати з розмірної залежності ТКО та коефіцієнту повздовжньої тензочутливості багатошарових структур загального і періодичного типу : Cr/Co/Cr/П, Co/Cr/Co/П, Co/Ni/Co/П, Ni/Co/Ni/П, Cr/Co/Ni/П, Ni/Co/Cr/П, Cr/Ge/Cr/П, Cr/Ni/Co/Cr/П, Ge/Cr/Ge/Cr/П, Ni/Co/Cr/Ni/Co/Cr/П, Cr/Co.../Cr/Co/П, ...Co/Ni/Co/Ni/П (до десяти шарів).

Встановлено, що по мірі збільшення кількості шарів в багатошаровій металевій плівці ТКО та коефіцієнт стабільності все в меншій мірі залежить від

температури: в температурному інтервалі 300 - 600 К ТКО змінюється від 1.2 до 1.0 разів при збільшенні кількості шарів від 3 до 10, відповідно.

Вперше досліджені особливості тензорезистивного ефекту в плівках Ge, Cr/Ge/Π, Cr/Ge/Cr/Π, Ge/Cr/Ge/Cr/Π, які частково можна пояснити залежністю енергії активації електропровідності в мілкокристалічних плівках Ge від ступеню деформації.

Розроблено метод прогнозу на основі мікроскопічної моделі коефіцієнтів теплопровідності та термоЕРС по даним вимірювання питомого опору та на основі макроскопічної моделі - ТКО і коефіцієнтів повздовжньої тензочутливості.

**Практична та наукова цінність.** Одержані систематичні дані з розмірної та температурної залежності опору, термічного коефіцієнту опору та коефіцієнту повздовжньої тензочутливості в загального типу та періодичних багатшарових структурах, встановлена залежність цих параметрів від товщини та кількості фрагментів. Проведена апробація теоретичних моделей, що є важливим в плані розвитку теорій електропровідності і тензочутливості в тонких плівках. Одержані наукові результати можуть бути використані при розробці більш ефективних терморезисторів та тензодатчиків.

**Особистий вклад** дисертанта полягає в постановці та проведенні експериментів, їх обробці та обговоренні, а також написанні робіт [2, 5, 9, 10].

### **Основні положення та результати,** **які виносяться на захист.**

1. Результати експериментального дослідження взаємної дифузії елементів, температурної залежності опору, ТКО та коефіцієнту стабільності для трьохшарових плівок, які складаються з двох або трьох компонентів. Вони вказують на те, що в температурному інтервалі 100 - 700 К величина ТКО змінюється в межах  $(0.3 - 1.8) \cdot 10^{-3}$  (плівки на основі Cr і Co);  $(1.0 - 2.3) \cdot 10^{-3}$  (плівки на основі Ni і Co);  $(1.3 - 2.1) \cdot 10^{-3}$  (плівки на основі Cr, Ni та Co) та  $-(0.8 - 1.9) \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  (плівки на основі Cr і Ge) при коефіцієнті стабільності  $S = (0.11 - 0.71)$ ;  $(0.05 - 1.56)$ ;  $(0.20 - 1.00)$  та  $-(1.00 - 18.00) \cdot 10^{-3}$ , відповідно. На температурній залежності опору та ТКО

зафіксовані особливості поблизу температури Неєля для Cr, Кюрі для Ni та Дебая для Cr і Co.

2. Збільшення кількості шарів (до десяти) дво- та трьохкомпонентних плівок приводить до все в меншій мірі залежним від температури значенням опору, ТКО ( $\beta$ ) та коефіцієнту стабільності (S), які мають величину  $(0.30 - 2.47) \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  та  $(0.30 - 1.00)$ .

3. Характер залежності від товщини ТКО та коефіцієнту повздовжньої тензочутливості  $\gamma_1$  багат шарової плівки має осцилюючий характер: величина ТКО в межах одного фрагменту буде збільшуватись (якщо  $\beta_1$  та  $\beta_{g1} < \beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), зменшуватись (при оберненій рівності) або осцилювати (якщо  $\beta_1$  та  $\beta_{g1} < \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  та  $\beta_{g2} > \beta_{g3}$  або  $\beta_1$  та  $\beta_{g1} > \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  та  $\beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), виходячи на асимптотичне значення  $\beta_{g3}$  із збільшенням товщини окремих шарів; величина  $\gamma_1$  монотонно зменшується з ростом товщини окремих шарів, виходячи на максимум при переході до наступного шару. Розмах осциляцій в межах фрагменту зменшується при збільшенні числа фрагментів.

4. Збільшення значення  $\gamma_1$  багат шарової плівки в порівнянні з  $\gamma_{1i}$  одношарової плівки такої ж товщини, як і у багат шарової плівки, задовільно узгоджується з теоретичним співвідношенням, яке одержано в рамках макроскопічної моделі; різниця між експериментальними та розрахунковими значеннями пояснюється впливом меж розділу між шарами та процесами взаємної дифузії ( $\gamma_1/\gamma_{11} = (1.10 - 1.36)$ ,  $\gamma_1/\gamma_{12} = (1.11 - 2.84)$ ,  $\gamma_1/\gamma_{13} = (1.08 - 1.20)$ ).

5. Методика прогнозу фізичних властивостей плівок (коефіцієнтів теплопровідності та термоелектрорушійної сили) на основі вимірювання електричних властивостей.

## АПРОБАЦІЯ РОБОТИ І ПУБЛІКАЦІЇ

Основні результати роботи доповідались на конференціях та семінарах: IV Міжнародна конференція з фізики і технології тонких плівок (Івано-Франківськ, 1993 р.); 3-тя Харківська вакуумна конференція сумісно з семінаром "Системи відкачування прискорювачів та термоядерних реакторів" (Харків, 1993 р.); Міжнародна конференція з модифікації властивостей поверхневих шарів ненапівпровідникових матеріалів (Суми, 1993 р.); Науково-технічна конференція з техніки і фізики електронних систем і пристроїв (Суми, 1995 р.); Міжнародна наукова конференція, присвячена 150-річчю від дня народження видатного українського фізика і електротехніка Івана Пулюя (Львів, 1995 р.); V Міжнародна конференція з фізики і технології тонких плівок (Івано-Франківськ, 1995 р.); Міжгалузевий науково-практичний семінар з участю зарубіжних спеціалістів "Вакуумна металізація" (Харків, 1996 р.); II Міжнародна конференція MPSL'96 (Суми, 1996 р.).

Матеріали були представлені на конференціях: Еволюція тонких плівок, структура поверхні і морфологія (Бостон, 1994 р.); Полікристалічні тонкі плівки - II : Структура, текстура та використання (Бостон, 1995 р.).

Результати досліджень опубліковані в 15 статтях та тезах доповідей, з них 10 назв подано у списку публікацій в авторефераті.

**Об'єм роботи.** Дисертаційна робота викладена на 143 сторінках тексту, включаючи 50 рисунків та 12 таблиць. Дисертація складається зі вступу, чотирьох глав, заключення, висновків та списку використаної літератури, що містить 133 назви.

## ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтована актуальність теми, її наукова новизна, охарактеризовано сучасний стан проблеми, сформульована мета досліджень та основні положення, які виносяться на захист, містяться відомості про практичну значимість роботи.

Перша глава "Розмірні ефекти в електрофізичних властивостях одно- та двошарових плівок" - це огляд літературних даних. Вона складається з п'яти параграфів.

У перших двох параграфах розглянуті теоретичні моделі електропровідності одно- та двошарових плівок. Констатується, що теоретичні моделі Майадаса і Шатцкеса (МШ) та Тельє, Тоссе і Пішара (ТПП) приблизно однаково описують розсіювання електронів на межі зерен, в той час як поверхнєве розсіювання модель МШ описує некоректно. Моделі ТПП являються більш послідовними та прийнятливими для обробки експериментальних результатів. Теорія, запропонована Дімміхом [1], враховує розсіювання носіїв не тільки на межі розділу кристалітів, а й шарів, але вираз для розрахунку ТКО має складний вигляд для порівняння з експериментом, тому було здійснено [2] відповідне спрощення його до вигляду, при якому можливо провести кількісні розрахунки не тільки для двох- але й багатошарових плівок.

В параграфі I.3 розглядаються експериментальні результати досліджень кінетичних властивостей одно-, двош- та багатошарових плівок. Спочатку аналізуються електрофізичні властивості тих металів, які використовувались для одержання багатошарових структур, досліджених в роботі. Узагальнюючи експериментальні дані з розмірної залежності для плівок хрому, нікелю та кобальту, робиться висновок про те, що середня довжина вільного пробігу електронів в цих плівках лімітується в основному межами зерен і, в цілому, збільшується з ростом товщини плівки, а розмірні залежності питомого опору та температурного коефіцієнту опору носять монотонний характер. Що до температурної залежності опору для плівок цих металів, то вона має свої особливості в точках Нееля, Кюрі і Дебая.

Закономірності розмірного ефекту в ТКО для двошарових плівок сильно відрізняються від аналогічних для одношарових: з ростом товщини верхнього шару значення ТКО або збільшується, або зменшується, в

залежності від того, як співвідносять ТКО окремих шарів, виходячи на асимптотичне значення, в той час для одношарових ТКО з ростом товщини тільки збільшується.

Практично усіма авторами робіт з розмірної залежності ТКО багатошарових плівок підкреслюється, що питомий опір багатошарової плівки суттєво залежить від товщини і кількості шарів або фрагментів та співвідношення ТКО окремих шарів, з яких складається багатошарова структура.

У четвертому параграфі розглядаються теоретичні моделі та експериментальні результати дослідження тензочутливості в одно- та двошарових плівках. Вказані основні закономірності тензоефекту в одно- та двошарових плівках на основі відомих експериментальних результатів.

Аналізу результатів з дослідження фазового, елементного складу та процесів взаємної дифузії елементів присвячений п'ятий параграф.

Предметом особливого розгляду було питання про структуру плівок германію, які можуть бути аморфними або полікристалічними. Це повністю визначається такими параметрами конденсації як температура підкладки, тиском залишкових газів, швидкістю конденсації. При цьому кристалічні плівки германію утворюються при температурах вище деякого порогового значення  $T_p = 445 - 470$  К.

У другій главі "Методика і техніка експерименту" описуються установки для одержання багатошарових плівкових структур (ВУП-5М та установка з магніторозрядним насосом) і проведення досліджень їх електрофізичних властивостей (електроопір та тензочутливість), методика дослідження елементного складу (мас-спектрометр вторинних іонів MS-7201M), фазового складу і особливостей кристалічної структури (електронний мікроскоп EM - 125K).

Для вимірювання електропровідності, тензочутливості, дослідження фазового складу та кристалічної структури використовувались підкладки із скла,

склотекстоліту (або слюди) , сіталу та плівок вуглецю товщиною до 20 нм.

Термообробка плівок проходила за схемою "нагрів <--> охолодження" в інтервалі температур 100 - 670 К ( швидкість нагрівання та охолодження складала величину 2-3 К/хв.

Розтяг пліткових зразків при дослідженні тензочутливості в області великих деформацій (2-4%) здійснювався за допомогою мікрогвинта, а в області малих деформацій (0.04-0.06%) - методом згинання підкладки. В першому і другому випадку використовувались контакти однакової конфігурації.

Електронно-мікроскопічним та електроннографічними методами вивчено, при яких умовах конденсації утворюються достатньо чисті плівкові зразки ОЦК-Cr, ГЦК-Ni, ГП- та ГЦК-Co, а- та к-Ge, а також такі домішкові фази, як Cr<sub>3</sub>O, CoO. Зроблено висновок, що методом електроннографії утворення інтерметалевих фаз не спостерігається.

На рисунку 1 приводяться типові дифракційні картини та мікроснімки одношарових плівок, які виступають компонентами досліджуваних багатшарових систем.

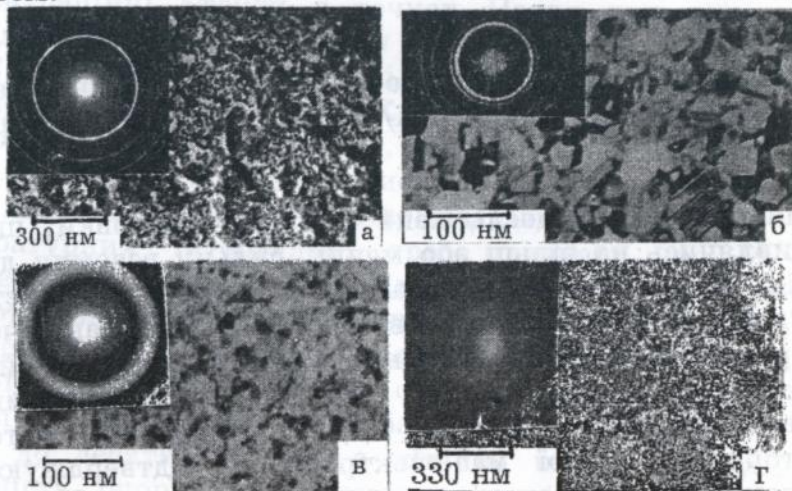


Рисунок 1 - Мікроструктура і відповідні їй дифракційні картини для плівок ОЦК - Cr (а), ГЦК - Ni (б), ГП - Co (в) та а - Ge (г)

У третьій главі "Розмірно-температурні ефекти в електропровідності багатошарових плівок" в першому параграфі подані результати дослідження елементного, фазового складу та кристалічної структури трьохшарових плівок на основі хрому, кобальту, нікелю та германію. Відмічено, що дослідження зразків з великою кількістю шарів має ряд затруднень в випадку вторичної іонної мас-спектрометрії та практично неможливе в випадку електронної мікроскопії.

На рисунку 2 приведені типові дифузійні профілі на прикладі трьохшарової плівки Ni/Co/Ni/П.

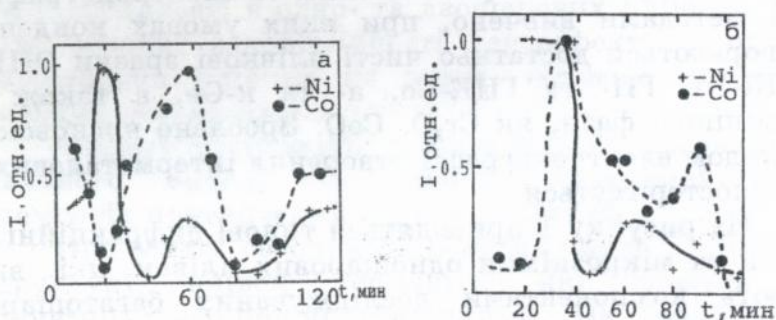


Рисунок 2 - Дифузійні профілі для невідпалених (а) та відпалених (б) плівок Ni/Co/Ni. Загальна товщина 215 нм

На основі цих досліджень зроблено висновки, що не дивлячись на більш або менш сильну взаємну дифузію елементів, індивідуальність шарів зберігається. Одержані результати дозволяють зробити заключення про можливість застосування теоретичних моделей для розмірних ефектів в ТКО та тензочутливості багатошарових зразків. Дані, одержані методом вторинної іонної мас-спектрометрії підтверджуються електронно-мікроскопічними дослідженнями. На основі одержаних знімків були розраховані гістограми.

Результати дослідження температурної залежності опору приведені в параграфі 3.2. Найбільш

характерними особливостями залежностей  $R(T)$  і  $\beta(T)$  є такі. Для плівок Cr/Co/Cr і Co/Cr/Co спостерігаються особливості в точках Нееля ( $\Theta_N$ ) і Дебая ( $\Theta_D$ ) для хрому. Розмитість максимумов та мінімумов на температурній залежності ТКО і ТК ТКО можна пояснити дифузійними процесами в об'ємі зерен, що обусловлює змінювання температури Нееля і Дебая для кожного окремого зерна ( тобто, так звані, концентраційні ефекти в характерних температурах).

При переході до плівкових систем на основі нікелю та кобальту описані вище особливості проявляються найбільш сильно в точці Кюри ( $\Theta_{OC}$  і  $\Theta_C$ ) для нікелю, хоча в випадку зразка Co/Ni/Co мають місце особливості і в температурному інтервалі 350 - 450 К, що слід пов'язувати з електрон-магнетонною взаємодією, яка приводить до квадратичної по температурі залежності опору і спостерігається в цьому температурному інтервалі як для нікелю, так і кобальту.

В трьохкомпонентних плівкових системах на основі хрому, нікелю та кобальту мають місце розмиті конфентраційні ефекти в точках Нееля для хрому, Кюри для нікелю та Дебая для кобальту.

На рисунку 3 приведені типові температурні залежності опору, ТКО та ТК ТКО для трьохшарових плівкових систем на основі Cr, Ni і Co.

Не дивлячись на високу термостабільність вищевказаних структур та стабілізацію ТКО в деяких температурних інтервалах, треба признати, що їх параметри слабо відповідають вимогам до високоточних легкоплавких терморезисторів.

Рисунок 4 ілюструє температурну залежність опору для багатшарових плівкових систем на основі хрому, і кобальту. Характерною для багатшарових (кількість шарів до десяти) зразків є лінійна по температурі залежність опору та практично незмінне значення ТКО. Ці результати принципово відрізняються від аналогічних, приведених вище, тому що зменшення товщини та паралельне збільшення кількості шарів

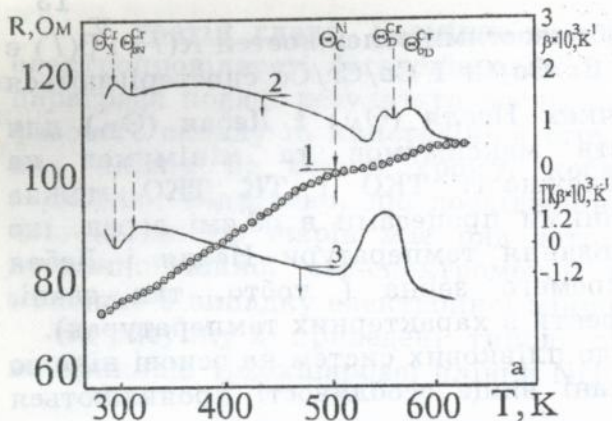


Рисунок 3 - Температурна залежність опору, ТКО та ТК ТКО для трьохшарових плівкових систем Cr(20)/Co(20)/Ni(20)/П (а) та Ni(75)/Co(75)/Cr(65)/П (б).

$\Theta_0$  - характерні температури для масивних зразків

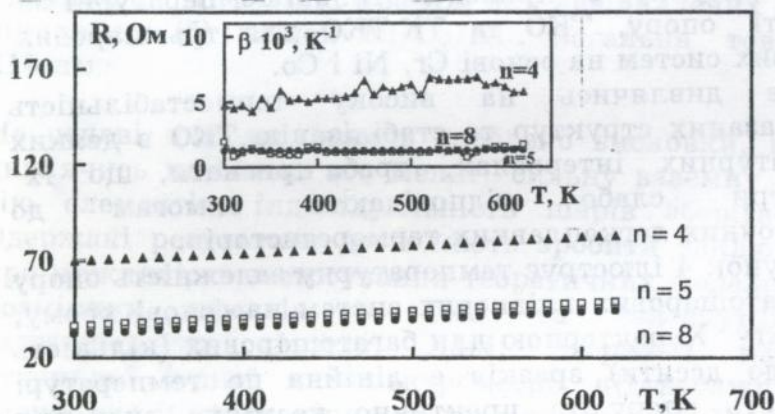
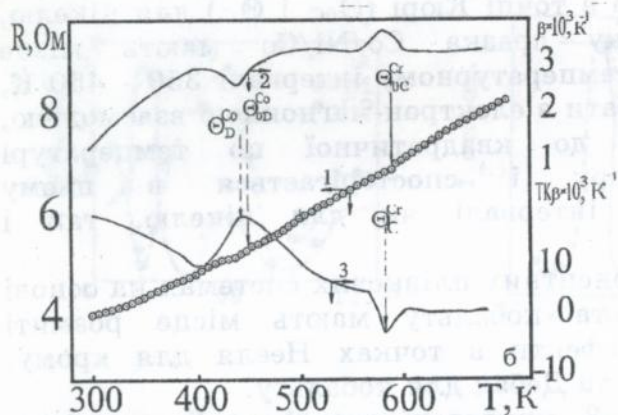


Рисунок 4 - Температурна залежність опору і ТКО для періодичної багатшарової плівкової системи ...Cr(150)/Co(10)/Cr(80)/Co(10)/П,  $n$  - кількість шарів

приводить, в свою чергу, до розмиття і практично повного згладжування концентраційних ефектів в характерних точках. Для характеристики терморезисторів використовують коефіцієнт стабільності, який визначається за співвідношенням :

$$S = \frac{d \ln R}{d \ln T} = \beta T. \quad (1)$$

Розрахунки коефіцієнта стабільності для двох- та трьохкомпонентних багатошарових плівок говорить про відносно стабільність терморезисторів, виготовлених на їх основі .

Всі багатошарові плівкові системи на основі металів мають загальний недолік - відносно велике значення ТКО (порядка  $10^{-3}$ - $10^{-4}$   $K^{-1}$ ). Якщо ж один або декілька шарів взяти з напівпровідника, одержуємо відносно малі (порядка  $10^{-4}$  -  $10^{-5}$   $K^{-1}$ ) значення ТКО.

Рисунок 5 дає уяву про особливості електрофізичних властивостей плівкових систем на основі аморфного або мілкокристалічного германію та полікристалічного хрому.

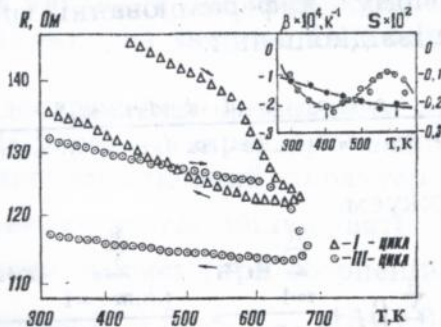


Рисунок 5 - Температурна залежність опору, ТКО та коефіцієнта стабільності для плівки Cr(65)/Ge(10)/Cr(65)/П

Третій параграф третьої глави присвячений дослідженню розмірного ефекту електропровідності та апробації теоретичної моделі Дімміха і макроскопічної моделі на випадок багатошарових плівок з довільною кількістю шарів.

Використання теорії Дімміха для розгляду електричних властивостей багатошарової періодичної структури з фрагментом  $d_\phi = d_1 + d_2$ , зводиться до аналізу властивостей окремого фрагменту, який являє собою ту ж саму двошарову плівку. Спрощені співвідношення теорії Дімміха можна узагальнити на випадок довільної кількості шарів:

$$\beta = \sum_{i=1}^n A_i \left\{ \beta_{gi} \left( 1 - \frac{d \ln F_i}{d \ln k_i} - \frac{d \ln F_i}{d \ln l_i} \right) \right\}. \quad (2)$$

Однак, труднощі математичного характеру не дають можливості одержати в рамках мікроскопічних моделей строгі співвідношення для багатошарових плівок. Тому, слід відмітити, що аналізувати фізичні процесів і прогнозувати електрофізичні властивості можна і в рамках макроскопічної моделі.

Виходячи з уявлення про паралельне з'єднання шарів плівкового зразка, були одержані вирази для ТКО плівки з довільною ( $n$ ) кількістю шарів. Вивод вказаних співвідношень заснований на логарифмуванні та послідовному диференцюванні по температурі слідуєчого співвідношення:

$$\rho = \frac{\rho_1 \cdot \rho_2 \cdot \rho_3 \cdot \dots \cdot \rho_n \cdot (d_1 + d_2 + d_3 + \dots + d_n)}{\rho_2 \cdot \rho_3 \cdot \dots \cdot \rho_n \cdot d_1 + \rho_1 \cdot \rho_3 \cdot \dots \cdot \rho_n \cdot d_2 + \rho_1 \cdot \rho_2 \cdot \dots \cdot \rho_n \cdot d_3}. \quad (3)$$

Для ТКО одержуємо:

$$\beta = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial \rho}{\partial T} = \sum_{i=1}^n \beta_i + \frac{\sum_{i=1}^n d_i \cdot \alpha_i}{\sum_{i=1}^n d_i} - \frac{\sum_{i,k,m,\dots=1}^n d_i \cdot \alpha_i \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots}{\frac{1}{2} \sum_{i,k,m,\dots=1}^n d_i \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots} \quad (4)$$

$$- \frac{\sum_{i,k,m,\dots=1}^n d_i \cdot (\beta_k + \beta_m + \dots + \beta_n) \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots}{\frac{1}{2} \sum_{i,k,m,\dots=1}^n d_i \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots} \quad (i \neq k \neq m \neq \dots)$$

На рисунку 6 представлені узагальнені якісні розмірні залежності у вигляді діаграми в координатах "ТКО-товщина".

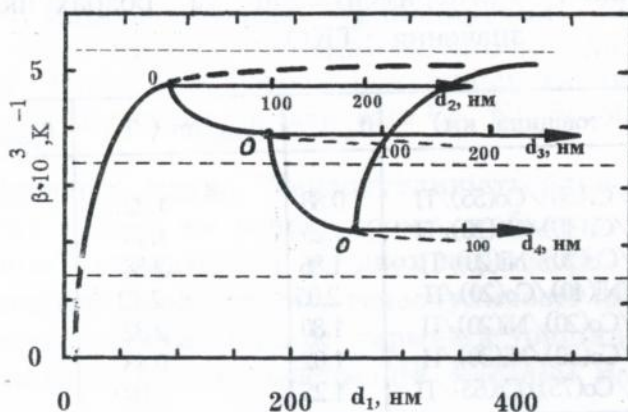


Рисунок 6 - Узагальнена діаграма "ТКО - товщина" для багатошарової плівкової структури типу ... $Me_1/Me_2/Me_3/П$ , де  $\beta_{g1} < \beta_{g2} < \beta_{g3}$

Таблиця 1 дає уявлення про кореляцію експериментальних та розрахункових значень ТКО багатошарових плівок.

Проведені дослідження дозволяють зробити такі висновки. По-перше, характер залежності від товщини ТКО має осцилюючий характер: величина ТКО в межах фрагменту буде збільшуватись (якщо  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} < \beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), зменшуватись (при оберненій нерівності) та осцилювати (якщо  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} < \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  і  $\beta_{g2} > \beta_{g3}$  або  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} > \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  і  $\beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), виходячи на асимптотичне значення при збільшенні товщини окремого шару. По-друге, згідно теоретичних розрахунків, значення ТКО не залежить від кількості фрагментів багатошарової періодичної структури і монотонно зменшується з ростом їх товщини.

В четвертому параграфі даної глави приведена методика прогнозу фізичних властивостей плівок на основі вимірювання електричного опору. Суть нашого

Таблиця 1 - Експериментальні та розрахункові значення ТКО

Плівка (товщина, нм)	$\beta_{\text{експ.}}$	$\beta_{\text{рознр.по (2)}}$	$\beta_{\text{рознр.по (4)}}$
Co(50)/Cr(50)/Co(55)/П	0.88	1.22	0.95
Co(20)/Cr(40)/Co(20)/П	1.29	1.46	1.63
Ni(50)/Co(20)/Ni(20)/П	1.86	2.38	3.36
Co(20)/Ni(40)/Co(20)/П	2.05	2.43	2.94
Cr(20)/Co(20)/Ni(20)/П	1.80	2.32	2.34
Cr(30)/Co(30)/Ni(30)/П	1.02	0.48	0.81
Ni(75)/Co(75)/Cr(65)/П	1.25	2.09	2.83
Cr(150)/Co(10)/Cr(80)/ /Co(10)/П	0.42	1.04	1.10
Co(10)/Cr(150)/Co(10)/ /Cr(80)/Co(10)/П	0.90	0.87	1.25
Cr(80)/Co(10)/Cr(150)/ /Co(10)/Cr(80)/Co(10)/П	0.32	1.05	1.09
Co(10)/Cr(80)/Co(10)/ Cr(150)//Co(10)/Cr(80)/ /Co(10)/П	1.15	0.93	1.23
Cr(150)/Co(10)/Cr(80)/ Co(10)/Cr(150)//Co(10)/ Cr(80)/Co(10)/П	0.91	1.12	1.12
Co(12)/Ni(20)/Co(12)/ /Ni(20)/Co(12)/Ni(20)/ /Co(12)/Ni(20)/Co(12)/ Ni(20)/П	1.90	2.72	2.84
Co(30)/Cr(30)/Ni(30)/ Co(30)/П	2.47	1.49	1.79
Ni(30)/Co(30)/Cr(30)/ Ni(30)/Co(30)/П	2.45	1.20	2.27

методу оцінки коефіцієнтів теплопровідності та термоелектрорушійної сили для сильнодисперсних або великої товщини металевих плівок заснований на розрахунку макроскопічних транспортних коефіцієнтів  $K_0$ - $K_2$  через питому провідність плівки та потенціал Дірака. Проведено розрахунок вищевказаних коефіцієнтів для масивних конденсатів Co, Ni, Sc, Zr, Pd.

**Четверта глава** "Тензочутливість одно- та багат шарових плівок на основі хрому, кобальту, нікелю та германію" складається з двох параграфів. Перший присвячений дослідженню тензочувливості аморфних та мілkokристалічних плівок германія товщиною 5 - 160 нм в області малих деформацій методом на згин при стисненні ( $-\epsilon_l$ ) та розтягуванні ( $+\epsilon_l$ ) зразка. Одержано, що особливості та аномалії тензочувливості тонких плівок германію частково можна пояснити залежністю енергії активації електропровідності від ступеню деформації ( $\Delta E$  зростає від 0.67 до 1.90 eВ при змінюванні  $\epsilon_l$  від 0 до  $3.8 \cdot 10^{-4}\%$ , а потім зменшується до 0.67 eВ при змінюванні  $\epsilon_l$  від  $3.8 \cdot 10^{-4}$  до  $4.7 \cdot 10^{-4}\%$ ).

В другому параграфі четвертої глави розглянуто питання тензочувливості багат шарових плівок. Розрахунки коефіцієнтів тензочувливості здійснювались з використанням макроскопічної моделі. На випадок довільної кількості шарів співвідношення для коефіцієнту повздовжньої тензочувливості можна записати:

$$\gamma_l = \sum_{i,k,m,\dots=1}^n \gamma_{li} - \frac{\sum_{i=1}^n d_i (\gamma_{lk} + \gamma_{lm} - \mu_{fi}) \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots}{\frac{1}{2} \sum_{i=1}^n d_i \cdot \rho_k \cdot \rho_m \dots} - \frac{\sum_{i=1}^n \mu_{fi} \cdot d_i}{\sum_{i=1}^n d_i}, \quad (5)$$

Результати, які представлені в таблиці 2 дозволяють судити про ступінь відповідності експериментальних та

розрахункових величин коефіцієнту тензочутливості багатопшарових плівок і свідчать про те, що розрахункові дані дуже добре відповідають експериментальним та частково дозволяють в'яснити, яку тенденцію має розмірна залежність. Відповідність результатів можна пояснити незначним вкладом межі розділу між шарами в явище тензоефекту, що пов'язано з дифузійними процесами, які приводять до їх розмиття.

Таблиця 2 - Експериментальні та розрахункові значення коефіцієнту  $\gamma_l$

Плівка (товщина, нм)	$\gamma_l$ експер.	$\gamma_l$ розрах. по (5)	Метод деформації
Cr(20)/Co(20)/Ni(20)/П	22.7	24.3	згин <sup>*)</sup>
Cr(20)/Co(20)/Ni(20)/П	23.1	24.3	розтяг
Ni(75)/Co(75)/Cr(65)/П	24.4	-	згин
Co(50)/Cr(50)/Co(55)/П	19.8	21.2	згин
Co(50)/Cr(50)/Co(55)/П	21.0	21.2	розтяг
Cr(60)/Co(30)/Cr(40)/П	21.6	22.1	згин
Cr(40)/Co(30)/Cr(40)/П	19.9	28.3	згин
Cr(40)/Co(30)/Cr(40)/П	22.3	28.3	розтяг
Co(20)/Cr(30)/Co(40)/П	19.0	25.2	згин
Co(20)/Cr(30)/Co(40)/П	19.2	25.2	розтяг
Co(40)/Cr(90)/Co(55)/П	7.9	10.6	розтяг
Ni(50)/Cr(10)/Ni(50)/Cr(10)/П	20.1	22.2	згин
Ni(50)/Cr(10)/Ni(50)/Cr(10)/П	20.7	22.2	розтяг
Ni(30)/Co(30)/Cr(30)/Ni(30)/Co(30)/Cr(30)/П	46.6	52.5	згин
Ni(30)/Co(30)/Cr(30)/Ni(30)/Co(30)/Cr(30)/П	50.1	52.5	розтяг
Ni(50)/Cr(10)/Ni(50)/Cr(10)/Ni(50)/Cr(10)/Ni(50)/Cr(10)/П	22.7	22.9	розтяг

\*) приведені дані тільки для розтягуючої деформації при згині

Але не дивлячись на це, співвідношення (5) дозволяє побудувати узагальнену діаграму в координатах "коефіцієнт тензочутливості - товщина", як і в випадку ТКО (на рисунку 7 як приклад приведена розрахункова діаграма для багат шарової плівкової структури ...Cr/Co/П).

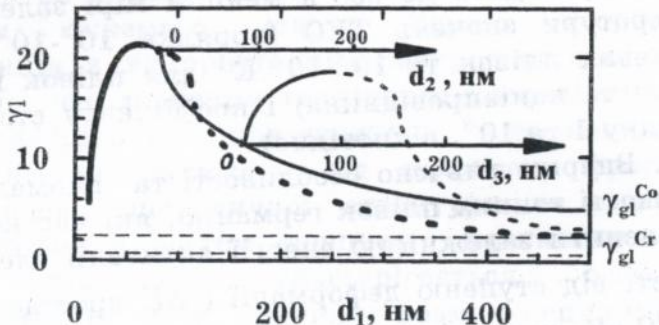


Рисунок 7 - Розрахункова діаграма "коефіцієнт повздовжньої тензочутливості - товщина" для багат шарової плівкової структури ...Cr/Co/П

В **заключенні** дисертаційної роботи обговорено одне з фундаментальних питань фізики тонких плівок, пов'язане з розсіюванням носіїв електричного струму на межі зерен. Аналізуються залежності  $\beta$  та  $\gamma_l$  від товщини і порівнюються з подібними результатами других авторів.

**Висновки** дисертаційної роботи формулюються таким чином:

1. Методом електронної мікроскопії та вторинної іонної мас-спектрометрії вивчені процеси взаємної дифузії елементів в плівкових системах Cr/Co/Cr/П, Co/Cr/Co/П, Ni/Co/Ni/П, Co/Ni/Co/П і Cr/Ge/Cr/П. Встановлено, що в зразках на основі Ni і Co, Cr і Ge йдуть більш інтенсивні процеси взаємної дифузії порівняно із зразками на основі Cr і Co, хоча індивідуальність шарів в обох випадках зберігається.

2. На температурних залежностях опору, ТКО та ТК ТКО і коефіцієнту стабільності для двох- та трьох-компонентних трьохшарових плівок спостерігаються особливості в точках Нееля для Cr ( $\Theta_N^{Cr} = 270 - 300$  K), Кюри для Ni ( $\Theta_C^{Ni} = 550 - 580$  K), і Дебая для Cr

( $\Theta_D^{Cr} = 565 - 585 \text{ K}$ ) та Co ( $\Theta_D^{Co} = 430 - 450 \text{ K}$ ), а також розмитість концентраційних ефектів ( $\Delta\Theta_N^{Cr} = -20 - 30 \text{ K}$ ;  $\Delta\Theta_C^{Ni} = 30 - 35 \text{ K}$ ;  $\Delta\Theta_D^{Cr} = 20 - 25 \text{ K}$ ;  $\Delta\Theta_D^{Co} = 20 - 30 \text{ K}$ ) в цих точках.

3. Вперше одержано, що збільшення кількості шарів (до десяти) двох- або трьохкомпонентних плівкових систем приводить до все в меншій мірі залежних від температури значень ТКО (порядка  $10^{-3}-10^{-4} \text{ K}^{-1}$  для металевих плівок та  $10^{-4}-10^{-5} \text{ K}^{-1}$  для плівок на основі металу та напівпровідника) і коефіцієнту стабільності (порядку 1 та  $10^{-3}$ , відповідно).

4. Вперше вивчено особливості та аномалії тензочутливості тонких плівок германію, які частково можна пояснити залежністю енергії активації електропровідності від ступеню деформації ( $\Delta E$  зростає від 0.67 до 1.90 eВ при змінюванні  $\epsilon_l$  від 0 до  $3.8 \cdot 10^{-4}\%$ , а потім зменшується до 0.67 eВ при змінюванні  $\epsilon_l$  від  $3.8 \cdot 10^{-4}$  до  $4.7 \cdot 10^{-4}\%$ ).

5. Вивчено розмірний ефект в повздовжній тензочутливості одношарових плівок Ge та багатошарових на основі Ge і Cr. Одержано, що величина коефіцієнту тензочутливості плівок Ge сильно залежить від товщини (зменшується від  $\gamma_l = -15$  до  $\gamma_l = -80$  при змінюванні товщини від 10 до 160 нм) та не залежить від матеріала підкладки (слюда, сітал, склотекстоліт). В багатошарових плівках Cr/Ge/Cr і Ge/Cr/Ge/Cr величина  $\gamma_l$  не перевищує -10, що пояснюється шунтуючою дією плівки хрому.

6. Проведено порівняння експериментальних результатів з тензочутливості багатошарових плівок на основі Cr і Co, Cr і Ni та Ni і Co, розрахованих за макроскопічною моделлю. Хорошу відповідність розрахункових та експериментальних результатів можна пояснити слабкою чутливістю меж розділу між шарами до деформації в зв'язку з їх дифузійним розмиттям.

7. Вперше показано, що характер залежності від товщини ТКО та  $\gamma_l$  має осцилюючий характер:

величина ТКО в межах фрагменту буде збільшуватись (якщо  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} < \beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), зменшуватись (в протилежному випадку) або осцилювати (якщо  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} < \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  і  $\beta_{g2} > \beta_{g3}$  або  $\beta_1$  і  $\beta_{g1} > \beta_{g2}$ , а  $\beta_2$  і  $\beta_{g2} < \beta_{g3}$ ), виходячи на асимптотичне значення при збільшенні товщини окремого шару. Згідно теоретичних розрахунків з використанням макроскопічної моделі одержано, що значення термічного коефіцієнту опору та коефіцієнту повздожньої тензочутливості практично не залежать від кількості фрагментів багатшарової періодичної структури та монотонно зменшуються з ростом товщини фрагменту. Але в межах фрагменту спостерігається осцилююча залежність  $\beta$  та  $\gamma$ , причому розмах осциляцій при збільшенні кількості фрагментів зменшується.

### Література

1. Dimmich R. // Thin Solid Films. - 1988. - V.158, № 1. - P. 13 - 24.
2. Кузьменко А.И., Петренко С.В., Проценко И.Е.// ВАНТ. - 1990. - № 2(10). - С. 87 - 89.

### Основні результати дисертації опубліковані в таких роботах:

1. Проценко І.Ю., Одноворець Л.В. Прогноз електрофізичних властивостей металевих конденсатів/ Наукові праці. Серія: Фізика твердого тіла. - Суми: СумДУ, 1993. - С. 20 - 25
2. Проценко І.Ю., Чорноус А.М., Одноворець Л.В., Шамоля В.Г. Залежність від температури опору багатшарових металевих плівок/ Наукові праці. Серія: Фізика твердого тіла. - Суми: СумДУ, 1993. - С. 35 - 44
3. Одноворець Л.В., Проценко И.Е., Салтыкова А.И. Размерный эффект электропроводности в трехслойных пленочных системах на основе хрома и кобальта и

никеля и кобальта // ВАНТ. Серия: Ядерно-физические исследования. - 1994. - №1 (27). - С. 85 - 87

4. Проценко И.Е., Петренко С.В., Черноус А.Н., Одноворец Л.В. Элементный состав и диффузионные процессы в многослойных пленочных системах // ВАНТ. Серия: Ядерно-физические исследования. - 1994. - №1 (27). - С. 88 - 90

5. Проценко І.Ю., Одноворець Л.В., Шамо́ня В.Г. Електрофізичні властивості багатопарових плівок на основі перехідних металів // Вісник Сумського державного університету. - 1994, № 1. - С. 25 - 29

6. Protsenko I., Odnodvoretz L., Chornous A., Petrenko S. Size effect and processes of interdiffusion in multilayer films // Crystal Reseach and Technology. - 1995. - V. 30, № 8. - P. 1077 - 1081

7. Проценко І.Ю., Одноворець Л.В. Методичні вказівки до практичних та семінарських занять з курсу "Технологія та фізика тонких плівок" для студентів спеціальності 7.090804 денної форми навчання. - Суми: СумДУ, 1995. - 38 с.

8. Protsenko I., Chornous A., Odnodvoretz L. Tenzo-sensibility double-layer films of metallic and semiconductor layer / Materials of Simposia Polycrystalline Thin Films II - Structure, Texture, Properties and Application, V.403, MRS Fall Meeting, Boston: MA, 1995.-Abstract I084.

9. Проценко И.Е., Одноворец Л.В., Черноус А.Н. Тензочувствительность многослойных металлических пленок /Межотраслевой научно-практический семинар с участием зарубежных специалистов «Вакуумная металлизация»: Харьков. - 1996. - С. 114

10. Chornous A., Odnodvoretz L., Protzenko I. Size effect in temperature coefficient of resistance in multilayer film's structure of general type / Book of Abstract Second International Conference MPSL'96: Sumy. - 1996. - P. 75-76

## АННОТАЦИЯ

### Однодворец Л.В. Кинетические явления в многослойных пленочных конденсатах на основе хрома, кобальта, никеля и германия

Диссертация (рукопись) на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 - физика твердого тела, Сумский государственный университет, Сумы, 1996.

К защите представлены результаты исследований, изложенные в шести научных статьях по физике многослойных пленочных конденсатов на основе Cr, Co, Ni и Ge. Изучена размерная и температурная зависимость сопротивления, коэффициентов тензочувствительности. Проведена апробация теоретической модели Р.Диммиха и макроскопической модели для электропроводности и теории тензочувствительности многослойных пленок.

**Ключові слова:** багат шарові структури, розмірні явища, межа розділу шарів, процеси взаємної дифузії, електропровідність, тензочутливість.

### ABSTRAKT

Larysa V.Odnodvoretz. Kinetic Phenomena in Multilayer Films on Basic of Chromium, Cobalt, Nickel and Germanium.

The dissertation (manuscript) for the obtaining of the scientific degree of the candidate of science in the mathematics and physics corresponding to the speciality 01.04.07 - solid state physics, Sumy State University, Sumy, 1996.

There 6 scientific papers on physics of multilayer films in basic Cr, Co, Ni and Ge represented on defense. Temperature and size dependence of the resistance, temperature coefficient of resistance, coefficients of tenzosensibility were investigated. Theoretical model of R.Dimmich and macroscopical model for conductivity and theory tenzosensibility in multilayer films were checked.

Ця робота була частково підтримана Міжнародною Соросівською програмою підтримки освіти в галузі точних наук (ISSEP), грант № PSU062076.

Однодворець Лариса Валентинівна

**КІНЕТИЧНІ ЯВИЩА В БАГАТОШАРОВИХ  
ПЛІВКОВИХ КОНДЕНСАТАХ НА ОСНОВІ  
ХРОМУ, КОБАЛЬТУ, НІКЕЛЮ ТА ГЕРМАНІЮ**

Відповідальний за випуск: Проценко Іван Юхимович

---

Підп. до друку 09.12.97    Форм.60x74/16    Обл.-вид.арк. 1.1  
Тираж 80 прим.    Замовл. № 392    Безкоштовно

СумДУ, 244007, м.Суми, вул. Римського-Корсакова, 2

"Різоцентр" СумДУ, 244007, м.Суми,  
вул. Римського-Корсакова, 2

82.00.01

439334

АВ 36.439

ОДРЕДБАТА ЗА ПОВЕЧЕ БАЗИРАНЕ

КРИТИЧНИ ИЛИДИ И БАСАТОВИАРОВИХ  
И ПОВЕЧЕТАХ ИЛИДИСАТАХ НА ОСНОВИ  
КРИТИЧНИ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ

ОДРЕДБАТА ЗА ПОВЕЧЕ БАЗИРАНЕ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ

ОДРЕДБАТА ЗА ПОВЕЧЕ БАЗИРАНЕ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ

ОДРЕДБАТА ЗА ПОВЕЧЕ БАЗИРАНЕ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ ИЛИДИСАТАХ