

PACS numbers: 68.60. – p, 68.35.Fx, 68.60.Dv

## ЗЕРНОМЕЖЕВА ДИФУЗІЯ В ПЛІВКАХ СІ І НІ З ТОНКИМ МЕТАЛЕВИМ ПОКРИТТЯМ

**Т.П. Говорун, С.І. Проценко, В.О. Пчелінцев, А.М. Чорноус**

Сумський державний університет,  
вул. Римського-Корсакова, 2, 40007, Суми, Україна  
E-mail: [achornous@nis.sumdu.edu.ua](mailto:achornous@nis.sumdu.edu.ua)

У роботі проведено дослідження зерномежевої дифузії низькотемпературним резистометричним методом у плівках Сі з тонким покриттям із Ні та плівок Ні з тонким покриттям із Сі. Показано, що при нанесенні покриття та проведенні термовідпалювання спостерігається незворотне збільшення електроопору на величину від десятих частин до декількох Омів, що в першу чергу обумовлено дифузійними процесами атомів покриття на межах зерен базисних шарів.

**Ключові слова:** ЗЕРНОМЕЖЕВА ДИФУЗІЯ, ДИФУЗІЙНІ ПРОЦЕСИ, МЕЖА ЗЕРНА, ТОНКЕ ПОКРИТТЯ, СЕРЕДНІЙ РОЗМІР ЗЕРНА.

(Одержано 24.11.2009, у відредагованій формі – 02.12.2009)

### 1. ВСТУП

Досить значний вплив на електрофізичні властивості тонких плівок металів мають дифузійні процеси, які призводять до зміни мікрокопічних параметрів, що описують розсіювання носіїв заряду на зовнішніх і внутрішніх межах та в об'ємі зерен [1].

Дослідженю дифузійних процесів у полікристалічних та нанокристалічних матеріалах у літературі приділяється достатньо велика увага (див., наприклад, [2-14]). Авторами роботи [4] було узагальнено результати з досліджень дифузійних процесів у плівкових системах і масивних зразках.

Межа зерна (МЗ) представляє собою перехідну область шириною до 3 нм, для якої решітка одного зерна з визначеною кристалографічною орієнтацією, переходить у решітку іншого зерна, що має іншу кристалографічну орієнтацію. Тому на МЗ спостерігається більш високий енергетичний стан електронів і спотворена кристалічна будова. У зв'язку з цим вона є більш легким шляхом для дифузії атомів, ніж об'єм зерна. Енергія активації процесу дифузії по МЗ, істотно менше об'ємної і тому перенесення атомів відбувається на кілька порядків швидше, ніж в об'ємі досконалого кристалу [2].

На перший погляд здавалося б, що дифузія інорідних атомів в межі зерен призводить лише до ще більш хаотичної їх будови, внаслідок чого зменшиться коефіцієнт проходження меж. Але на основі аналізу у рамках термодинамічного підходу [15] зроблено висновок, що також може мати місце процес заліковування дефектів на МЗ атомами покриття, що обумовить збільшення коефіцієнта проходження межі зерен

для електронів провідності. Висновки [15] підтверджуються і результатами роботи [14], де було проведено дослідження електрофізичних властивостей двошарових плівок Cu/Cr в умовах взаємної дифузії.

В роботі [16] було систематизовано результати теоретичних досліджень транспортних розмірних ефектів у двошарових полікристалічних плівках в залежності від товщини компонентів цих систем. Зроблено висновки, що при малій товщині покриття відносно до базисної плівки ( $d_n/d \ll 1$ , де  $d$  – товщина базисної плівки,  $d_n$  – товщина покриття), його власний внесок в кінетичні коефіцієнти має невелике значення, однак його абсолютна величина відрізняється від свого значення для одношарової плівки внаслідок можливості розсіювання носіїв заряду не лише на зовнішній поверхні, але й на межі поділу шарів металу. Наявність домішок у межах зерен призводить до зміни їх розсіювальних властивостей і може як збільшувати (у випадку коли процес дифузії призводить до утворення твердих розчинів) [16], так і зменшувати (якщо атоми дифузанта викликають релаксацію пружних полів біля меж зерен) [17] коефіцієнт розсіювання електронів межами зерен. Проведення дифузійного відпалювання полікристалічного зразка може привести як до збільшення його провідності, та і до зменшення [16], що узгоджується з висновками попередньо процитованих робіт.

Відмітимо, що автори робіт, які нами цитувались, використовували для дослідження дифузії метод вторинної іонної мас-спектрометрії або електронної оже-спектроскопії. Інший метод визначення коефіцієнтів дифузії був запропонований у роботі [5] і використаний у [6]. Так, авторами роботи [5] при дослідженні впливу дифузійних процесів на електричний опір у двошарових плівкових системах на основі Ag та Au було показано, що у процесі зерномежевої дифузії опір плівки, обумовлений розсіюванням на фононах та поверхні, не змінюється. Зміни величини опору на межах зерен пов'язані з появою на них електричних зарядів, змінами сил міжатомної взаємодії, коливального спектру та за рахунок утворення на межах зерен нових фаз. Причому, проникнення атомів дифузанта в межу зерна може викликати як збільшення опору, так і його зменшення [5].

Аналіз літературних даних [18-20] показує, що нанесення покриття на поверхню плівки змінює її електрофізичні властивості, зокрема, внаслідок зерномежевої дифузії інорідних атомів із покриття. Це може привести як до покращення, так і до погіршення прозорості меж зерен внаслідок заліковування або утворення нових дефектів на МЗ. Оскільки зерномежева дифузія впливає на електрофізичні властивості, нами було проведено дослідження процесів зерномежевої дифузії з використанням низькотемпературного резистометричного методу, який був запропонований у роботі [5] і у подальшому використаний авторами у [6].

## 2. МЕТОДИКА ПРОВЕДЕННЯ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ ТА ОБРОБКА ЇХ РЕЗУЛЬТАТІВ

Низькотемпературний резистометричний метод ґрунтуються на визначенні зміни електричного опору за рахунок дифузії у процесі відпалювання. Відомо [5], що при відносно низьких температурах  $T_e$  дифузійного відпалювання ( $T_e < 0,3T_{пл}$ , де  $T_{пл}$  – температура плавлення) об'ємна дифузія практично зупинена, і масоперенесення у металах

здійснюється тільки по МЗ, що приводить до зміни їх властивостей. Тому, вивчаючи електрофізичні властивості плівкових матеріалів (зокрема електричний опір), на думку авторів [5], можна знайти важливу інформацію про параметри зерномежевої дифузії. Коефіцієнт зерномежевої дифузії  $D$  визначається за даними прецизійного виміру електроопору в процесі дифузійного відпалювання.

При зерномежевій дифузії електроопір плівки, обумовлений розсіюванням на поверхні та фононах, залишається незмінним. Опір же МЗ може змінюватися за рахунок появи електричних зарядів біля меж, зміни сил міжатомної взаємодії, зміни коливального спектру появи або заліковуванню дефектів, а також, внаслідок утворення нових фаз на межах тощо. Також передбачається [21], що поблизу меж зерен поля пружних деформацій простираються на відстані порядку періоду структури межі. Розсіювання електронів відбувається як на самій межі, так і на полі деформації. Проникаючи в межу, атоми дифузанта викликають релаксацію полів деформацій. Тоді розсіювання електронів на них, а в остаточному підсумку й загальний опір плівки, буде змінюватися. Тому, на думку авторів, [21] проникнення атомів дифузанта в МЗ може викликати як збільшення, так і зменшення електричного опору плівки  $R$ .

Для моноблочних по товщині плівок в умовах відпалювання при  $T_e < 0,3T_{pl}$  та у випадку необмеженої розчинності атомів дифузанта в плівці, відсутності дифузії по поверхні зразка і міжфазним поверхням, концентраційний профіль дифузанта в плівці, згідно [5], може бути описаний співвідношенням:

$$c(x, \tau) = c_0 \left[ \frac{d_n}{l} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{n\pi} \sin \frac{n\pi a}{l} \cos \frac{n\pi x}{l} \left( -\frac{n^2\pi^2 D\tau}{l^2} \right) \right], \quad (1)$$

де  $d_n$  – товщина шару дифузанта;  $l = d + d_n$  – сумарна товщина плівки і шару дифузанта;  $c_0$  – концентрація атомів дифундуючого компоненту у момент часу  $\tau = 0$ ;  $\tau$  – час дифузійного відпалювання.

Використовуючи співвідношення (1), розрахувати зміну електроопору зразка при дифузійному відпалюванні для будь-яких моментів часу  $\tau$  не представляється можливим [5]. По-перше, невідома залежність опору ( $R$ ) від  $c$  для всього інтервалу концентрацій дифузанта. По-друге, відсутня теорія розсіювання електронів межами зерен, у якій враховувалася б зміна  $R$  по товщині плівки. Однак для випадку  $a/l \leq 0,1$  можна оцінити величину  $D\tau/l^2$ , починаючи з якої електроопір уже не буде змінюватися. Зі співвідношення (1) випливає, що при  $D\tau/l^2 \geq 0,1$  концентраційний профіль дифузанта, а отже і електроопір, практично не змінюється. Тому момент часу  $\tau^*$ , коли зміна  $R$  припиняється, можна визначити із співвідношення:

$$D\tau^*/l^2 \approx 0,1, \quad (2)$$

де  $\tau^*$  – час вимірювання опору, обумовленого зерномежевою дифузією.

Із співвідношення (2) можна визначити коефіцієнт зерномежевої дифузії. Експериментальна реалізація даного методу описується в [5, 6]. Нами вираз (2) використовувся для розрахунку коефіцієнту низькотемпературної зерномежевої дифузії. Величина  $l$  обраховувалася як сума товщини базисного шару Cu, (Ni) і ефективного значення товщини покриття Ni (Cu)

до 2 нм. Величиною  $\tau^*$  вважався час від початку порівняно різкого росту електроопору до його лінійного збільшення або виходу на насичення.

При проведенні досліджень дифузійних процесів плівок Cu і Ni з тонким металевим покриттям резистивним методом була використана така схема експерименту:

1-й етап – отримання термічним методом плікових зразків базисної плівки Cu і Ni певної геометричної конфігурації при температурах підкладки з полікору, близьких до температури Дебая для масивних зразків, з наступним охолодженням до кімнатної температури (швидкість осадження для плівок Cu і Ni складала величину  $1,5 \div 2,5$  та  $0,4 \div 0,8$  нм/с відповідно).

2-й етап – відпалювання, без порушення вакууму, базисних плівок за схемою «нагрівання  $\leftrightarrow$  охолодження» протягом двох-трьох циклів в інтервалі температур 300-550 К (Cu) і 300-630 К (Ni) для терmostабілізації електрофізичних властивостей і заликовування дефектів кристалічної будови;

3-й етап – нанесення, без порушення вакууму, термічним способом тонкого покриття із металу ( $d_n \sim 2$  нм) з послідуючою стабілізацією системи протягом 30 хвилин та фіксуванням зміни опору після нанесення покриття при температурі  $T = 300$  К;

4-й етап – дифузійне відпалювання системи при  $T = 373$  К протягом 30 хвилин;

5-й етап – дифузійне відпалювання системи при  $T = 473$  К протягом 30 хвилин;

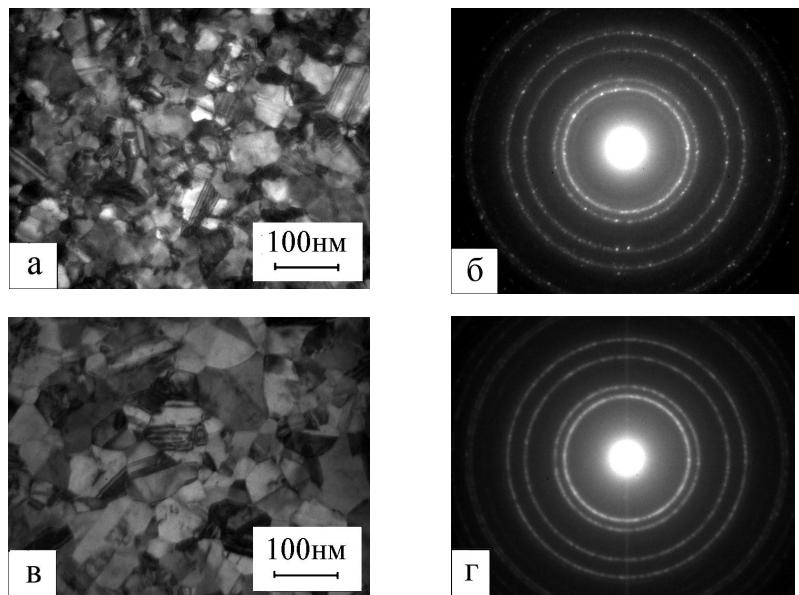
6-й етап – дифузійне відпалювання системи при  $T = 533$  К протягом 30 хвилин.

Відмітимо, що вибір таких температур дифузійного відпалювання був обумовлений вимогами резистометричного методу, оскільки, згідно [10], тільки коли  $T_e < 0,3T_{pl}$  дифузія буде відбуватися по МЗ.

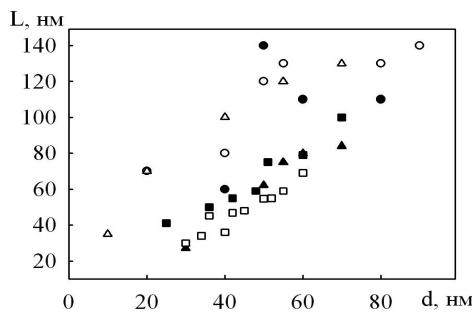
Температура відпалювання фіксувалася мідь-константановою термопарою, що мала безпосередній контакт з підкладкою, з використанням вольт-амперметру М2051 (точність  $\pm 1$  К). Товщина базисних плівок визначалась інтерферометричним методом з використанням приладу МІІ-4. При товщині  $> 40 \div 50$  нм, точність вимірювання товщини становить  $\sim 10 \div 20\%$ . Ефективна товщина покриттів з металів визначалась за масою наважки та методом кварцевого резонатора, що дозволяє визначати товщину покриття із точністю до 10%.

Дослідження фазового та структурного складу плікових зразків проводились методами просвічувальної електронної мікроскопії і дифракції електронів (прилад ПЕМ-125К), а топології поверхні методом атомно-силової мікроскопії. Для електронно-мікроскопічних та електроно-графічних досліджень полікристалічні плівки конденсувалися на плівки-підкладки з вуглецю, а у випадку вивчення топології поверхні використовувалися діелектричні ситалові пластини.

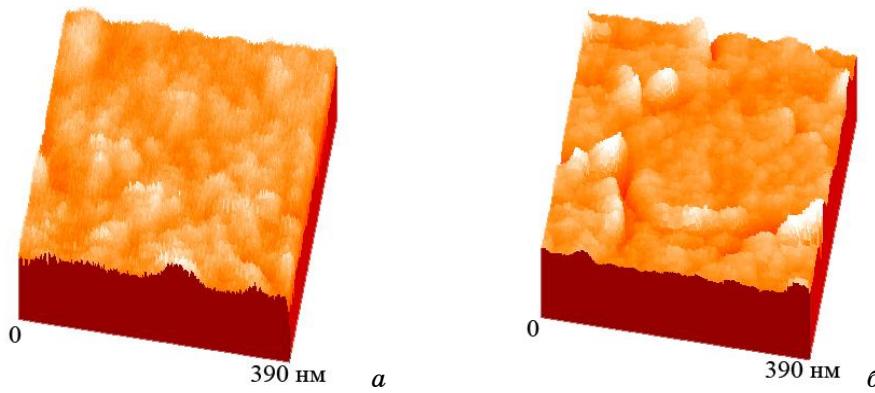
Плівки Cu і Ni (рис. 1а, б) мають ГЦК-структурну з міжплощинними відстанями та параметрами решітки ( $a$ ), близькі до тих, що мають масивні зразки ( $a_0$ ): Cu –  $a = 0,3612$  нм ( $a_0 = 0,3615$  нм [22]); Ni –  $a = 0,3528$  нм ( $a_0 = 0,3524$  нм [22]). Покриття із Cu і Ni з ефективною товщиною до 5 нм мають острівцеву структуру, а їх фазовий склад відповідає фазовому складу суцільних плівок з ГЦК-решіткою, хоча параметр решітки має



**Рис. 1 – Кристалічна структура та електронограми від плівок Cu(42) (а, б) та Ni(52) (в, г) після термообробки. У дужках зазначена товщина в нм**



**Рис. 2 – Залежність середнього розміру зерна  $L$  від товщини  $d$  для плівок Cu: ■ – наші дані; ● – дані роботи [23]; ○ – дані роботи [24]; Δ – дані роботи [25]; Ni: □ – наші дані; ▲ – дані роботи [23]**



**Рис. 3 – АСМ-зображення в режимі профілю поверхні невідпаленого (а) та відпаленого (б) до  $T_e = 550$  К плівкового зразків Ni(2)/Cu(35)/П**

дещо вище значення у порівнянні із масивними зразками і одношаровими плівками:  $a_{Cu} = 0,3625$  нм;  $a_{Ni} = 0,3584$  нм. Відпалені плівки Cu і Ni з покриттям із Ni і Cu відповідно мають також ГЦК-решітку з параметрами решітки, близькими до одношарових плівок.

Рисунок 2 дає уявлення про середній розмір зерна ( $L$ ) у базисних плівках Cu і Ni в залежності від товщини. Аналіз цих даних показує, що у випадку плівок Cu можна говорити про більше значення середнього розміру зерна порівняно з товщиною. Так, в інтервалі товщин  $d = 20 \div 70$  нм  $L$  змінюється від 40 до 110 нм. Середній розмір зерна у плівках Ni (рис. 2) має значення порядку товщини плівки. Це співпадає з результатами, отриманими іншими авторами (див., наприклад [23-25]). Результати топологічних досліджень поверхні плівкових зразків Cu з тонким покриттям із Ni у невідпаленому та відпаленому станах представлено на рисунку 3. При відпалюванні плівок Ni(2)/Cu(35)/П до температури  $T_e = 550$  К спостерігається збільшення шорсткості поверхні, що пов'язано з дифузійними процесами атомів Ni у базисну плівку Cu.

Нанесення покриття із Ni ефективною товщиною  $d_n \sim 2$  нм на поверхню базисної плівки Cu згладжує її певним чином на рівні одного-двох нанометрів. Але після термовідпалювання атоми Ni дифундувати у базисну плівку Cu. Це, як і у попередньому випадку, викликає збільшення шорсткості поверхні, зменшуячи її дзеркальність і фактично повертаючи її у вихідний стан, що підтверджується і результатами досліджень структурно-фазового складу і дифузійних процесів методом ВІМС [26].

### 3. ДОСЛІДЖЕННЯ ПРОЦЕСІВ ЗЕРНОМЕЖЕВОЇ ДИФУЗІЇ

Типові залежності опору від часу дифузійного відпалювання для плівок Cu відносно малої товщини з тонким покриттям ( $d_n \sim 2$  нм) проілюстровані на рисунку 4. З даних, наведених на рисунку 4а, витікає, що нанесення покриття не призводить до відчутних змін опору. При відпалюванні при температурі 373 К (рис. 4б) спочатку спостерігається спад електроопору з 9,5 до 9 Ом, причому цей спад відбувається протягом часу порядку 1 хвилини.

Логічно було б припустити, що зменшення опору може бути пов'язане з заликовуванням залишкових дефектів в плівці Cu, але подальші дослідження показали помилковість цього припущення, оскільки падіння такого роду в плівковій системі Cu/П спостерігається навіть після трьох циклів термообробки та додаткової стабілізації плівки при температурі 373 К протягом 30 хвилин (див. рис. 5). Можливо це пов'язано з недостатнім значенням температури для заликовування дефектів. Таким чином, зменшення значення опору на початкових стадіях витримки при  $T_e = 373$  К характерно як для плівок Cu без покриття, так і для плівкової системи Ni/Cu/П. Тобто причина цього не пов'язана з дифузією атомів покриття Ni в об'єм плівки Cu.

Після вказаної зміни опору спостерігається явно виражене його зростання, що може бути пов'язано із зерномежевою дифузією. Часом дифузії вважається проміжок від закінчення падіння електроопору до виходу його на насичення. Порівнюючи між собою дані для плівок Cu з покриттям та непокритих плівок, що наведені на рисунках 4 та 5, можна відмітити наступне. У плівках Cu після мінімуму опір збільшується до значення, яке приблизно відповідає опору до початку витримки. В плівкових системах Ni/Cu/П опір збільшується на декілька Омів.

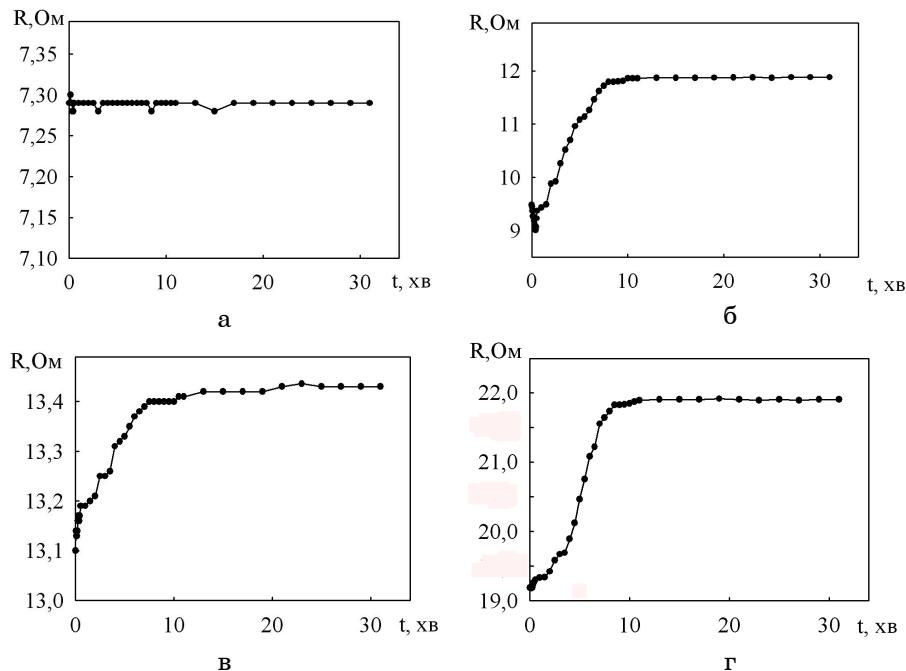


Рис. 4 – Залежність опору від часу відпалювання для системи  $Ni/Cu(40)/P$  при температурі 300, 373, 473 і 533 К (а-г відповідно)

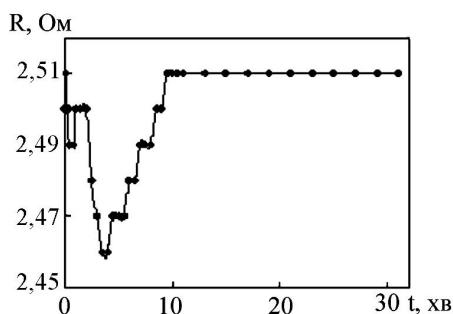


Рис. 5 – Залежність опору від часу відпалювання для плівки  $Cu$  ( $d = 52$  нм) при температурі 373 К

Були також проведені експерименти, під час яких покриття з Ni наносилося при  $T_b = 373$  К, та була проведена термостабілізація протягом 30 хвилин при цій же температурі (рис. 6а). У цьому випадку спостерігається початкове зменшення опору на величину порядка 0,05 Ом, після якого опір збільшується на 0,10 Ом. Така невелика загальна зміна опору може бути пов'язана з тим, що дифузія відбулася одразу під час конденсації шару покриття Ni на базисний шар Cu. Наступним етапом було проведення відпалювання цієї плівки при  $T_b = 473$  К (рис. 6 б).

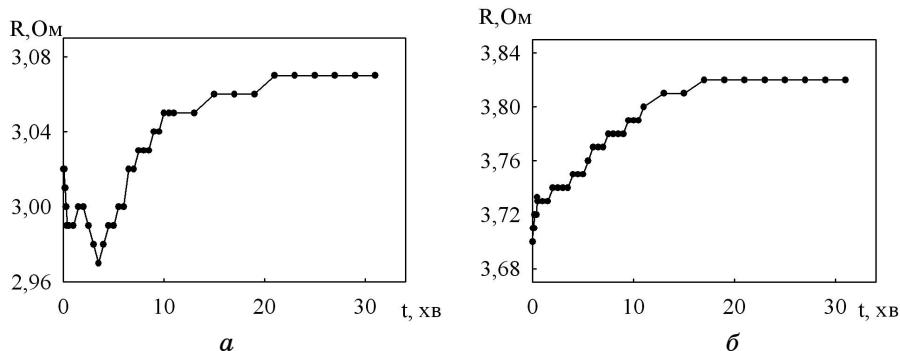


Рис. 6 – Залежність опору від часу відпалювання для плівкової системи  $\text{Ni}/\text{Cu}(51)/\text{P}$  при конденсації покриття при  $T_n = 373\text{ K}$  і відпалюванні при цій же температурі (а) та термостабілізації при  $T_e = 473\text{ K}$  (б)

Якщо порівняти дані для більш товстих плівок Сі з покриттям із Ni і результати для плівок  $\text{Ni}/\text{Cu}/\text{P}$  меншої товщини можна відмітити той факт, що, у зразках з більшою товщиною не фіксується початкове зменшення опору. Величина  $\Delta R$ , на яку збільшується опір, складає до 0,1 Ом порівняно з одиницями Ом для відносно тонких зразків. Такий результат може бути пов'язаний з проявом двох факторів. По-перше, опір більш товстих зразків має менше значення, у порівнянні з тонкими, тому і зміна опору буде меншою. По-друге, чим більша товщина плівки Сі, тим її середній розмір зерна має більше значення. Збільшення середнього розміру зерна викликає послаблення зерномежевої дифузії [6], оскільки плівки з більшим середнім розміром зерна мають меншу сумарну площину меж зерен. Необхідно відмітити, що у роботі [27] автори також спостерігали аналогічні зміни опору. Зокрема, найбільше значення  $\Delta R$  було зафіксовано у випадку, коли базисна плівка Сr мала відносно невелику товщину при товщині покриття Ge приблизно в 2,8 нм. Збільшення товщини базисної плівки призводило до різкого зменшення величини зміни опору плівок з покриттям.

Розглянемо результати аналогічних досліджень для плівок Ni з покриттям із Сі. Типові залежності електроопору від часу дифузійного відпалювання наведені на рисунку 7. Ці залежності відповідають аналогічним для плівкової системи  $\text{Ni}/\text{Cu}/\text{P}$  (див., наприклад, рисунок 4) за винятком зменшення опору при температурі 300 К, тобто після нанесення покриття, та початкового зменшення опору при відпалюванні при  $T = 373\text{ K}$ . Різкий ріст опору відбувається на величину декількох Ом при витримці при  $T = 373\text{ K}$ , після чого за час  $\tau^* = 18\text{ хв}$ . відбувається вихід його на насичення.

Аналогічним чином відбуваються зміни опору і при температурах витримки 473 та 533 К, але опір зменшується тільки на  $0,5 \div 0,8\text{ Ом}$  і час  $\tau^*$ , коли відбувається збільшення опору, також є меншим, ніж у випадку витримки при температурі 373 К.

Якщо порівняти електричний опір плівок з щойнонапиленим покриттям та електроопір плівок після витримки при  $T = 533\text{ K}$  і охолодженої до кімнатної температури, то можна відмітити, що у випадку плівок Сі з покриттям із Ni опір зростає всередньому на 100%, а для плівок Ni з мідним покриттям на 65%.

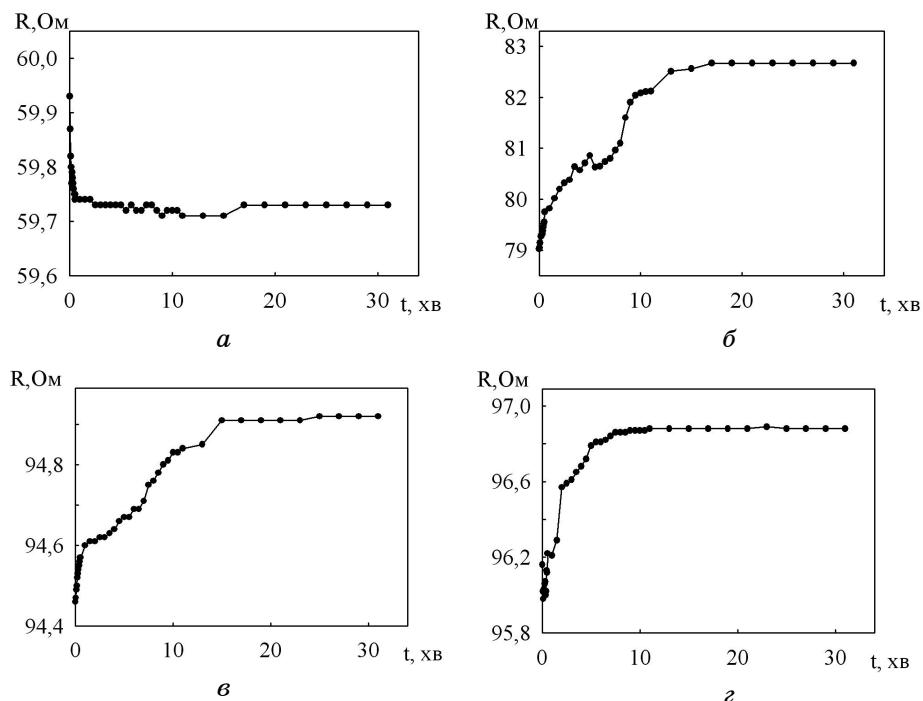


Рис. 7 – Залежність опору від часу відпалювання для системи  $\text{Cu}/\text{Ni}(60)/\Pi$  при температурі 300, 373, 473, 533 К (а-г відповідно)

Головна причина збільшення електричного опору у плівках з покриттям пов’язана зі зміною умов розсіювання електронів на межах зерен у базисних плівках за рахунок дифузії атомів іншого сорту. Розрахунок параметрів електроперенесення проводився нами у роботах [28-29]. Згідно цих даних, у плівках Cu (Ni) нанесення тонкого покриття із Ni (Cu) призводить до збільшення (зменшення) коефіцієнту розсіювання носіїв заряду  $R$  на межах зерен (коєфіцієнту проходження носіїв заряду –  $r$  меж зерен) за рахунок створення додаткових розсіювальних дефектів на межах. Так, наприклад, значення  $r$  і  $R$  склало 0,38 і 0,51 ( $\text{Ni}/\text{Cu}/\Pi$ ,  $T = 360$  К) та 0,94 і 0,05 ( $\text{Cu}/\text{Ni}/\Pi$ ,  $T = 300$  К), в порівнянні з 0,41 і 0,46 ( $\text{Cu}/\Pi$ ,  $T = 360$  К) та 0,97 і 0,02 ( $\text{Ni}/\Pi$ ,  $T = 300$  К) відповідно. Зміна  $|\Delta r/r|$  для плівок  $\text{Ni}/\text{Cu}/\Pi$  склала 7,3% та 2,6% – для плівок  $\text{Cu}/\text{Ni}/\Pi$  у порівнянні з базисними плівками без покриття [28-29].

Розрахунок коефіцієнтів зерномежевої дифузії для плівкових систем з покриттям проводився за формулою (2) і наведено в таблиці 1.

З отриманих результатів витікає, що збільшення середнього розміру зерна базисної плівки викликає зменшення коефіцієнта зерномежевої дифузії. Такий результат відповідає висновкам робіт [1, 18-20] та інших авторів, оскільки зменшення середнього розміру зерна призводить до збільшення коефіцієнта дифузії за рахунок того, збільшення загальної площи меж зерен.

**Таблиця 1 – Коефіцієнти зерномежевої дифузії**

Плівкова система	$d$ , нм/ $L$ , нм	$D \cdot 10^{19}$ , м <sup>2</sup> /с		
		$T_e = 373$ К	$T_e = 473$ К	$T_e = 533$ К
Ni/Cu/П	36/50	5,2	5,1	5,1
	40/53	5,0	4,7	4,6
	42/55	4,7	4,6	-
	45/60	4,6	4,6	4,5
	53/72	4,2	4,1	-
	60/79	4,1	4,0	4,0
	71/100	3,8	3,7	3,5
Cu/Ni/П	32/32	5,1	5,0	-
	40/36	4,8	4,5	4,4
	51/55	4,6	-	-
	60/69	4,5	4,3	4,1

Розраховані величини коефіцієнтів зерномежевої дифузії співпадають за порядком з величинами, отриманими нами методом ВІМС [26] та з відомими літературними даними, (наприклад, [1, 9-12, 18-20, 30-31]), де обрахунок  $D$  проводився як методом вторинної іонної мас-спектрометрії, так і методом оже-спектроскопії.

#### 4. ВИСНОВКИ

Висновки до даної роботи можна сформулювати наступним чином.

1. Під час витримки плівкових зразків з покриттям протягом 30 хвилин при температурах 373, 473 та 533 К спостерігається незворотне збільшення електроопору протягом часу порядку 6 ÷ 20 хвилин на величину від десятих долей до декількох Омів, що обумовлено дифузійними процесами атомів покриття в першу чергу по межам зерен.
2. При збільшенні середнього розміру зерна у базисних шарах відбувається зменшення коефіцієнта зерномежевої дифузії, оскільки зменшення середнього розміру зерна призводить до збільшення коефіцієнта дифузії за рахунок того, що загальна площа меж зерен у таких плівках більша.

Робота виконана при частковому фінансуванні в рамках держбюджетної теми № 0109U001387 (2009-2011) Міністерства освіти і науки України.

#### GRAIN-BOUNDARY DIFFUSION IN Cu AND Ni FILMS WITH THIN METALLIC OVERLAYER

**T.P. Hovorun, S.I. Protsenko, V.A. Pchelintsev, A.M. Chornous**

Sumy State University,  
2, Rimsky-Korsakov Str., 40007, Sumy, Ukraine  
E-mail: [achornous@nis.sumdu.edu.ua](mailto:achornous@nis.sumdu.edu.ua)

*The investigations of grain-boundary diffusion in Cu films with Ni thin overlayer and Ni films with Cu thin overlayer by low-temperature resistometric method where presented in this work. It was shown, that under the overlayer covering and the*

*thermal annealing the irreversible increase of electro-resistance on a size from tenth stakes to a few Ohm is observed. This is caused by grain boundary diffusion processes of overlayer atoms to the base layers.*

**Keywords:** GRAIN-BOUNDARY DIFFUSION, DIFFUSION PROCESSES, GRAIN BOUNDARY, THIN OVERLAYER, MEAN SIZE OF GRAIN.

### ЗЕРНОГРАНИЧНА ДИФФУЗІЯ В ПЛЕНКАХ Сі І Ni С ТОНКИМ МЕТАЛЛІЧЕСКИМ ПОКРЫТИЕМ

**Т.П. Говорун, С.І. Проценко, В.А. Пчелинцев, А.Н. Черноус**

Сумський національний університет,  
ул. Римського-Корсакова, 2, 40007, Суми, Україна  
E-mail: [achornous@nis.sumdu.edu.ua](mailto:achornous@nis.sumdu.edu.ua)

В работе проведено исследование зернограничной диффузии низкотемпературным резистометрическим методом в пленках Си с тонким покрытием из Ni и в пленках Ni с тонким покрытием из Си. Показано, что при нанесении покрытия и проведении термоотжига наблюдается необратимое увеличение электросопротивления на величину от десятых долей до нескольких Ом, что в первую очередь обусловлено диффузионными процессами атомов покрытия по границам зерен базисных слоев.

**Ключевые слова:** ЗЕРНОГРАНИЧНА ДИФФУЗІЯ, ДИФФУЗІОННІ ПРОЦЕССИ, ГРАНИЦА ЗЕРНА, ТОНКОЕ ПОКРЫТИЕ, СРЕДНИЙ РАЗМЕР ЗЕРНА.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. И.Е. Проценко, Тонкие пленки: сборник докладов 15-го Международного симпозиума «Тонкие пленки в электронике», 167 (Харьков: ННЦ ХФТИ: 2003).
2. К. Уивер, Диффузия в металлических пленках (Москва: Мир: 1973).
3. Р.Ю. Ракитин, Г.М. Полетаев, М.С. Аксенов, М.Д. Старостенков, *Письма в ЖТФ* **31**, №15, 44 (2005) (R.Yu. Rakitin, G.M. Poletaev, M.S. Aksenov, M.D. Starostenkov, *Tech. Phys. Lett.* **31** No8, 650 (2005)).
4. И. Каур, Диффузия по границам зерен и фаз (Москва: Машиностроение: 1991).
5. Р.П. Волкова, Л.С. Палатник, А.Т. Пугачев, *ФТТ* **24** №4, 1161 (1982).
6. Р.П. Волкова, Ю.А. Волков, *Металлофиз. новейшие технол.* **25** № 2, 227 (2003).
7. Е.А. Смирнов, А.К. Спиридонов, *Сборник материалов научной сессии МИФИ-2008* 7, 95 (Москва: «Конструкционные и композиционные наноматериалы»: 2008).
8. А.А. Назаров, *ФТТ* **45** №6, 1112 (2003) (A.A. Nazarov, *Phys. Solid State* **45** №6, 1166 (2003)).
9. С.М. Волошко, Н.Н. Макеева, С.И. Сидоренко, *Металлофиз. новейшие технол.* **15** № 8, 61 (1993).
10. В.В. Миронов, А.В. Покоев, В.Ф. Мазанко, *Металлофиз. новейшие технол.* **20** № 7, 18 (1998).
11. В.В. Бібік, Т.М. Гричановська, М. Маршалек, О.Б. Проценко, С.І. Проценко, *Металлофиз. Новейш. Технол.* **28**, № 6, 707 (2006).
12. С.В. Дивинский, С.М. Захаров, О.А. Шматко, *Успехи физ. мет.* **7** №1, 1 (2006).
13. В.В. Скороход, І.В. Уваров, І.В. Рагуля, *Фізико-хімічна кінетика в наноструктурних системах* (Київ: Академпереодика: 2001).

14. Л.В. Однодворец, С.И. Проценко, А.И. Салтыкова, *Металлофиз. новейш. технол.* **21** №8, 71 (1999).
15. І.Ю. Проценко, Ю.М. Овчаренко, А.М. Чорноус, Т.П. Говорун, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка* №5(38)-6(39), 50 (2002).
16. Л.В. Дехтярук, І.Ю. Проценко, А.М. Чорноус, *Успехи физ. мет.* **8**, 21 (2007).
17. A. Chornous, I. Protsenko, I. Shpetnyi, *Cryst. Res. Technol.* **39** №7, 602 (2004).
18. M.I. Danylenko, M. Watanable, C. Li, A.V. Krajnikov, D.B. Williams, M.A. Vasiliev, *Thin Solid Films* **444**, 75 (2003).
19. В.М. Авдеев, М.А. Васильев, Е.А. Погорелов, *Металлофиз. новейшие технол.* **28** №2, 193 (2006).
20. І.М. Пазуха, С.І. Проценко, І.Ю. Проценко, Н.І. Шумакова, І.В. Чешко, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка*, № 9(93), 7 (2006).
21. В.М. Косевич, В.І. Іевлев, Л.С. Палатник, *Структура межкристаллитных и межфазных границ* (Москва: Металлургия: 1980).
22. *Физико-химические свойства элементов: Справочник* (Ред. Г.В. Самсонова) (Киев: Наук. думка: 1965).
23. О.А. Білоус, В.В. Токмань, А.М. Чорноус, *Тонкие пленки: сборник докладов 13-го Международного симпозиума «Тонкие пленки в электронике»*, 177 (Харьков: ННЦ ХФТИ: 2001).
24. Н.М. Опанасюк, *Автореф. дис. к.ф.-м.н.: 01.04.07* (Суми: Вид-во СумДУ: 1999).
25. О.Б. Ласюченко, *Автореф. дис. к.ф.-м.н.: 01.04.07* (Суми: Вид-во СумДУ: 2001).
26. Т.П. Говорун, С.І. Проценко, І.О. Шпетний, А.М. Чорноус, А.І. Салтикова, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка* №1, 66 (2008).
27. K. Schoder, L. Walsh, *J. Vac. Sci. Technol. A* **9** № 3, 577 (1991).
28. T. Hovorun, A. Chornous, *Cryst. Res. Technol.* **41** № 5, 458 (2006).
29. Т.П. Говорун, А.О. Степаненко, А.М. Чорноус, *ФХТТ* **5** №2, 280 (2004).
30. М.А. Васильев, Г.И. Прокопенко, А.А. Ткачук, *Металлофиз. новейшие технол.* **24** №1, 53 (2002).
31. М.М. Нищенко, М.А. Васильев, С.І. Сидоренко, *Металлофиз. новейшие технол.* **23** №7, 983 (2001).