

PACS numbers: 68.35.Ct, 68.55.Jk, 68.55.Nq, 68.60.Dv, 73.40.Jn, 73.61.At, 73.63.Bd

Структурно-фазовий стан, стабільність інтерфейсів та електрофізичні властивості двошарових плівкових систем

С. І. Проценко, І. В. Чешко, Д. В. Великодний, І. В. Пазуха,
Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко, О. В. Синашенко

*Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна*

Представлено узагальнені літературні дані та результати власних експериментальних досліджень структурно-фазового стану, стабільності інтерфейсів та електрофізичних властивостей (термічний коефіцієнт опору (ТКО) і коефіцієнт поздовжньої тензочутливості (КТ)) двошарових плівкових систем Cu/(Co, Ag або Au), Cu/(Cr або Fe) та Fe/Cr. Вибір вказаних систем пов'язаний із стабілізацією в них різних структурно-фазових станів: гранульованих твердих розчинів (систем на основі Cu і Co, Ag або Au), твердого розчину (Fe/Cr), двошарових систем із збереженням індивідуальності окремих шарів (біпластин) (систем Cu/Cr і Cu/Fe (до 700 К)). Експериментальні результати з ТКО і КТ задовільно або добре узгоджуються зі співвідношеннями для ТКО і КТ біпластини, плівкового стопу або двошарової системи із проміжним шаром твердого розчину біля інтерфейсу. Це служить додатковим аргументом на користь висновків про структурно-фазовий стан двошарової системи.

Представлены обобщенные литературные данные и результаты собственных экспериментальных исследований структурно-фазового состояния, стабильности интерфейсов и электрофизических свойств (термический коэффициент сопротивления (ТКС) и коэффициент продольной тензочувствительности (КТ)) двухслойных пленочных систем Cu/(Co, Ag или Au), Cu/(Cr или Fe) и Fe/Cr. Выбор указанных систем связан со стабилизацией в них различных структурно-фазовых состояний: гранулированных твердых растворов (систем на основе Cu и Co, Ag или Au), твердого раствора (Fe/Cr), двухслойных систем с сохранением индивидуальности отдельных слоев (биластин) (систем Cu/Cr и Cu/Fe (до 700 К)). Экспериментальные результаты для ТКС и КТ удовлетворительно или хорошо согласовываются с соотношениями для ТКС и КТ биластини, пленочного сплава или двухслойной системы с промежуточным слоем твердого раствора вблизи интерфейса. Это служит дополнительным аргументом в пользу выводов о структурно-фазовом состоянии двухслойной системы.

The generalized literary data and results of own experimental investigations of structural and phase state, stability of interfaces and electrophysical properties (thermal coefficient of resistance (TCR) and strain-gauge factor (SGF)) for two-layer film systems, Cu/(Co, Ag or Au), Cu/(Cr or Fe) and Fe/Cr, are presented. The choice of these systems is caused by stabilization of various structural and phase states in them such as granular solid solutions (systems based on Cu and Co, Ag or Au), solid solutions (Fe/Cr), two-layer systems with conservation of individuality of separate layers (biplate) (Cu/Cr and Cu/Fe systems (below 700 K)). Experimental results for TCR and SGF agree well or satisfactory with relationships for TCR and SGF of the biplate, film alloy or two-layer system with an intermediate layer of solid solution near the interface. It can serve as an additional argument in favour of conclusions concerning structural and phase state of two-layer system.

Ключові слова: інтерфейс, структурно-фазовий стан, твердий розчин, гранульований стоп, ТКР, коефіцієнт тензочутливості.

(Отримано 13 вересня 2007 р.)

1. ВСТУП

Підвищений інтерес до нанорозмірних і нанокристалічних матеріалів обумовлений багатьма причинами, одна із яких полягає в тому, що змінюючи концентрацію і розмір наночастинок, товщину окремих шарів та їх чергування, можна суттєво впливати на фізичні властивості, в тому числі електрофізичні та магнеторезистивні. Яскравим прикладом таких змін може бути явище гігантського магнетного опору (ГМО), яке спостерігається не тільки у мультишарах, але і в плівкових гранульованих стопах. Такі наноструктури з розподіленими в немагнетній матриці гранулями (розмір ~ 1 нм) магнетної фази формуються [1], як правило, шляхом одночасної конденсації двох компонент із обмеженою розчинністю в масивному стані (прикладом гранульованого плівкового стопу може служити модельна система на основі Co і Cu (більш детально див., наприклад, [2]). Однією із проблем нанокристалічного матеріалознавства є нестабільність плівкових систем у зв'язку із можливістю протікання рекристалізаційних процесів навіть при кімнатній температурі. Крім цього, інтенсивні процеси взаємної дифузії атомів можуть обумовити не тільки розмиття меж поділу окремих шарів (інтерфейсів), але і спричинити фазоутворення (в тому числі й стабілізацію гранульованого стопу) по всьому об'єму плівкової системи. Для мінімізації впливу цих факторів застосовуються різні експериментальні прийоми (конденсація бар'єрних шарів, низькотемпературне оброблення та ін.), в т.ч. й підбір окремих компонентів, які у відповідності з діаграмами стану мають обмежену об'ємну розчинність. Але останній фактор малоефективний у зв'язку із відо-

мим [3, 4] термодинамічним ефектом, згідно з яким у високодисперсних системах розчинність обмежено розчинних компонентів завжди збільшується у порівнянні з масивними зразками. Підтвердженням цього служать результати робіт [5–8]. Згідно [5], розчинність атомів Cu у плівці Ag має величину 15–17 ат. % при товщині плівкового зразка $d \approx 7$ нм і 6 ат. % при $d \approx 27$ нм, в той час як у масивних стопах гранична розчинність при $T \approx 300$ К має величину 0,35 ат. %. Аналогічні результати одержано в роботах [7, 8], згідно яких розчинність атомів Co у плівці Au складає 11 ат. %, а у плівці Ag — 8 ат. %. Автори [9–12] (див. також [2]) спостерігали утворення ГЦК твердого розчину (т.р.) атомів Co у плівці Cu (на думку [11] він повинен бути метастабільним, оскільки розчинність досягає величини 44 ат. %) із стабілізацією надлишкового Co у вигляді гранул гексагональної фази.

Крім цього термодинамічного фактору, велику роль у взаємній розчинності атомів відіграє режим термооброблення плівкових зразків, який спричиняє рекристалізацію. Автори [13] помітили, що при рекристалізації двошарових плівок Cu/Cr в об'ємі великих зерен Cu відбувається сегрегація («захоплення») атомів Cr до 20 ат. % (при об'ємній розчинності в масивних зразках $\approx 0,1\%$), хоча через слабку рекристалізацію зерен Cr зворотній процес не спостерігається. Аналогічну особливість рекристалізації спостерігали автори [14] на прикладі багатошарової системи, фрагментом якої виступала двошарова плівка Cr/Ni. Індивідуальність окремих шарів (тобто стабільність інтерфейсів) зберігається до $T_e \approx 670$ К, а при більш високих температурах відпалювання починається інтенсивна дифузія атомів Cr у плівку Ni, а потім і перемішування атомів.

2. СТАБІЛЬНІСТЬ ІНТЕРФЕЙСІВ ТА ІНТЕРФЕЙСНЕ РОЗСІЯННЯ ЕЛЕКТРОНІВ

Таким чином, із наведених даних можна зробити висновок, що характер діаграм стану масивних зразків не завжди може бути критерієм підбору компонентів багатошарових плівок із стабільними і якісними (мала шерсткість) інтерфейсами. Автори [15] детально вивчали питання про структуру інтерфейсів в металевих гетероструктурах Fe/Nb/Fe, Fe/V/Fe та Fe/Pb/Fe, використовуючи методи малокутової рентгенографії і вимірювання намагнетованості насичення. Було встановлено, що найвища якість інтерфейсів (шерсткість $\sigma \approx 0,3$ нм) має місце в системі Fe/V/Fe, компоненти якої мають необмежену розчинність (утворюють безперервний ряд т.р.). Відмітимо, що у роботі [16] методом вторинно-йонної мас-спектрометрії спостерігався різкий перехід від шару Cr до Fe у плівковій системі Fe/Cr/П (П — підложжя) за рахунок обмеженої розчинності атомів Cr у плівці Fe і практично необмеженої зворотньої роз-

чинності. Цим і можна пояснити, що у цих двошарових плівках при послідовній конденсації утворюється ОЦК т.р. (α -Fe, Cr) із параметром $a = 0,289$ нм [17]. У випадку системи Fe/Nb/Fe, компоненти якої мають обмежену розчинність і утворюють дві інтерметалевих сполуки, якість інтерфейсів виявилася низькою ($\sigma \approx 0,6$ нм). Аналогічні результати одержано авторами [18] на прикладі плівкової системи Ag/Co, компоненти якої мають обмежену розчинність [8] (шерсткість інтерфейсів $\sigma \approx 0,5-4,0$ нм). При повній відсутності розчинності, як це має місце у системі Fe/Pb/Fe, можна одержати різкий перехід від одного до другого шару, але геометрична шерсткість інтерфейсів дуже значна. Очевидно подібні результати можна одержати і у випадку систем Fe/Cu [19] та Co/W [20].

Як і у випадку систем на основі Fe і V або Fe і Cr, у мультишарах Fe/W добре зберігається індивідуальність окремих шарів [20].

Питання про стабільність інтерфейсів та розсіяння на них носіїв електричного струму надзвичайно важливе з точки зору коректного трактування результатів дослідження електрофізичних (питомий опір, термічний коефіцієнт опору (ТКО), тензочутливість) і магнетотранспортних властивостей та апробації різних теоретичних моделей [21] для цих явищ, які будуються, виходячи з моделю багатшарової плівкової системи як паралельного з'єднання окремих шарів. У попередніх наших роботах [22, 23] було здійснено оцінку впливу інтерфейсного розсіяння електронів на величину питомого опору і ТКО [22] та на величину коефіцієнта тензочутливості (γ_i) [23]. У першому випадку суть методики ґрунтується на високоточному вимірюванні питомого опору або ТКО двох металевих зразків однакової товщини, один із яких є одношаровою плівкою, а другий — двошаровою плівковою системою, в якій штучно утворена внутрішня межа поділу шляхом зупинки конденсації плівки на певний час. Методика оцінки внеску інтерфейсного розсіяння у величину питомого опору чи ТКО вимагає жорсткого виконання певних умов: високоточне вимірювання опору і товщини, сталі значення швидкості конденсації, близькість величини концентрації та енергії активації заліковування дефектів кристалічної будови, які одержуються шляхом побудови спектрів дефектів за методикою Венда, ідентичність розподілу кристалітів за розмірами і т.д. (більш детально див. [22]). Було одержано, що у випадку плівок Cu товщиною 60–90 нм інтерфейсне розсіяння електронів призводить до збільшення питомого опору на 12–21% і до зменшення ТКО на 9–20%. У роботі [23] були проведені аналогічні дослідження впливу інтерфейсного розсіяння на величину γ_i . На прикладі тришарової плівкової системи Cu/Sc/Cr/П було одержано, що γ_i одношарових плівок, які входять як компоненти у тришарову систему, у декілька разів менше за γ_i усієї плівкової системи. Так, зокрема, для системи Cu(120)/Sc(70)/Cr(75)/П $\gamma_i = 7,7$, а відношення $\gamma_i^{Me}/\gamma_i \approx 0,16$ (Cr),

0,10 (Sc) та 0,27 (Cu). Кількісними характеристиками інтерфейсного розсіювання електронів є опір (R_{inf}) або питомий опір (ρ_{inf}), який пов'язаний із цим механізмом розсіювання, та коефіцієнт проходження електроном інтерфейсу (Q). У зв'язку з важливістю цієї проблеми її вивченню присвячена велика кількість робіт (огляд деяких із них представлений у нашій роботі [24]). Для одержання співвідношення для R_{inf} автори [25] використали напівкласичне Больцманнове наближення в геометрії, коли струм перпендикулярний поверхні інтерфейсу, в той час як автори [26] — напівфеноменологічний підхід для оцінки ρ_{inf} , скориставшись співвідношенням для питомої провідності двошарової плівки, яке запропоноване авторами роботи [27]. На прикладі мультишарів Ti/Al було встановлено, що при $k = d/\lambda_0$ (d — товщина шару, λ_0 — середня довжина вільного пробігу електронів (СДВП) в ньому) від 0,1 до 1,0 внесок ρ_{inf} у загальний питомий опір від 3 до 5 разів менший у порівнянні із внеском зерномежового або поверхневого розсіювання електронів. Майже однаковий внесок у питомий опір ці три механізми розсіювання дають лише при $k \geq 9$, тобто при великих товщинах (при $T \approx \text{const}$) або при високих температурах (при $d \approx \text{const}$).

Робота [28] є однією з перших, в якій здійснена вдала спроба вивчити інтерфейсне розсіювання електронів у тришарових полікристалічних плівках Au/X/Au ($X = \text{Fe}, \text{Co}$ і Ni). В основу аналізу покладено відомий теоретичний модель для ТКО двошарових плівок Р. Дімміха у граничному випадку, коли товщина X -шару прямує до нуля. Особливість підходу автора [28] полягає в тому, що на основі залежності питомої провідності тришарової плівки від товщини проміжного шару визначається сумарна величина ($p + Q$), де p — коефіцієнт дзеркальності зовнішніх поверхонь плівки. Причому, цю суму можна визначити як у Фуксовім, так і в Маядасовім наближенні (більш детально див. [24]). В останньому випадку одержуються більш коректні величини ($p + Q$): 0,6 (інтерфейс Au/Fe), 0,2 (Au/Co) і 0,5 (Au/Ni). Ми скористалися методикою [28] для знаходження ($p + Q$) у випадку системи Fe/Cu/Fe [29] і одержали величину 0,5–0,6, що узгоджується із [28]. Враховуючи, що у полікристалічних плівках коефіцієнт дзеркальності $p \sim 0,1$, можна оцінити величину Q для вказаних вище інтерфейсів: 0,5 (Au/Fe), 0,1 (Au/Co), 0,4 (Au/Ni) та 0,4–0,5 (Fe/Cu). Використовуючи результати роботи [30], в якій приведені розрахунки коефіцієнтів проходження межі зерен (r) в плівках Cr, Co і Cu за допомогою моделю ізотропного розсіювання та тривимірного моделю, можна порівняти величини Q і r між собою. Так, в залежності від середнього розміру зерна, величина r лежить в межах 0,85–0,95 (Cr), 0,56–0,87 (Co) і 0,42–0,81 (Cu). Таким чином, порівняння величини Q і r призводить до висновку, що структура інтерфейсів і меж зерен має різний характер з точки зору проходження електронів через них.

Підсумовуючи сказане вище, мету даної роботи можна сформулювати таким чином: проведення комплексних досліджень кристалічної структури, процесів фазоутворення і електрофізичних властивостей (ТКО і коефіцієнт тензочутливості) двошарових плівкових систем (Cu/(Co, Ag або Au), Fe/Cr та Cu/(Cr або Fe)) і порівняння їх із розрахунковими на основі різних феноменологічних теоретичних моделей, що дозволить зробити висновок про стабільність або розмиття інтерфейсів в результаті збереження індивідуальності окремих шарів або утворення т.р. біля інтерфейсу чи по всьому об'єму плівкової системи.

3. СТРУКТУРНО-ФАЗОВИЙ СТАН ДВОШАРОВИХ ПЛІВКОВИХ СИСТЕМ

3.1. Плівкові системи, в яких стабілізуються тверді розчини

Гранульовані стопи (ГС) постійно знаходяться в полі зору дослідників завдяки спостереженню в них ефекту ГМО. Їх зазвичай одержують шляхом одночасної конденсації магнетної і немагнетної компонент з обмеженою взаємною розчинністю. До найбільш вивчених відносяться $\text{Co}_x\text{Cu}_{1-x}$, $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$, $(\text{NiFe})_x\text{Ag}_{1-x}$ та ін. У роботах [31–34] представлені результати дослідження ГМО, магнетотранспортних та ряду інших властивостей стопу $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$. Було одержано [34], що вже при кімнатній температурі в наногранулярній структурі Co/Ag спостерігається відносно збільшення опору в зовнішньому магнетному полі на 40%, причому величина ГМО та інших ефектів до великої міри залежить від концентрації c атомів Co.

У роботі [7] представлено комплексні дослідження мікроструктури і магнетоопору (МО) стопа $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$. Було одержано, що максимальне значення МО досягається при $c = 23$ ат. % Co. Згідно [35], в спин-клапанній структурі (Ni–Fe)/Au/Co/Au величина ГМО залежить від товщини шару Co і досягає максимального значення при $d_{\text{Co}} \approx 0,5\text{--}0,6$ нм, в той час як у гранульованому стопі при $c \approx 25\text{--}35$ ат. % Co, що якісно узгоджується з [7]. Ряд авторів (див., наприклад, [36]) спостерігали зменшення величини ГМО при збільшенні температури відпалювання, що спричиняє збільшення середнього розміру гранул Co. Важливо підкреслити, що в роботі [36] плівкові ГС одержувалися не шляхом одночасної конденсації компонент, а при зменшенні товщини шарів Cu і Co або в процесі високотемпературного відпалювання. Відмітимо, що у всіх наших дослідженнях [10, 12, 16, 17, 23, 25, 29] ми застосовували метод послідовної конденсації шарів з наступною, як і в [36], термообробкою. Таким методом ми одержували гранульовані, — (Cu, Co), (Ag, Co) та (Au, Co), — або негранульовані, — (α -Fe, Cr), — тверді розчини.

Для конденсації плівок використовувалася високовакуумна

установка на основі магнеторозрядного насосу НМДО–160 (тиск залишкових газів $\sim 10^{-5}$ Па). Для проведення електроннографічних та електронно-мікроскопічних (прилад ПЕМ–125К), мас-спектрометричних (прилад МС 7201М) та досліджень методом електроопору використовувалися підложжя (П) із плівок вуглецю, ситалу та скла відповідно. Товщина одно- і двошарових плівок вимірювалися високоточним методом кварцового резонатора з точністю $\pm 0,1$ нм. Термостабілізація плівкових зразків здійснювалася за схемою «нагрівання–охолодження» із швидкістю 2–3 К/хв. в інтервалі температур 300–700 К. Структурні дослідження проводилися після охолодження зразків до кімнатної температури.

Спільним для одношарових плівок, як компонентів двошарових, є те, що вони мають тип та параметри кристалічної ґратниці, які відповідають масивним зразкам (ГЦК — Au, Ag та Cu, ОЦК — Cr і α -Fe та ГЦП — α -Co), причому плівки α -Fe і α -Co — нанокристалічні, а Au, Ag і Cu — крупнокристалічні. При термообробці фіксуються особливості, які полягають у тому, що термовідпалювання плівок Au і Ag навіть до невисоких температур ($T_e \approx 600$ К) обумовлює інтенсивні рекристалізаційні процеси (середній розмір зерен збільшується приблизно у 5–6 разів), в той час як у плівках Cr і α -Fe рекристалізація не відбувається. У невідпалених плівках ГЦП-Co утворюється велика кількість дефектів пакування, які є областями ГЦК-Co, що і фіксується на електроннограмах у вигляді двох додаткових ліній з міжплощинними відстанями $d_{111} = 2,04$ нм і $d_{200} = 1,8$ нм. При відпалюванні дефекти пакування заліковуються, і, як результат цього, вказані лінії зникають.

Вивчення структурно-фазового стану (рис.1) двошарових плівок дозволяє зробити висновок стосовно можливої стабільності інтерфейсів, впливу на це дифузійних процесів, та спрогнозувати фазові перетворення на випадок багатошарової плівкової системи (мультишару). Аналіз електроннографічних даних свідчить про те, що двошарові зразки у вихідному стані двофазні (Au/Co, Au/Ag), тобто на дифракційних картинах спостерігається система кілець від обох шарів, або однофазні у вигляді т.р. (Cu, Co) та (α -Fe, Cr). Цей висновок корелює із даними про взаємну дифузію атомів, одержаних методом ВІМС (рис.2).

Однак, у плівкових системах Co/Cu, Co/Ag та Co/Au, що піддавалися термостабілізації в інтервалі температур 300–700 К, фазовий склад гетерогенний, оскільки в них відбувається утворення ГЦК-т.р. (Cu, Co), (Ag, Co) і (Au, Co), в об'ємі яких формуються наногранулі ГЦП-Co розміром 10–15 нм (рис. 1, e), що дають свої дифракційні відбиття у вигляді екстрарефлексів (рис.1, e, вставка).

Виходячи із характеру діаграм стану (Cu–Co), (Ag–Co) та (Au–Co) для масивних зразків, ми приходимо до висновку, як і автори [11, 37], про метастабільний характер плівкових т.р. Такий висно-

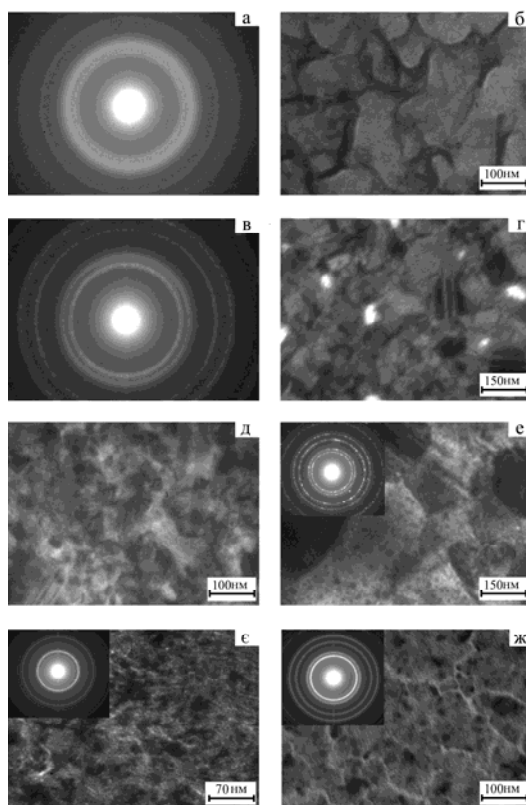


Рис. 1. Кристалічна структура двошарових плівок Au(20)/Co(20)/П (*а–г*), Co(20)/Ag(60)/П (*д, е*), Cr(30)/Fe(30)/П (*е*) та Co(5)/Cu(10)/П (*ж*) у невідпаленім (*а, в, д, е*) та відпаленім до $T_v \cong 600 - 650 \text{ K}$ (*б, г, е, ж*) станах. У дужках вказана товщина в нм.

вок у випадку плівкової системи Co/Cu обґрунтовувався нами в одній із попередніх робіт [38] тією обставиною, що на електроннограмах від відпалених, а потім охолоджених до кімнатної температури зразках фіксуються лінії ГЦК-т.р.(Cu, Co), ГЦК-Cu та, в залежності від загальної концентрації атомів Co, слабкі лінії або екстрарефлекси від ГЦП-Co. Це можна трактувати як частковий розпад метастабільного т.р. (Cu, Co), в результаті чого на основі ґрануль формуються кристаліти ГЦП-Co із атомів, які були розчинені в матриці Cu, а також надлишкових атомів, які локалізувалися на межах зерен у квазіаморфнім стані.

Наявність або відсутність ліній від ГЦК-Cu повністю залежить від товщини плівки Cu, тобто при відносно малих концентраціях атомів Co можуть існувати кристаліти Cu, які будуть суттєво збуднені на ці атоми (рис.1, *ж* відповідає такому співвідношенню кон-

центрацій атомів Co і Cu, коли кристаліти Cu відсутні). Крім цього зауважимо, що у зразках Co/Cu, які пройшли високотемпературне відпалювання при $T_v = 700\text{--}900\text{ K}$, на електронограмах поряд із лініями ГЦП-Co спостерігаються також лінії ГЦК-Co [38].

Приклад розрахунку електронограми від плівкової системи Au/Co/П представлено в табл. 1 (для систем Co/Cu і Co/Ag результати розрахунків мають аналогічний характер). Наявність слабких ліній від ГЦП-Co свідчить про стабілізацію гранульованого стану. На основі таких результатів нами були одержані узагальнені залежності параметра ґратниці т.р. від загальної концентрації атомів Co у плівковій системі (рис. 3), яка визначається за співвідношенням

$$C_i = \frac{D_i d_i \mu_i^{-1}}{D_1 d_1 \mu_1^{-1} + D_2 d_2 \mu_2^{-1}}, \quad (1)$$

де D_i та μ_i — густина і молярна маса i -го шару ($i = 1, 2$).

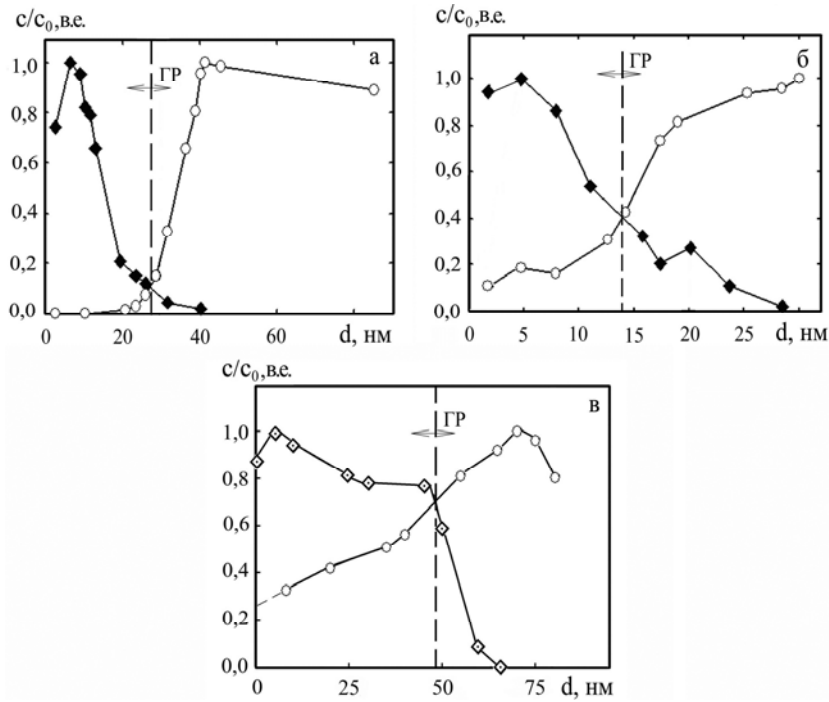


Рис. 2. Дифузійні профілі відносної концентрації атомів для плівкових систем Ag(30)/Co(30)/П (а), Ag(20)/Co(10)/П (б) та Au(50)/Co(40)/П (в) до (а) та після (б, в) термообробки до $T_v \cong 700\text{ K}$: \circ — Co, \blacklozenge — Ag, \blacklozenge — Au. МП — межа поділу шарів, c_0 відповідає максимальному виходу вторинних йонів на межі вакуум/верхній шар або нижній шар/П.

ТАБЛИЦЯ 1. Розшифрування дифракційної картини від термостабілізованої плівкової системи Au(50)/Co(40)/П.

I , в.о.	d , нм	hkl	Фаза	Параметер ґратниці т.р. (Au, Co), нм
1 С.	0,237	111	т.р.	0,410
2 ср.	0,206	200	т.р.	0,412
3 сл.	0,146	10.2	ГЦК-Со	—
4 ср.	0,145	220	т.р.	0,410
5 сл.	0,124	311	т.р.	0,412
6 сл.	0,107	20.1	ГЦК-Со	—
7 сл.	0,094	331	т.р.	0,409

С. — сильна; ср. — середня; сл. — слабка \bar{a} (Au, Co) = 0,411 нм; \bar{a} (Au) = 0,417 нм

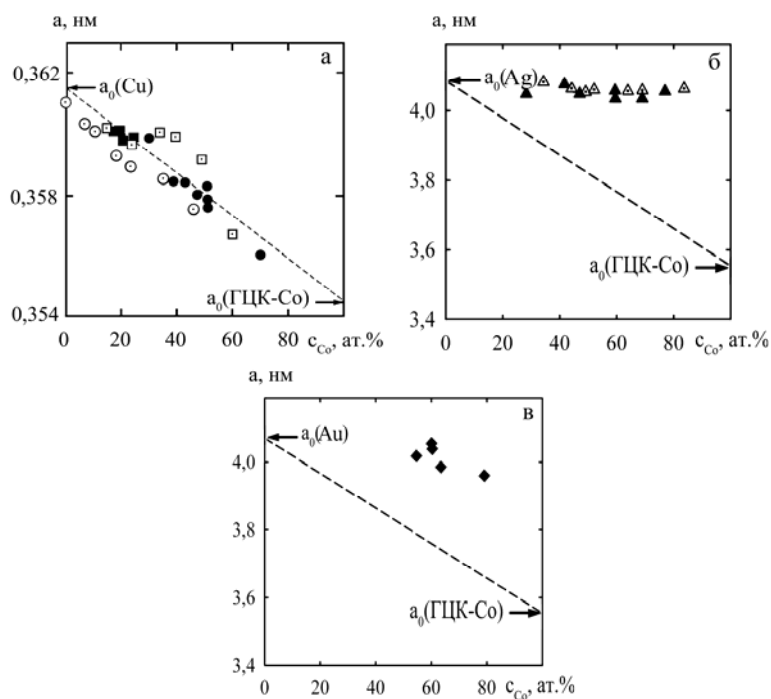


Рис. 3. Залежність параметра ґратниці ГЦК-т.р. (Cu, Co) (а), (Cu, Ag) (б) і (Cu, Au) (в) від концентрації атомів Со у двошаровій системі: ●, ■, ▲ і ◆ — наші дані та □ — дані [11] (залежність від загальної концентрації атомів Со у двошаровій системі); ○ — дані [9] і Δ — дані [8] (залежність від концентрації атомів Со у т.р.). a_0 — параметер ґратниці масивних металів. ■ — результати, одержані методом рентгенографії.

У випадку системи Co/Cu залежність добре узгоджується із правилом Вегарда, а величини параметра ґратниці — із даними [9] (зразки одержувалися при одночасній конденсації атомів Co і Cu і будувалася залежність параметра ґратниці \bar{a} від c_{Co} в т.р. на відміну від наших даних і роботи [38]).

Як відмічалось раніше, авторами роботи [7, 8, 11] було встановлено, що максимальна концентрація розчинених атомів Co складає 8 ат. % (в матриці Ag), 11 ат. % (в Au) і 44 ат. % (в Cu), що складає значно більші величини у порівнянні з масивними зразками. Це дає підставу стверджувати, що плівкові т.р. перенасичені, і у випадку системи Co/Cu атоми мають практично необмежену розчинність. Цим можна пояснити різний характер залежностей \bar{a} від c_{Co} : мова йде про відповідність правилу Вегарда і узгодження наших і роботи [11] результатів, з одного боку, та даних [9] — з іншого боку, тобто збіг загальної концентрації c_{Co} у плівковій системі або c_{Co} в т.р. можливий лише при необмеженій розчинності атомів. У випадку обмеженої розчинності атомів Co у плівках Ag чи Au, параметер ґратниці т.р. практично не залежить у широкому інтервалі від загальної концентрації (до 80 ат. % Co). Оскільки підбір товщини плівок відповідає c_{Co} в межах 40–80 ат. %, то присутність дифракційних відбиттів лише від ґрануль ГЦП-Co говорить про те, що залишок атомів Co акомодується межами зерен т.р. (Me, Co) і вони перебувають у квазіаморфнім стані.

Електронно-мікроскопічні дослідження двошарових плівок на основі α -Fe і Cr вказують на те, що в них утворюється т.р. (α -Fe, Cr) уже на стадії конденсації верхнього шару (рис.1, ϵ , табл. 2), хоча згідно із діаграмами стану концентраційно-температурні інтервали конденсації відповідають евтектичному стану. Причину утворення т.р. ми пов'язуємо із перегріванням плівкової системи в цілому

ТАБЛИЦЯ 2. Розшифрування дифракційної картини від плівкової системи Cr(30)/Fe(30)/П.

I , в.о.	d , нм	hkl	фаза	Параметер ґратниці т.р. (α -Fe, Cr), нм
1 Д.С.	0,205	110	т.р. (α -Fe, Cr)	0,289
2 ср.	0,145	200	-//-	0,290
3 ср.	0,118	211	-//-	0,289
4 ср.	0,102	220	-//-	0,288
5 сл.	0,091	310	-//-	0,288
6 сл.	0,077	321	-//-	0,289

Д.С. — дуже сильна;
ср. — середня;
сл. — слабка

\bar{a} (α -Fe, Cr) = 0,289 нм
 \bar{a} (α -Fe) = 0,287 нм
 \bar{a} (Cr) = 0,288 нм

вище температури евтектики при осадженні верхнього шару. Поряд з цим фактором велику роль відіграє конденсаційно-стимульована зерномежова дифузія (більш детально див. [39]).

Не дивлячись на те, що нами не спостерігалось утворення гранульованого стану атомів Fe в матриці Cr (на цьому акцентують також увагу автори [40]), необхідно зауважити, що при формуванні плівкових систем чи мультишарів в області евтектичного стану можливе утворення [41] вторинних кристалітів (грануль) (залежно від концентрації це можуть бути як гранули α -Fe, так і Cr) не тільки на межах, але і в об'ємі кристалітів материнської фази.

3.2. Двошарові плівкові системи

До числа таких систем, які вивчалися нами, відносяться Cu/Cr і Cu/Fe.

Згідно наших, раніше одержаних даних [42], двошарові плівкові системи на основі Cu і Cr можна розглядати як біпластини, хоча має місце певне перемішування елементів (за даними ОЕС [39] довжина дифузійного пробігу атомів Cr у шар Cu або Cu у шар Cr складає відповідно 7,0 і 3,5 нм) завдяки зерномежовій конденсаційно-стимульованій дифузії. Оскільки питання про відсутність фазоутворення у системі Cr/Cu стає принциповим при апробації теоретичних моделей (розд. 4), нами були виконані додаткові дифракційні (електронно- і рентгенографічні) дослідження фазового складу невідпалених і відпалених до $T_e \approx 650$ К плівкових систем: Cr(20)/Cu(30)/П, Cr(30)/Cu(30)/П, Cr(20)/Cu(40)/П, Cr(40)/Cu(30)/П, Cr(80)/Cu(20)/П.

Проведення рентгенографічних досліджень за методикою Бреґґа–Бретано здійснювалось на установці X'Pert Pro Guard Systems (Карлів університет, м. Прага) при використанні мідного K_α -випромінення. На цій же установці вивчалася якість інтерфейсів Cr/Cu в режимі малокутової дифракції (рефлектометрія) та процеси утворення т.р. (Cu, Co) у плівках Co/Cu (останні дослідження повністю відповідають електроннографічним даним, представленим у підрозд. 3.1).

Було одержано, що плівки мають двофазний склад, причому параметри ґратниці Cu і Cr дещо зменшені у порівнянні із a_0 для масивних зразків: $a \approx 0,2861$ – $0,2884$ нм при $a_0 = 0,2884$ нм (Cr) та $a \approx 0,3600$ – $0,36114$ нм при $a_0 = 0,3615$ нм. Було помічено, що дана двошарова система нестабільна і протягом 2 місяців шар Cr поступово окислюється до складу Cr_2O_3 (з'являються найбільш інтенсивні лінії Cr_2O_3 $d_{311} = 0,2518$, $d_{400} = 0,2080$, $d_{440} = 0,1480$ нм, які на дифракційних картинах дуже розмиті і мають малу інтенсивність).

Вивчення якості інтерфейсів було виконано на дво-, чотири- і восьмишарових зразках Cr(30)/Cu(57)/SiO₂, Cr(65)/Cu(30)/SiO₂, [Cr(30)/Cu(30)]₂/SiO₂ та [Cr(15)/Cu(15)]₄/SiO₂ із урахуванням реко-

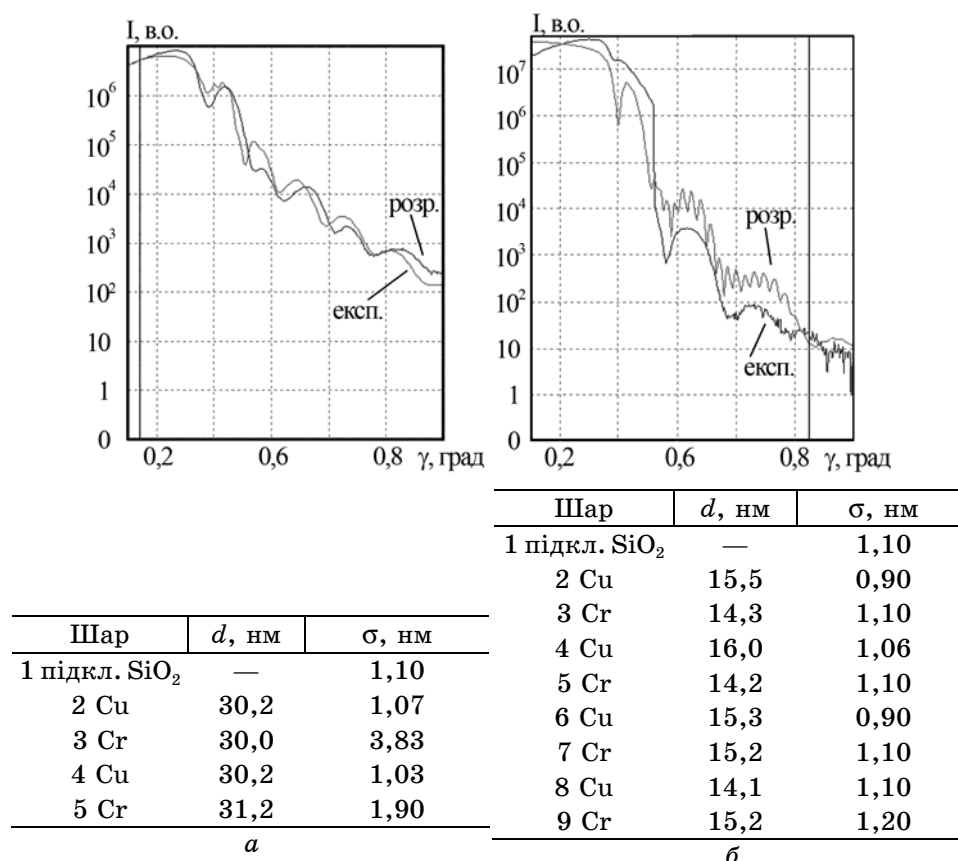


Рис. 4. Рентгенівські рефлектометричні залежності для плівкових систем $[\text{Cr}(30)/\text{Cu}(30)]_2/\text{SiO}_2$ (*a*) та $[\text{Cr}(15)/\text{Cu}(15)]_4/\text{SiO}_2$ (*б*).

мендацій [18, 43] (двошарова система Ag/Co) і [44] (мультишари Cu/Mg/Cu). Рисунок 4 ілюструє приклади рефлектометричних кривих і результати розрахунків товщини і шерсткості окремих шарів. Одержані величини σ узгоджуються із результатами [18, 43] ($\sigma \approx 1,0\text{--}1,5$ при $T_e \leq 270$ К і $1,5\text{--}4,5$ нм при $T_e \approx 270\text{--}530$ К). Відмітимо, що автори [44] методом «cross-section SEM» спостерігали розмиття інтерфейсів на межі Cu/Mg при відпалюванні мультишарів.

Для експериментальної перевірки можливого утворення плівкового ГС на основі Fe і Cu при термообробці нами були проведені дослідження фазового складу і електрофізичних властивостей таких двошарових плівок: Fe(30)/Cu(30)/П та Fe(40)/Cu(40)/П (загальна концентрація $c_{\text{Fe}} \approx 56$ ат.% Fe); Fe(50)/Cu(30)/П ($c_{\text{Fe}} \approx 68$ ат.% Fe) і Fe(55)/Cu(20)/П ($c_{\text{Fe}} \approx 77,5$ ат.% Fe).

У роботі [24] нами відмічалось, що діаграма стану (Cu–Fe) є евте-

критичного типу і повністю аналогічна діаграмі на основі компонентів Cu і Mo, із яких утворюється псевдостоп. У зв'язку з цим і стоп (Cu–Fe) у масивних і електроосаджених плівкових зразках [45–47] інколи називають псевдостопом. У деяких штучних умовах, наприклад при механічній стопленні Fe і Cu [48], відбувається утворення перенасиченого т.р. (Cu, Fe) або стабілізація гранульованого стану [45]. Узагальнюючи результати робіт [46, 47, 49, 50] можна дати таку структурну характеристику стопу (Cu–Fe). Згідно [49, 51] він має ГЦК-ґратницю з параметром $a = 0,363$ нм, що дуже близько до $a_0 = 0,361$ нм (Cu) і значно відрізняється від $a_0 = 0,287$ нм (α -Fe). Оскільки це — розбавлений т.р., то він має гранулярну структуру (ґранулі α -Fe реалізуються у матриці т.р. (Cu, α -Fe) як у масивному [47, 49, 51], так і в плівковому стані [45, 50, 52]). Про це свідчать також дані мікроскопії і рентгенівських досліджень масивних і плівкових стопів [49, 50]. Відмітимо, що ГС зберігається при відпалюванні до 1100 К, хоча при високих температурах зразки мають складний гетерогенний склад: псевдостоп (Cu–Fe), ОЦК- та ГЦК-Fe, ГЦК-Cu та сліди FeO і Fe₃O₄.

Електронно-мікроскопічні і дифракційні дослідження (рис.5 і табл. 3) вказують на те, що двошарові плівки Fe/Cu/П як до, так і до великої міри після відпалювання до 650–700 К мають двофазний склад. Деяка неоднозначність трактовки фазового складу на основі електронографічних даних пов'язана із рядом факторів:

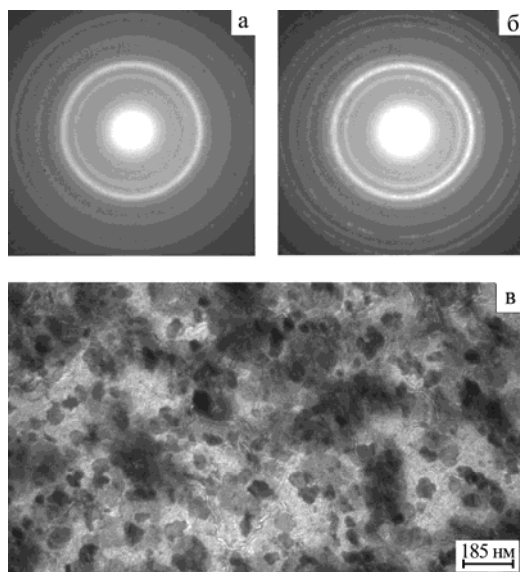


Рис. 5. Кристалічна структура двошарової плівкової системи Fe(30)/Cu(30)/П до (а) та після (б, в) відпалювання до 700 К.

з'єднання двох чи трьох шарів (це загальноприйнятий підхід (див., наприклад, [21]), хоча у зв'язку із відхиленням від умови паралельності, за нашими експериментальними даними, допускається похибка $\pm 15\%$). Виходячи із співвідношень для питомого опору (ρ) дво- чи тришарової системи

$$\rho = \frac{\rho_1 \rho_2 (d_1 + d_2)}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \text{ та } \rho = \frac{\rho_1 \rho_2 \rho_3 (d_1 + d_2 + d_3)}{\rho_2 \rho_3 d_1 + \rho_1 \rho_3 d_2 + \rho_1 \rho_2 d_3},$$

означень для β і γ_i

$$\beta = \frac{d \ln \rho}{dT} \text{ і } \gamma_i^p = \frac{d \ln \rho}{d \ln l},$$

де l — довжина плівки, $d \ln l = dl/l = d\varepsilon_i$ — деформація, та формули для питомого опору стопу

$$\rho = \rho_1 c_1 + \rho_2 c_2,$$

одержуємо необхідні співвідношення для ТКО біпластини, плівкового стопу і двошарової системи із проміжним шаром відповідно:

$$\begin{aligned} \beta &= \beta_1 + \beta_2 + \frac{d_1 \alpha_1 + d_2 \alpha_2}{d_1 + d_2} - \frac{\beta_1 \rho_1 d_2 + \rho_1 d_2 \alpha_2 + \beta_2 \rho_2 d_1 + \rho_2 d_1 \alpha_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \cong \\ &\cong \beta_1 + \beta_2 + \frac{\beta_1 \rho_1 d_2 + \beta_2 \rho_2 d_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1}, \end{aligned} \quad (2)$$

де $\alpha_i = d \ln l_i / dT$ — термічний коефіцієнт лінійного розширення;

$$\beta_c \cong \frac{\beta_1}{1 + \frac{c_2 \rho_2}{c_1 \rho_1}} + \frac{\beta_2}{1 + \frac{c_1 \rho_1}{c_2 \rho_2}}, \quad (3)$$

де c_i можна розрахувати за співвідношенням (1).

Для одержання останнього співвідношення ми скористаємося геометричним моделлю двошарової системи із проміжним шаром стопу (рис.6). За аналогією з (2) одержуємо таке співвідношення:

$$\begin{aligned} \beta &\cong \beta_1 + \beta_c + \beta_2 - \frac{(d_1 - d_1'')(\beta_c \rho_c \rho_2 + \beta_2 \rho_c \rho_2) + (d_2 - d_2'')(\beta_c \rho_c \rho_1 + \beta_1 \rho_c \rho_1)}{(d_1 - d_1'') \rho_c \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_c \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} + \\ &+ \frac{(d_1'' + d_2'')(\beta_1 \rho_1 \rho_2 + \beta_2 \rho_1 \rho_2)}{(d_1 - d_1'') \rho_c \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_c \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2}, \end{aligned} \quad (4)$$

в чисельнику якого знехтували доданками, пропорційними α , тобто

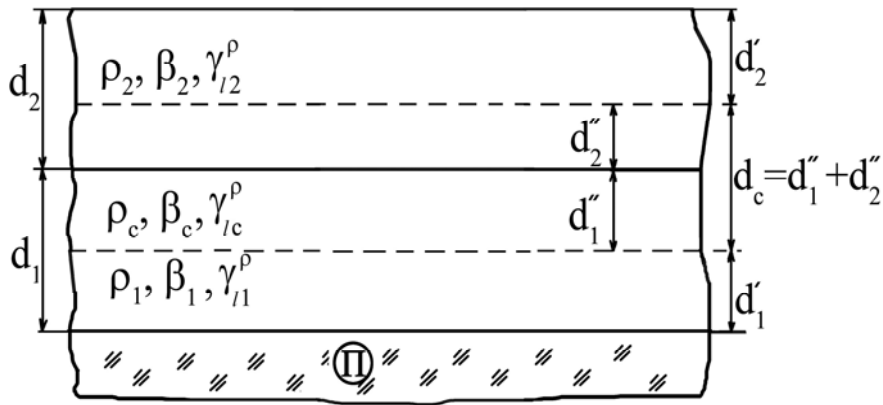


Рис. 6. Геометричний модель двошарової плівкової системи із проміжним шаром стопу (т.р.) біля інтерфейсу.

доданками типу $d_i \alpha_i \rho_i \rho_k$. Застосовуючи наступні позначення

$$A_1 = (d_1 - d_1'') \rho_c \rho_2, \quad A_2 = (d_2 - d_2'') \rho_c \rho_1 \quad \text{та} \quad A_3 = (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2,$$

співвідношення (4) можна спростити до виду:

$$\beta \cong \beta_1 + \beta_c + \beta_2 - \frac{A_1(\beta_c + \beta_2) + A_2(\beta_c + \beta_1) + A_3(\beta_1 + \beta_2)}{A_1 + A_2 + A_3}, \quad (4')$$

який зручний для апробації.

Для коефіцієнта γ_i^p нами одержано аналогічні співвідношення:

$$\begin{aligned} \gamma_i^p &= \gamma_{i1}^p + \gamma_{i2}^p - \frac{d_1 \mu_1 + d_2 \mu_2}{d_1 + d_2} - \frac{\gamma_{i1}^p \rho_1 d_2 - \rho_1 d_2 \mu_2 + \gamma_{i2}^p \rho_2 d_1 - \rho_2 d_1 \mu_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \cong \\ &\cong \gamma_{i1}^p + \gamma_{i2}^p - \frac{\gamma_{i1}^p \rho_1 d_2 + \gamma_{i2}^p \rho_2 d_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1}, \end{aligned} \quad (5)$$

де μ_i — коефіцієнт Пуассона i -го шару;

$$\begin{aligned} \gamma_i^p &= \frac{\gamma_{i1}^p \rho_1 c_1 + \rho_1 c_1 \gamma_{i1}^c + \gamma_{i2}^p \rho_2 c_2 + \rho_2 c_2 \gamma_{i2}^c}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} \cong \\ &\cong \frac{\gamma_{i1}^p \rho_1 c_1 + \gamma_{i2}^p \rho_2 c_2}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} = \frac{\gamma_{i1}^p}{1 + \frac{c_2 \rho_2}{c_1 \rho_1}} + \frac{\gamma_{i2}^p}{1 + \frac{c_1 \rho_1}{c_2 \rho_2}}, \end{aligned} \quad (6)$$

де $\gamma_{ii}^c = \frac{d \ln c_i}{d \ln l}$ — відносна зміна концентрації i -го елемента при де-

формації.

По аналогії із (4) і (4') одержуємо співвідношення для γ_l^p для третього типу системи:

$$\begin{aligned} \gamma_l^p &\cong \gamma_{l1}^p + \gamma_{lc}^p + \gamma_{l2}^p - \frac{(d_1 - d_1'')(\gamma_{lc}^p \rho_c \rho_2 + \gamma_{l2}^p \rho_c \rho_2) + (d_2 - d_2'')(\gamma_{lc}^p \rho_c \rho_1 + \gamma_{l1}^p \rho_c \rho_1)}{(d_1 - d_1'') \rho_c \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_c \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} + \\ &\quad + \frac{(d_1'' + d_2'')(\gamma_{l1}^p \rho_1 \rho_2 + \gamma_{l2}^p \rho_1 \rho_2)}{(d_1 - d_1'') \rho_c \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_c \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} = \\ &= \gamma_{l1}^p + \gamma_{lc}^p + \gamma_{l2}^p - \frac{A_1(\gamma_{lc}^p + \gamma_{l2}^p) + A_2(\gamma_{lc}^p + \gamma_{l1}^p) + A_3(\gamma_{l1}^p + \gamma_{l2}^p)}{A_1 + A_2 + A_3}. \end{aligned} \quad (7)$$

Відмітимо, що між γ_l і експериментальними величинами коефіцієнта тензочутливості, які вимірюються через відносну зміну опору чи питомого опору, існує взаємозв'язок:

$$\gamma_l = \gamma_l^p + 1 + 2\mu, \quad (8)$$

який буде враховуватись при апробації співвідношення (7).

4.2. Порівняння експериментальних результатів із розрахунковими

4.2.1. Термічний коефіцієнт опору

Плівкові системи на основі Cr і Cu та Cr і Fe. Згідно даних розд. 3 система Cr/Cu/П у значній мірі задовольняє умові двошаровості, а в системах Cr/Fe/П уже в процесі конденсації формується т.р. (Cr, α -Fe). Цей висновок повністю підтверджується порівнянням експериментальних даних і результатів розрахунків за співвідношеннями (2) і (3) відповідно для ТКО двошарових плівкових систем (табл. 4). Одержані результати можна трактувати як задовільні і як

ТАБЛИЦЯ 4. Порівняння експериментальних та розрахованих за співвідношенням (3) величин ТКО при $T \approx 300$ К.

Плівкова система	$\beta \cdot 10^3, \text{K}^{-1}$	$\beta_{роз} \cdot 10^3, \text{K}^{-1}$	$(\beta - \beta_{роз})/\beta, \%$
Cr(30)/Cu(30)/П	1,34	1,12	16,4
Cr(180)/Cu(90)/П	1,90	1,30	30,0
Cu(48)/Cr(15)/П	2,22	1,90	14,0
Cu(48)/Cr(55)/П	2,58	2,37	8,1
Cr(10)/Fe(30)/П	0,40	0,33	18,0
Cr(30)/Fe(30)/П	0,42	0,35	16,1
Cr(60)/Fe(30)/П	0,50	0,38	24,0
Cr(70)/Fe(30)/П	0,56	0,43	24,1

такі, що підтверджують висновок про структурно-фазовий стан систем на основі Cr і Cu та Cr і Fe.

Плівкові системи на основі Co і Cu та Ag і Au та Fe і Cu. Структурно-фазовий стан перерахованих систем говорить про те, що експериментальні результати із ТКО слід порівнювати із співвідношенням (4).

Для одержання величини ТКО, як і у випадку систем Cr/Cu і Cr/Fe, здійснювалась термостабілізація електрофізичних властивостей, а потім розраховувалася експериментальна величина ТКО.

На рисунках 7–9 наведено приклади залежностей ρ і β від температури відпалювання.

Складність апробації співвідношення (4) полягає в тому, що в нього входять невизначені товщини d_1 і d_2 та величини β_c і ρ_c , які можуть бути розраховані із певною похибкою. Крім цього необхідно мати на увазі, що товщини d_1 і d_2 до певної міри незалежні параметри і тому апробацію (4) краще всього здійснювати шляхом розрахунку тривимірної діаграми в координатах $\beta - d - d$. Приклади таких діаграм наведено на рис. 10, 11.

Відмітимо такі загальні закономірності одержаних розрахункових залежностей.

По-перше, у випадку обох плівкових систем краща відповідність експериментальних і розрахункових результатів має місце при малих товщинах d_c , тобто при $d_c \rightarrow 0$.

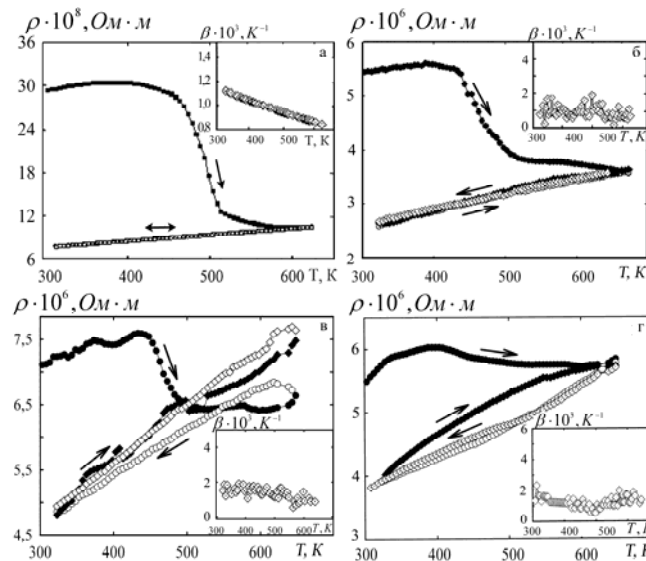


Рис. 7. Температурна залежність питомого опору і ТКО (на вставках) для плівкових систем Co(10)/Cu(10)/П (а), Ag(20)/П (б), Ag(20)/Co(10)/П (в) та Ag(90)/Co(30)/П (г).

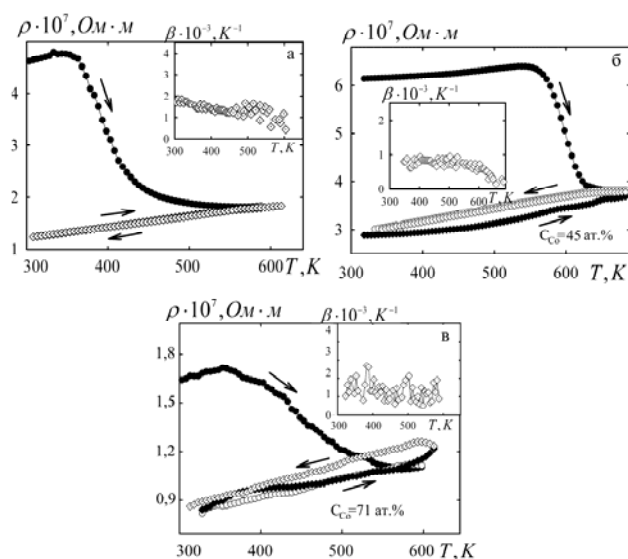


Рис. 8. Температурна залежність питомого опору і ТКО (на вставках) для плівкових систем Au(50)/П(a), Au(50)/Co(20)/П (б) та Au(8)/Co(20)/П (в).

По-друге, у випадку плівкової системи на основі Au і Co зменшення товщини d_1 або d_2 призводить, як правило, до збільшення

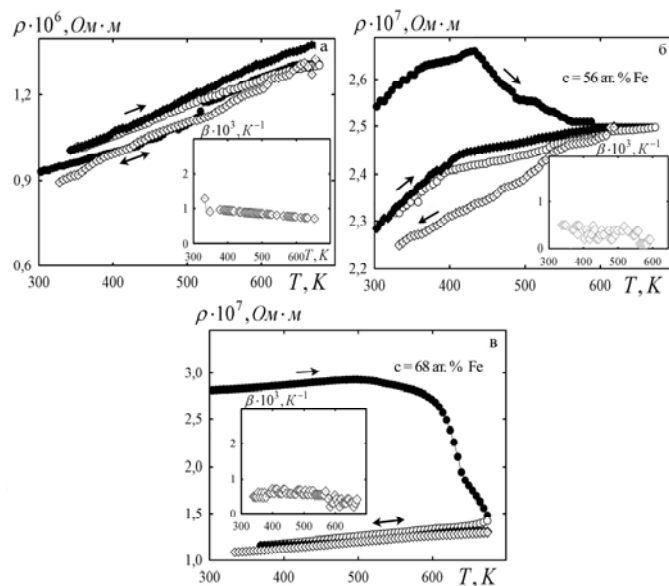


Рис. 9. Температурна залежність питомого опору і ТКО (на вставках) для плівкових систем Fe(30)/П (a), Fe(30)/Cu(30)/П (б) та Fe(50)/Cu(30)/П (в).

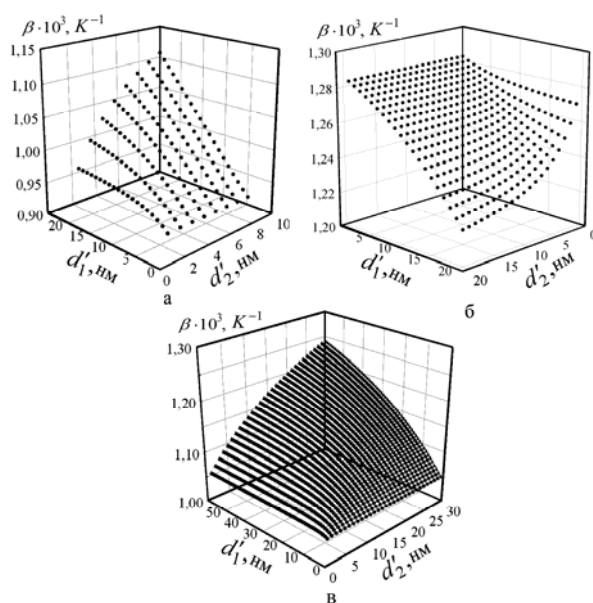


Рис. 10. Тривимірні діаграми залежності ТКО від товщини проміжного шару стопу плівкових систем Au(8)/Co(20)/П (*a*), Au(35)/Cu(25)/П (*б*), та Au(60)/Co(30)/П (*в*). Експериментальне значення β , K^{-1} : $0,90 \cdot 10^{-3}$ (*a*); $0,95 \cdot 10^{-3}$ (*б*) та $0,85 \cdot 10^{-3}$ (*в*).

ТКО; темпи цього збільшення більш чутливі, як і у випадку плівкових систем на основі Fe і Cu, до величини d_2'' .

Поряд з цим розмірна залежність ТКО від d_1'' і d_2'' у плівкових системах Fe/Cu/П має протилежний характер, тобто при зменшенні величини d_c величина ТКО також зменшується.

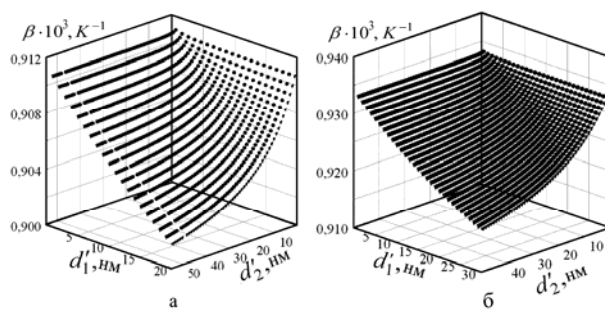


Рис. 11. Тривимірні діаграми залежності ТКО від товщини проміжного шару стопу для плівкових систем Fe(30)/Cu(30)/П (*a*), Fe(55)/Cu(20)/П (*б*), та Fe(50)/Cu(30)/П (*в*). Експериментальне значення β , K^{-1} : $0,95 \cdot 10^{-3}$ (*a*) та $0,85 \cdot 10^{-3}$ (*б*).

Крім того, зменшуючи величину d_c , можна досягти дуже гарної відповідності експериментальних і розрахункових результатів у випадку систем Fe/Cu/П (величина $(\beta - \beta_{роз})/\beta = \Delta\beta/\beta \cong 4 - 8\%$), в той час як у випадку систем Au/Co/П за умови $d_c \rightarrow 0$ можна досягти такої відповідності не краще 20%. Це повністю підтверджує і попередні наші висновки [52], суть яких полягає в тому, що система Fe/Cu/П добре відповідає умові двошаровості, яка теоретично реалізується за умови $d_c \rightarrow 0$ (в цьому випадку співвідношення (2) виступає як граничне для (4)).

У випадку системи Au/Co/П, в якій стабілізується гранульований стан т.р. (Au,Co), усім трьом моделям (2)–(4) не вдається досягти задовільної відповідності експериментальним результатам. Очевидно, що у цьому випадку необхідно користуватися іншим теоретичним моделюванням, що враховує гранульований стан плівкової системи.

4.2.2. Коефіцієнт поздовжньої тензочутливості

Плівкові системи на основі Cu і Cr та Cr і Fe. Незважаючи на тривалий час дослідження тензоефекту в плівкових матеріалах (див., наприклад, [53]), ця проблема досі залишається актуальною. Якщо точніше, то ці дослідження в тонких дротах і одношарових плівках при малих деформаціях (до 1%) мають характер завершеності, в той час, як у проблемі тензочутливості дво- і багатошарових плівкових системах залишається багато невивченого. Мова, зокрема, іде про вплив інтерфейсного розсіяння електронів, процесів взаємної дифузії атомів, структурно-фазового стану, великих деформацій і т.п. на особливості тензоефекту. В ряду цих проблем стоїть також питання розробки теоретичних моделей, які адекватні експериментальним результатам [21, 54].

Двошарові плівки на основі Cr і Cu та Cr і Fe, маючи різний структурно-фазовий стан, є дуже вдалимими об'єктами для апробації феноменологічних співвідношень (5) і (6) відповідно, хоча безвідносно до цього результати таких досліджень мають більш загальний інтерес у зв'язку із своєю новизною.

Методика вивчення тензорезистивних властивостей описана нами у попередніх роботах [54,55] і на більш високому методичному рівні [56]. Розрахунок миттєвого (γ_m) і середнього ($\bar{\gamma}$) коефіцієнтів тензочутливості здійснювався на основі деформаційних залежностей за співвідношенням:

$$\gamma_m = \frac{d \ln R}{d \ln l} = \frac{dR}{R d\varepsilon_l} \text{ та } \bar{\gamma} = \frac{\Delta R}{R_n \Delta\varepsilon_l},$$

де R — електричний опір (R_n — початковий опір при $\varepsilon_l = 0\%$). Інтервал деформацій $\Delta\varepsilon_{l4} \approx 0 - 2,0\%$ вибирався із тих міркувань, щоб

провести вимірювання γ_m і $\bar{\gamma}$ за межами пружної або квазіпружної деформації. Актуальність таких досліджень витікає безпосередньо із аналізу досліджень останніх років, присвячених різним ефектам пружної і пластичної деформації нанокристалічних матеріалів у вигляді плівки чи фолії: вплив інтерфейсів на пружні модулі [57]; мікроструктурні, зерномежові, поверхневі, геометричні та споріднені ефекти [58]; механічні властивості плівок [59–61] (див. також літературні джерела, цитовані в [55]) та ін.

Нами виконано дослідження залежності електричного опору двошарових плівок Cr/Cu і Cr/Fe при сумарній динамічній або статичній деформації до 2%, що досягалася послідовною деформацією плівкового зразка на полістироловім підложжі в інтервалах: $\Delta\epsilon_{l1} = 0 - 0,5\%$, $\Delta\epsilon_{l2} = 0,5 - 1,0\%$, $\Delta\epsilon_{l3} = 1,0 - 1,5\%$, $\Delta\epsilon_{l4} = 1,5 - 2,0\%$. На кожному деформаційному інтервалі здійснювалося від 7 до 13 деформаційних циклів «навантаження–зняття навантаження», причому перші п'ять прямих циклів реалізовувалися в статично-деформаційному режимі, коли через кожні $\Delta\epsilon_l = 0,05\%$ здійснювалася зупинка на 10 с. Інші прямі цикли і всі обернені проводилися лише у динамічному режимі. Такий спосіб деформації дозволяє провести стабілізацію мікропластичних процесів (повна аналогія із термостабілізацією резистивних властивостей).

Рисунки 12 і 13 ілюструють залежності відносної зміни опору (dR/R або $\Delta R/R$ при визначенні γ_m і $\bar{\gamma}$), опору і γ_m від деформації. Зміна характеру залежностей $R^{-1}dR(\epsilon_l)$ і $R(\epsilon_l)$ при збільшенні ϵ_l від 1,5% до 2% може говорити про перехід від пружної (квазіпружної) до пластичної деформації. При збільшенні загальної товщини плівкової системи гістереза і нелінійність проявляються сильніше, а величина деформації переходу зменшується до 0,5%. Ці процеси більш чутливі до збільшення товщини шару Cr. Залежність $\gamma_m(\epsilon_l)$ має більш складний характер в області пластичної де-

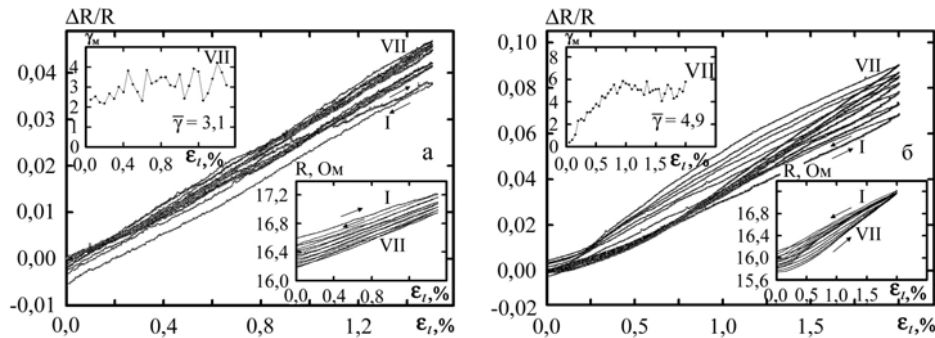


Рис. 12. Деформаційні залежності для перших семи циклів «навантаження–зняття навантаження» для системи Cu(10,7)/Cr(5,3)/Пі: $\Delta\epsilon_l = 0 - 1,5\%$ (а); $\Delta\epsilon_l = 0 - 2,0\%$ (б). Номера циклів зазначені римськими цифрами.

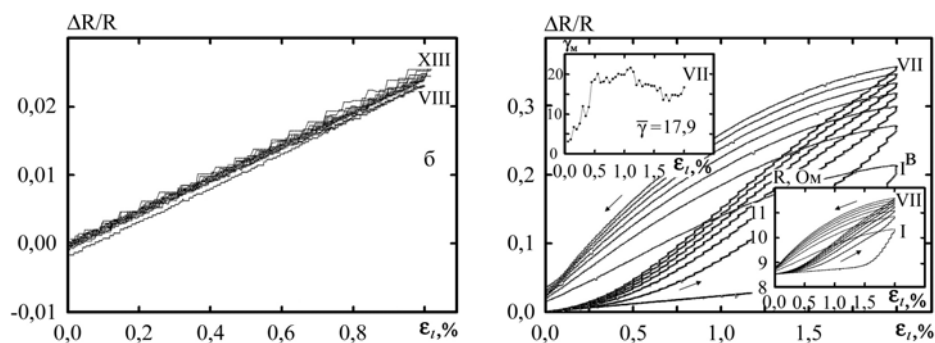


Рис. 13. Деформаційні залежності для тринадцяти циклів «навантаження-зняття навантаження» для системи Cu(20)/Cr(14)/П: $\Delta\varepsilon_i = 0-1,0\%$ (а, б); $\Delta\varepsilon_i = 0-2,0\%$ (в).

формації, а величини γ_m і $\bar{\gamma}$ не завжди дорівнюють 2 одиницям, як прийнято вважати [62], виходячи із теоретичних міркувань (допускається, що у співвідношенні (8) $\gamma_l^p = \rho^{-1} d\rho/d\varepsilon_i \cong 0$ при $\mu \cong 0,5$, $\gamma_l \cong 2$). Це можна пояснити, перш за все, проявом зерномежового розсіяння електронів, що забезпечує досить велике значення dR/R .

Розмірні залежності $\bar{\gamma}(d)$, представлені на рис. 14, свідчать про те, що співвідношення $\gamma_l \cong 2$ скоріш справедливе при пружній деформації (криві 1, 2 і 2'), а не при пластичній (криві 3, 4). Узгодження залежності 2' із експериментальними результатами підтверджує попередній висновок про те, що плівкова система на основі Cu і Cr (у даному випадку при умові пружної деформації) задовольняє вимогам двошарової системи.

Експериментальні і розрахункові за співвідношеннями (5) і (6) результати для системи Cr/Fe/П ми узагальнили у вигляді табл. 5.

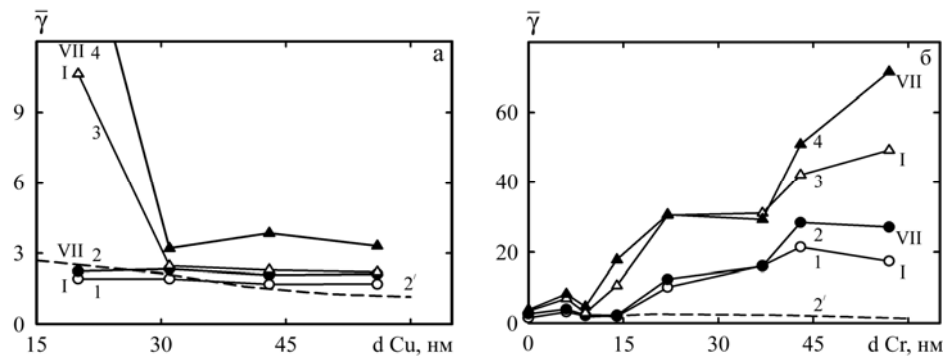


Рис. 14. Розмірні залежності $\bar{\gamma}$ від товщини одного шару при фіксованій товщині шару Cr (а) або Cu (б): $\Delta\varepsilon_i \cong 1,0\%$ (криві 1, 2); $\Delta\varepsilon_i \cong 2,0\%$ (криві 3, 4); 2' — розрахована за співвідношенням (5) залежність.

ТАБЛИЦЯ 5. Порівняння експериментальних та розрахункових величин γ_l при $T \cong 300$ К.

Плівкова система	γ_l	$\gamma_{l_{роз}}$ (див. (6))	$(\gamma_l - \gamma_{l_{роз}}) / \gamma_l, \%$
Cr(20)/Fe(50)/П	3,4	3,2	6,0
Cr(50)/Fe(50)/П	2,9	3,0	3,0
Cr(70)/Fe(50)/П	2,7	2,9	7,0

Підсумовуючи одержані результати, можна стверджувати, що з точки зору тензорезистивних властивостей у двошарових плівкових системах Cu/Cr зберігається індивідуальність окремих шарів, в той час як у системах Cr/Fe стабілізується т.р. (Cr, α -Fe).

Плівкові системи на основі Co і Au, Ag та Cu і на основі Fe і Si. Приклади деформаційних залежностей для одношарових плівок Au(20)/П та двошарових на основі Au і Co представлено на рис. 15 і 16. Результати розрахунків величин γ_m і $\bar{\gamma}$ для перших п'яти деформаційних циклів наведено у табл. 6 і на рис. 17. Відзначимо, що аналогічні результати одержано і для плівкових систем Ag/Co/П і Cu/Co/П, а також для Fe/Cu/П (на рис. 18, як приклад, наведені деформаційні залежності для системи Fe(12)/Cu(20)/П).

Також необхідно підкреслити, що збільшення кількості фрагментів Au/Co і Fe/Cu не впливає суттєво на характер деформаційних залежностей при різних інтервалах деформації, але обумовлює поступове збільшення як γ_m , так і $\bar{\gamma}$. Аналіз одержаних результатів дозволяє зробити ряд таких висновків.

По-перше, вкажемо особливості деформаційних залежностей. У випадку плівок Au пружня або квазіпружня деформація має місце до величини $\epsilon_l = 1,5\%$, в той час як у багатошарових плівкових системах Au/Co/П вона спостерігається лише до $\epsilon_l = 0,5\%$, що пояснюється руйнуванням (розтріскуванням) плівки Co. В той же час в багатошарових плівках Fe/Cu/П межа пружньої деформації досягає величини $\epsilon_l = 1,0\%$. На залежностях dR/R від ϵ_l та γ_m від ϵ_l це проявляється у відхиленні від лінійності (у першому випадку) та різкому зростанні $\bar{\gamma}$ (у другому випадку).

По-друге, збільшення кількості деформаційних циклів спричиняє монотонне зменшення $\bar{\gamma}$, що пояснюється завершенням протікання релаксаційних процесів. В той же час збільшення кількості шарів у плівковій системі призводить до монотонного збільшення γ_m і $\bar{\gamma}$, що пояснюється дією додаткового механізму розсіяння електронів на інтерфейсах.

Відзначимо, що як γ_m , так і $\bar{\gamma}$ при однаковій загальній товщині плівкової системи мають більшу величину в системах на основі Fe і Cu, що можна пояснити наявністю в них стабільних інтерфейсів та відсутністю проміжних шарів у вигляді твердих розчинів.

За аналогією з ТКО одержано експериментальні результати для

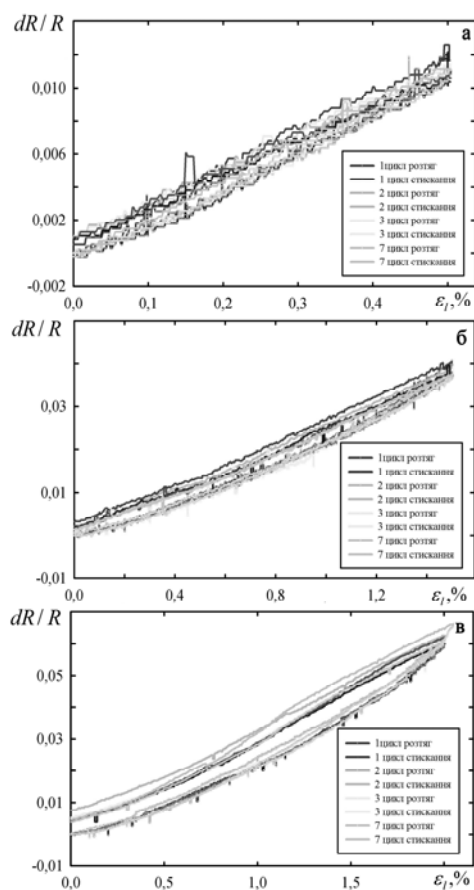


Рис. 15. Деформаційні залежності для плівки Au(20)/П.

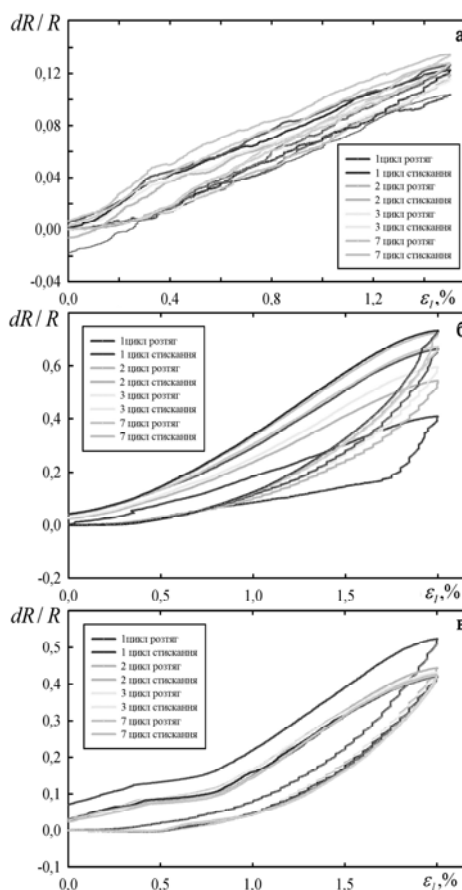


Рис. 16. Деформаційні залежності для плівкової системи Au(20)/Co(20)/П при $\Delta\epsilon = 1,5\%$ (а) та $2,0\%$ (б) і при деформації до $2,0\%$ на атмосфері (в).

КТ були порівняні із розрахунковими на основі моделю двохшарової системи із проміжним шаром стопу біля інтерфейсу (співвідношення (7), яке аналогічне (4) для ТКО).

Були розраховані тривимірні діаграми $\gamma_l - d'_1 - d'_2$, приклади яких наведено на рис. 19 (система Au/Co/П) і на рис. 20 (система F?e/Cu/П). Узгодження цих результатів із експериментальними даними має якісний характер у випадку систем на основі Au і Co і задовільний — у випадку систем на основі Fe і Cu.

При цьому має місце та ж ситуація, як і у випадку тривимірних діаграм для ТКО (рис.10, 11). Мова іде про те, що узгодженість результатів у другому випадку максимальна, коли товщина проміж-

ТАБЛИЦЯ 6. Коефіцієнти тензочутливості для плівкової системи $\text{Au}(20)/\text{Co}(20)/\text{Pt}$ для перших п'яти деформаційних циклів.

Максимальна деформація	$\Delta\varepsilon, \%$	γ_i				
		I	II	III	IV	V
0,5%	0,1	8,6	8,6	3,9	3,9	3,6
	0,3	2,4	2,1	2,1	2,1	1,6
	0,5	1,7	1,7	1,7	1,7	1,6
	$\bar{\gamma}$	4,2	4,1	2,6	2,6	2,3
Максимальна деформація	$\Delta\varepsilon, \%$	γ_i				
		I	II	III	IV	V
1,5%	0,4	17	16	16	16	14
	0,8	13	11	11	11	10
	1,4	10	10	10	10	9
	$\bar{\gamma}$	13,3	12,3	12,3	12,3	12,0
Максимальна деформація	$\Delta\varepsilon, \%$	γ_i				
		I	II	III	IV	V
2%	0,5	36	32	25	20	9
	1,5	46	45	41	41	35
	2,0	44	44	44	44	40
	$\bar{\gamma}$	42,0	40,3	36,7	35,0	28,0
Максимальна деформація	$\Delta\varepsilon, \%$	γ_i				
		I	II	III	IV	V
2% на атмосфері	0,5	26	16	16	16	15
	1,0	22	16	16	14	14
	2,0	26	26	21	21	20
	$\bar{\gamma}$	24,7	19,3	17,7	17,0	16,3

ного шару прямує до нуля. Для досягнення такої ж узгодженості у випадку системи Au/Co, очевидно, необхідно в теоретичнім моделю врахувати елементи гранульованого стану у двошаровій системі.

ВИСНОВКИ

На основі узагальнення літературних даних та аналізу експериментальних результатів можна зробити наступні висновки.

1. Стабільність інтерфейсів (тобто збереження індивідуальності окремих шарів) в повній мірі визначається дифузійними процесами, які контролюються в першу чергу конденсаційно-стимульованою, а в другу чергу — термодифузиею. Високої якості інтерфейси можна одержати на межі поділу шарів, які мають повну відсутність взаємної розчинності компонент (наприклад, система

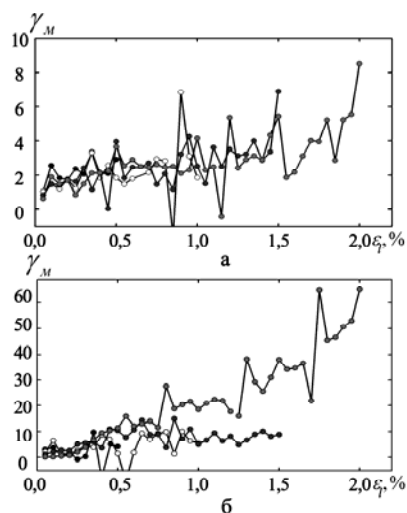


Рис. 17. Залежність γ_M від ϵ_l для плівки Au(20)/П (а) та плівкової системи Au(20)/Co(20)/П (б). Різке зростання γ_M при $\epsilon_l > 1,0\%$ для другого зразка пов'язане із руйнуванням плівки Co.

Fe/Pb/Fe) або необмежену їх розчинність (наприклад, система Fe/V/Fe); додатковий аналіз вказує на те, що у другому випадку оптимальним є варіант, коли одна компонента в іншій має практично необмежену розчинність, а друга в першій — максимально обмежену (приклад такої системи — Fe/Cr/Fe).

2. У результаті комплексного вивчення структурно-фазового стану і електрофізичних властивостей двошарових плівок Fe/Cu/П можна зробити висновок про те, що у відпалених до 700 К двошаро-

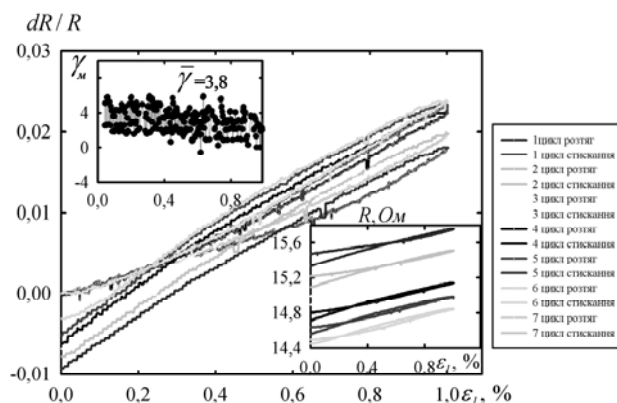


Рис. 18. Залежності зміни опору і γ_M від величини повздовжньої деформації для системи Fe(12)/Cu(20)/П.

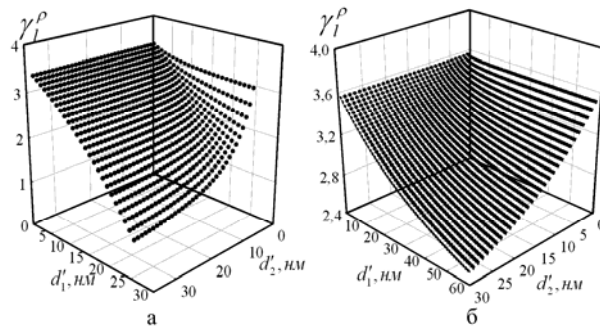


Рис. 19. Тривимірні діаграми залежності γ_i^p від товщини проміжного ступу для плівкових систем Au(35)/Co(25)/П (а) та Au(60)/Co(30)/П (б).

вих зразках стабілізується структурний стан типу біпластина, хоча при інших методах одержання зразків можлива стабілізація псевдостопу (Cu, Fe) з елементами гранульованого стану.

3. Виявлено кореляцію між структурно-фазовим складом і термічним коефіцієнтом опору двошарових плівок Au/Co/П і Fe/Cu/П; аналіз цих результатів у сукупності дозволяє зробити висновок про стабілізацію у відпалених плівкових системах гранульованого стану атомів Co на основі т.р. (Au, Co) та двошарової системи Fe/Cu/П, оскільки у першому випадку експериментальні величини ТКО узгоджуються в однаковій мірі задовільно із запропонованими нами теоретичними моделями, в той час як у випадку системи Fe/Cu/П має місце дуже добре узгодження із граничним випадком ($d_c \rightarrow 0$) моделю проміжного шару т.р. біля інтерфейсу.

4. Дослідження тензорезистивного ефекту в багатошарових плівкових системах Au/Co/П і Fe/Cu/П дозволяють зробити такі висновки:

— межа пружної або квазіпружної деформації має більше зна-

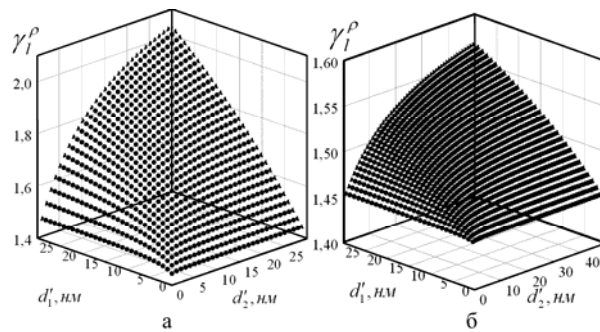


Рис. 20. Тривимірні діаграми залежності γ_i^p від товщини проміжного ступу для плівкових систем Fe(30)/Cu(30)/П (а) та Fe(50)/Cu(30)/П (б).

чення в одношарових плівках (до $\varepsilon_l \cong 1,5\%$) у порівнянні із багатшаровими системами ($\varepsilon_l \cong 0,5\%$ (Au/Co/Π) і $1,0\%$ (Fe/Cu/Π));

— при збільшенні кількості деформаційних циклів величина $\bar{\gamma}$ монотонно зменшується, що пояснюється завершенням релаксаційних процесів, а збільшення числа фрагментів Au/Co або Fe/Cu (до $n = 4$) у плівковій системі обумовлює збільшення як γ_m , так і $\bar{\gamma}$, що пов'язано із розсіянням електронів на інтерфейсах;

— у плівкових системах на основі Fe і Cu формуються більш стабільні інтерфейси у порівнянні із системами на основі Au і Co, в яких утворюються проміжні шари стопу (Au, Co), що і обумовлює відносно більші величини γ_m і $\bar{\gamma}$.

Роботу виконано при частковій фінансовій підтримці Міністерства освіти і науки України в рамках науково-технічного співробітництва між Сумським державним університетом і Інститутом фізики АН Словацької Республіки (м. Братислава).

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. Ш. Ковач, Б. Дани, С. Р. Тейгзейра и др., *ФММ*, **79**, №1: 98 (1995).
2. І. Ю. Проценко, І. В. Чешко, Я. Яворський, *Вісник СумДУ*, №10 (69): 65 (2004).
3. В. В. Скороход, І. В. Уварова, А. В. Рагуля, *Фізико-хімічна кінетика в наноструктурних системах* (Київ: Академперіодика: 2001).
4. В. І. Дибков, *Твердофазна хімічна кінетика і реакційна дифузія* (Київ: ІПМ: 2002).
5. С. П. Чижик, Н. Т. Гладких, Л. К. Григорьева и др., *Металлы*, №2: 175 (1985).
6. В. П. Ампилогов, *Рост и структура наноразмерных ориентированных гетероструктур с органической взаимной растворимостью компонентов* (Дис. ... канд. физ.-мат. наук) (Воронеж: ВГТУ: 2007).
7. М. Kitada, *J. Magnet. Magn. Mat.*, **208**: 244 (2000).
8. A. Aziz, S. M. Thompson, K. Ounadjela et al., *J. Magnet. Magn. Mat.*, **148**: 313 (1995).
9. K. Yamamoto and M. Kitada, *Thin Solid Films*, **263**: III (1995).
10. I. Protsenko, I. Cheshko, and Ja. Javorsky, *Functional Materials*, **13**, No. 2: 219 (2006).
11. G. H. Yang, K. W. Geng, F. Zeng et al., *Thin Solid Films*, **484**: 283 (2005).
12. M. Marszalek, I. Cheshko, O. Synashenko, and I. Protsenko, *Book of Abstracts Workshop on Smoothing and Characterization of Magnetic Films for Advanced Devices (Krakow: AGH UST: 2007)*.
13. С. М. Волошко, С. И. Сидоренко, И. Н. Макеева, *Металлофиз. новейшие технол.*, **16**, №10: 61 (1994).
14. І. Ю. Проценко, А. М. Черноус, І. О. Шпетний, *Вісник Львівського національного університету. Серія фізична*, №36: 116 (2003).
15. И. А. Гарифуллин, Н. Н. Гарифьянов, Р. И. Салихов, *Изв. РАН. Сер. физич.*, **71**, №2: 280 (2007).
16. В. В. Бібік, Л. В. Одноворець, І. О. Шпетний, *Вісник СумДУ*, №9 (93): 91

- (2006).
17. В. В. Бібік, Л. В. Однодворець, Н. І. Шумакова, С. І. Проценко, *Вісник СумДУ*, №6 (90): 47 (2006).
 18. S. Kundu, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B*, **242**: 542 (2006).
 19. Y. Chushkin, M. Jergel, S. Luby et al. *Appl. Sur. Sci.*, **243**: 62 (2005).
 20. N. R. Shamsutdinov, A. J. Bottger, and F. D. Tichelaar, *Scripta Mat.*, **54**: 1727 (2006).
 21. Л. В. Дехтярук, І. Ю. Проценко, А. М. Черноус, *Успехи физ. мет.*, **8**, №1: 21 (2007).
 22. Л. В. Дехтярук, І. М. Пазуха, І. Ю. Проценко, *УФЖ*, **51**, №7: 729 (2006).
 23. Є. О. Забіла, Л. В. Однодворець, С. І. Проценко та ін., *Вісник СумДУ*, №8 (54): 71 (2003).
 24. І. М. Пазуха, С. І. Проценко, І. Ю. Проценко та ін., *Вісник СумДУ*, №9 (93): 7 (2006).
 25. S. Zang and P. M. Levy, *Phys. Rev. B*, **57**, No. 9: 5336 (1998).
 26. R. Banerjee, R. Ahuja, S. Swaminathan et al., *Thin Solid Films*, **269**: 29 (1995).
 27. P. F. Carsia and A. Suna, *J. Appl. Phys.*, **54**, No. 4: 2000 (1983).
 28. J. W. C. de Vries, *Solid State Com.*, **65**, No. 3: 201 (1988).
 29. О. Синашенко, І. Проценко, *Тези доповідей Міжнародної конференції ЕВРИКА-2007 (Львів: ЛНУ: 2007)*.
 30. Ю. М. Овчаренко, Н. М. Опанасюк, І. Ю. Проценко та ін., *УФЖ*, **42**, №7: 826 (1997).
 31. T. Lorenz, M. Moske, H. Geisler et al., *Thin Solid Films*, **275**: 220 (1996).
 32. M. Gester, K. Ounadjela, J. F. Gregg et al., *J. Magnet. Magn. Mat.*, **165**: 323 (1997).
 33. E. Agostinelli, D. Fiorari, S. Foglia et al., *Mat. Sci. and Engineering*, **19**: 151 (2002).
 34. J. A. De Toro, J. P. Anders, J. A. Gounzalez et al., *Phys. Rev. B*, **70**: 224412-1 (2004).
 35. F. Stobiecki, B. Szymanski, T. Lucinski et al., *J. Magnet. Magn. Mat.*, **202**: 276 (2002).
 36. F. Spizzo, E. Angeli, D. Bisero et al., *J. Magnet. Magn. Mat.*, **242–245**: 473 (2002).
 37. Д. Л. Халяпин, *Магнитные свойства и структура плёнок нанокристаллических сплавов Со–Си, формируемых последовательным напылением компонентов*. (Дис. ... канд. физ.-мат. наук) (Красноярск: Ин-т физики СО РАН: 2005).
 38. K. Marszalek, M. Marszalek, S. Protsenko et al., *Materialy Konferencyjna 'COE 2006' (Krakow–Zakopane: 2006)*.
 39. В. В. Бібік, Т. М. Гричановська, М. Маршалек та ін., *Металлофиз. новейшие технол.*, **28**, №6: 707 (2006).
 40. M. Marszalek, J. Jaworski, M. Kas et al., *Vacuum*, **74**: 287 (2004).
 41. З. Зиман, А. Ф. Сіренко, *Основи фізичного матеріалознавства* (Харків: ХНУ ім. В. Н. Каразіна: 2005).
 42. Л. В. Однодворець, С. І. Проценко, А. І. Салтыкова, *Металлофиз. новейшие технол.*, **21**, №8: 71 (1999).
 43. S. Kundu, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B*, **212**: 489 (2003).
 44. M. Gonzales-Silveira, J. Rodriguez-Viejo, M. T. Clavaduera-Mora et al., *Phys. Rev. B*, **75**: 075419-1 (2007).

45. В. М. Федосюк, Д. И. Вильямс, Х. И. Блайт и др., *Металлофиз. новейшие технол.*, **18**, №11: 17 (1996).
46. С. Oprea, A. P. Kobzev, M. Codescu et al., *ION 2006* (Kazimiers Dolny: 2006)
47. С. Oprea, A. P. Kobzev, M. Codescu et al., *Vacuum*, 2007 (to be published).
48. В. В. Чернышов, С. Д. Калошкин, В. Н. Сердюк и др., *ФММ*, **97**, №4: 71 (2004).
49. P. Gorria, D. Martinez-Blanco, J. A. Blanco et al., *Physica B*, **384**: 336 (2006).
50. N. R. Shamsutrinov, A. J. Bottger, F. D. Tichelaar, *Scripta Mater.*, **54**: 1727 (2006).
51. T. Koziel, Z. Kedzierski, A. Zielinska-Lipiec et al., *Scripta Mater.*, **54**: 1990 (2006).
52. J. Y. Huang, J. Z. Jiang, H. Yasuda et al., *Phys. Rev. B*, **58**, No. 18: 11817 (1998).
53. Л. В. Однодворець, С. І. Проценко, А. М. Черноус та ін., *Успехи физ. мет.*, **8**, №2: 109.
54. С. І. Проценко, А. М. Черноус, *Металлофиз. новейшие технол.*, **25**, №5: 587 (2003).
55. Є. О. Забіла, І. Ю. Проценко, *УФЖ*, **50**, №7: 729 (2005).
56. С. Проценко, *Матеріали XI Міжнародної конференції «Фізика і технологія тонких плівок і наносистем» (Івано-Франківськ.: ПрНУ: 2007)*, т. 1.
57. G.-F. Wang, X.-Q. Feng, S. W. Yu et al., *Mat. Sci. Eng. A*, **363**: 1 (2003).
58. P. J. W. Janssen, Th. H. de Keijser, and M. g. D. Geers, *Mat. Sci. Eng. A*, **419**: 238 (2006).
59. D. Son, J.-H. Jeong, and D. Kwon, *Thin Solid Films*, **437**: 182 (2003).
60. D. Son, J.-j. Kim, T. W. Lim et al. *Scripta Mater.*, **50**: 1265 (2004).
61. S. U. Jen and T. C. Wu, *Thin Solid Films*, **492**: 166 (2005).
62. Н. П. Клокова, *Тензометрия* (Москва: Машиностроение: 1990).