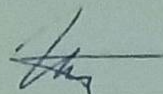


МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

Чурилов Ігор Георгійович



УДК 538.975

**ОСОБЛИВОСТІ  
ТЕРМІЧНОГО ВПЛИВУ НА МОРФОЛОГІЧНІ ЗМІНИ  
І МЕХАНІЗМ УТВОРЕННЯ РІДКОЇ ФАЗИ У КОНДЕНСОВАНИХ  
ОДНОКОМПОНЕНТНИХ ПЛІВКАХ (Pb, Sn, In, Bi)  
ТА У БІНАРНИХ ШАРУВАТИХ ПЛІВКАХ (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In)**

01.04.07 – фізика твердого тіла

**АВТОРЕФЕРАТ**

дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

Суми – 2024

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Харківському національному університеті імені В.Н. Каразіна Міністерства освіти і науки України.

**Науковий керівник:** кандидат фізико-математичних наук  
**Петрушенко Сергій Іванович**,  
старший науковий співробітник  
науково-дослідної частини  
Харківського національного університету  
імені В.Н. Каразіна

**Офіційні опоненти:** доктор фізико-математичних наук, професор  
**Ододворець Лариса Валентинівна**,  
завідувачка кафедри електроніки, загальної та  
прикладної фізики Сумського державного  
університету

доктор фізико-математичних наук, професор  
**Малихін Сергій Володимирович**,  
завідувач кафедри фізики металів та  
напівпровідників Національного технічного  
університету «Харківський політехнічний  
інститут»

Захист відбудеться «29» березня 2024 р. о 13:00 годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 55.051.02 при Сумському державному університеті за адресою: 40030, м. Суми, вул. Петропавлівська, 59, корпус К3, ауд. К002

E-mail: d55.051.02@sumdu.edu.ua.

Із дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Сумського державного університету за адресою: 40007, м. Суми, вул. Харківська, 116, а також на сайті інституційного репозитарію СумДУ. Режим доступу:

<https://sumdu.edu.ua/uk/science/science-info/scientific-infrastructure/specialized-council/permanent-specialized-council/111-55-051-02.html>

Автореферат розісланий «27» лютого 2024 р.

Вчений секретар  
спеціалізованої вченої ради



Шкурдода Ю. О.

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Одним із основних напрямів удосконалення сучасної цифрової техніки є мініатюризація функціональних елементів електронних пристроїв. Оскільки використання сучасних технологій дає можливість виготовляти напівпровідникові компоненти з активними елементами, розмір яких уже є меншим за 10 нанометрів, то при їх проектуванні та виготовленні нехтування розмірними ефектами стає неможливим.

Надзвичайно перспективними для подальших прикладних розробок є дослідження полікристалічних структур, які фактично є масивними зразками, але проявляють нанорозмірні властивості, які обумовлені їх внутрішньою будовою. До них належать, зокрема, структури типу «частинка в матриці» та багатошарові плівки. Малий розмір кристалітів або окремих фаз у цих об'єктах може істотно впливати на їх фізичні властивості. Загальною рисою нанокристалічних зразків є наявність у них великої кількості міжфазних або міжзеренних меж, із якими закономірно пов'язана надлишкова енергія. Її внесок у загальну енергію системи може приводити до того, що, наприклад, зниження температури плавлення буде спостерігатись навіть у досить масивних структурах. Таким чином, вивчення таких ефектів, які обумовлені внутрішніми поверхнями зразка та названі внутрішніми розмірними ефектами, дає можливість не тільки отримати нову інформацію про унікальні явища, які обумовлені внутрішньою взаємодією на межах фаз та кристалітів, але є необхідним і для вирішення багатьох важливих завдань фізики твердого тіла та мікроелектроніки.

Поряд із розмірним ефектом плавлення важливим явищем, яке суттєво впливає на властивості наноматеріалів, є термічна деградація шарів у багатошарових структурах. Зазвичай цей процес полягає у диспергуванні плівок, суцільних у вихідному стані, що відбувається під час їх нагрівання до певної температури. Інтенсивність цих процесів зростає із зменшенням характерного розміру зразка. У той же час диспергування плівок є досить складним процесом, ступінь прояву якого у тонких плівках визначається малою кількістю речовини, перенесення якої необхідно забезпечити для порушення суцільності шару, розмірною залежністю коефіцієнта дифузії, величина якого в тонких плівках може зростати на декілька порядків, а також умовами утворення рідкої фази. Отже, поглиблення та розширення наявних наукових знань щодо явищ термічного диспергування низькорозмірних структур має важливе значення для вирішення актуальних завдань сучасних технологій.

Необхідно відзначити, що вирішення багатьох важливих задач пов'язане з використанням колективних ефектів, які спостерігаються у масивах металевих частинок. Для отримання таких масивів досить перспективними є вакуумні методи. За умови їх використання формування масивів можливе при термічному диспергуванні суцільних плівок або при конденсації компонентів у рідку фазу. Варіюючи умови відпалу і конденсації плівок, вдається отримати масиви розрізнених острівців, основні параметри яких такі, як розмір та форма

частинок, а також коефіцієнт заповнення підкладки плівкою можна задавати. Незважаючи на наявність значної кількості досліджень структур, що впорядковуються за певним параметром під час відпалу вакуумних конденсатів, супутні фізичні процеси потребують подальшого вивчення.

Враховуючи вищевикладене та з огляду на перспективність використання вакуумних методів для створення функціональних нанорозмірних структур, дисертаційна робота є актуальною.

**Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.** Роботу виконано на кафедрі експериментальної фізики Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна в рамках держбюджетних науково-дослідних робіт: «Плавлення-кристалізація в конденсованих плівках металів та хімічних сполук» (№ 0109U001325), «Фазові перетворення в одно- та двокомпонентних нанорозмірних плівкових системах» (№ 0111U007956), «П'єзокварцевий резонатор як *in situ* метод дослідження фазових перетворень в нанорозмірних плівках металів та сплавів» (№ 0115U000478). «Фазові і структурні перетворення та електрокінетичні явища у двокомпонентних наносистемах» (№ 0115U000461), «Термічна стабільність та умови утворення впорядкованих острівцевих структур в полікристалічних плівках металів» (№ 0117U004867). Здобувач брав участь у зазначених НДР як виконавець.

**Мета і завдання дослідження.** Метою роботи є встановлення фізичної суті процесів, що впливають на термічне диспергування плівок, які були суцільними у вихідному стані та визначення особливостей утворення рідкої фази у одношарових (Pb, Sn, In, Bi) та двошарових (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In) полікристалічних плівках.

Для досягнення зазначеної мети необхідно було розв'язати такі **задачі**:

Дослідити кінетику твердофазного диспергування однокомпонентних плівок Pb, Sn, In, Bi та визначити енергії активації поверхневої самодифузії за даними температурної залежності середнього розміру наскрізних пор, які спостерігаються в плівках.

1. Шляхом дослідження кінетики пороутворення отримати концентраційну залежність енергії активації процесів диспергування для бінарних систем Bi/Sn, Pb/Sn з евтектичним характером взаємодії.

2. Виконати дослідження процесів формування острівцевих структур та впливу рідкої фази під час плавлення одношарових плівок Pb, Sn, In, Bi, та бінарних систем Bi/Sn, Pb/Sn різної товщини та різного складу.

3. Дослідити вплив внутрішнього розмірного ефекту на зміну температури утворення рідкої фази в одношарових плівках металів Pb, Sn, In, Bi та у шаруватих плівках евтектичного типу Bi/Sn, Pb/Sn.

4. Виконати порівняльний аналіз морфологічних особливостей структур, які утворюються під час рідкофазного диспергування плівок, що конденсовані у тверду фазу, та таких, що одразу осаджені у рідку фазу.

**Об'єкт дослідження** – процеси пороутворення, термічне диспергування та утворення рідкої фази в одношарових та багатошарових конденсованих

плівках, кінетика утворення масивів металевих частинок, формування яких обумовлено рідкою фазою у вакуумних конденсатах.

**Предмет дослідження** – вакуумні конденсати одношарових (Pb, Sn, In, Bi) та багатшарових (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In) плівок. Мікроструктура плівкових систем, та її еволюція що відбувається під час відпалювання плівок в умовах однорідного та градієнтного нагрівання.

У рамках дослідження використовували методи вакуумної конденсації зразків, растрову електронну мікроскопію, цифрові методи обробки зображень, та методи кількісного аналізу експериментальних даних, що базуються на моделях Палатника та Павлова.

### **Наукова новизна одержаних результатів**

1. Встановлено, що пори, зростання яких забезпечує перетворення початково суцільної полікристалічної плівки в острівцеву, утворюються на потрійних стиках ще при конденсації, тобто до початку відпалювання.

2. Уперше експериментально встановлено, що наявність кінцевого температурного інтервалу плавлення в полікристалічних плівках Pb, Sn, In, Bi та Bi/Sn, Pb/Sn, є проявом дії внутрішнього розмірного ефекту.

3. Показано, що розмірні ефекти, пов'язані з внутрішніми границями, які зникають при плавленні, можна кількісно описати виходячи з тих самих міркувань, що і для розмірних ефектів, зумовлених зміною поверхневої енергії при плавленні малих частинок.

4. Показано, що енергетичними чинниками початку утворення рідкої фази в одношарових плівках Pb, Sn, In, Bi та бінарних системах Bi/Sn і Pb/Sn є енергія міжзеренних та міжфазних меж.

5. Уперше шляхом порівняльного аналізу масивів частинок, що утворюються при плавленні плівок олова, які конденсовані за механізмом паракристал, та тих, що виникають внаслідок конденсації безпосередньо у рідку фазу, розкрито механізми морфологічної еволюції плівок різної товщини. Встановлено, що для плівок, які конденсовані у рідку фазу, характерні великі коефіцієнти заповнення. Для розплавлених плівок, що конденсовані у тверду фазу, такі коефіцієнти спостерігаються при деякій масовій товщині, меншій за критичну.

**Практичне значення отриманих результатів.** Результати роботи поглиблюють існуючі загальнонаукові уявлення щодо механізму твердофазного розпаду плівок, суцільних у вихідному стані, та є корисними для прогнозування термічної стабільності при розробці функціональних шарів сучасної наноелектроніки.

Результати стосовно внутрішнього розмірного ефекту, який спостерігається у фактично масивних зразках, розширюють теоретичні уявлення про механізми еволюції морфології плівок під час їх диспергування та про вплив міжзеренних і міжфазних меж на особливості фазових перетворень у нанокристалічних структурах.

Отримані результати щодо впорядкування речовини, та умов, що впливають на зміну морфології шарів при їх диспергуванні та при конденсації речовини у рідку фазу, можуть бути використані при розробці технологій формування функціональних наномасивів, які є складовою частиною фотокаталітичних генераторів, сенсорів, термоелементів тощо.

**Особистий внесок здобувача.** Особистий внесок здобувача полягає в формулюванні завдання, плануванні та проведенні експериментів. Автор особисто отримував окремі зразки, та брав участь у їх електронно-мікроскопічних дослідженнях. Приймав дієву участь у виготовлення та удосконалення технологічного оснащення експериментального та дослідницького обладнання. Спільно із співавторами статей та науковим керівником дисертаційної роботи брав участь у обговоренні та тлумаченні отриманих результатів, а також у підготовці текстів статей та доповідей наукових публікацій.

**Апробація результатів дисертації.** XV International conference «Physics and technology of thin films and nanosystems: ICPTTFN-XV», 11–16 May, 2015, Ivano-Frankivsk, Ukraine; XVI International conference «Physics and technology of thin films and nanosystems: ICPTTFN-XVI», 15–20 May, 2017, Ivano-Frankivsk, Ukraine; VIII Міжнародна науково-технічна конференція «Сенсорна електроніка і мікросистемні технології», 28 травня – 1 червня, 2018, Одеса, Україна; XVII International Freik Conference on the Physics and Technology of Thin Films and Nanosystems ICPTTFN-XVII, May, 20–25, 2019, Ivano-Frankivsk, Ukraine; 9th IEEE International Conference on Nanomaterials: «Applications & Properties», Sep 15–20, 2019, Odesa, Ukraine; XIV Міжнародна наукова конференція «Фізичні явища в твердих тілах», 3–6 грудня, 2019, Харків, Україна; Ukrainian Conference with International participation "Chemistry, Physics and Technology of Surface" dedicated to the 90th birthday of Aleksey Chuiko, Academician of NAS of Ukraine, 2020, Kyiv, Ukraine.

**Публікації.** За темою дисертації здобувачем у співавторстві опубліковано 22 наукові праці, серед яких 2 розділи у монографіях, опублікованих у виданні Springer Nature, 10 статей (4 – у журналах, що індексуються у БД Scopus 5 – у фахових наукових журналах України, одна – яка додатково відображає результати роботи), 10 тез доповідей у матеріалах наукових конференцій.

**Структура і обсяг дисертації.** Дисертаційна робота складається з вступу, п'яти розділів, висновків, списку використаних джерел та одного додатку. Зміст досліджень викладено на 125 сторінках, включаючи 60 рисунків, обсяг основного тексту складає 100 сторінку. Список використаних джерел, викладений на 20 сторінках, містить 171 бібліографічне найменування.

## ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність обраної теми дисертаційної роботи. Визначено мету і завдання дослідження та показано зв'язок виконаної дисертаційної роботи з науковими програмами, темами. Сформульована наукова новизна отриманих результатів та наведено інформацію про наукове значення та можливе практичне використання результатів досліджень. Визначено особистий внесок здобувача, наведені дані про апробацію роботи та інформація про публікації та структуру дисертації.

У першому розділі «Плавлення та термічна стабільність плівкових структур. Огляд наукової літератури» міститься огляд та аналіз літератури за темою дисертації. Наведені теоретичні та експериментальні дані щодо впливу характерного розміру системи на ступінь термічної стабільності та процес утворення рідкої фази в нанодисперсних однокомпонентних і бінарних плівках.

Проведений аналіз дозволив сформулювати гіпотезу про те, що прояв розмірного ефекту плавлення може мати місце для масивних нанокристалічних зразків завдяки їх внутрішній будові. Встановлено, що кінетика термічного диспергування залежить від характерного розміру складових елементів системи, умов відпалу та технології препарування зразків. Зроблено припущення про те, що утворення рідкої фази впливає на інтенсивність термічного диспергування та плавлення нанодисперсної системи.

На підставі проведеного аналізу зроблено висновок про обмеженість наявних даних щодо прояву внутрішнього розмірного ефекту плавлення, особливо для масивних нанокристалічних зразків та бінарних систем із шаруватою структурою. Слабовивченими на сьогодні є й питання початкових етапів диспергування суцільних шарів та впливу рідкої фази на морфологічні зміни у вакуумних конденсатах. У той же час розуміння процесів, які відбуваються при диспергуванні і плавленні плівок, дає можливість розробити методики цілеспрямованого формування впорядкованих структур із заданими властивостями. Враховуючи це обґрунтована мета дисертаційної роботи та завдання дослідження.

У другому розділі «Об'єкти дослідження та методи проведення експериментів» описано та обґрунтовано вибір об'єктів дослідження та методів їх препарування.

Для досліджень були обрані одношарові плівки легкоплавких металів Pb, Sn, In, Bi а також багатошарові плівки бінарних систем Bi/Sn, Pb/Sn, та Pb/In. Зразки препарували у високому вакуумі конденсацією з незалежних джерел із швидкістю до 10 нм/с на підкладки аморфного вуглецю, молібдену або нікелю. Контроль товщини плівки конденсованої речовини здійснювали з використанням методу мікрозважування, який реалізовано з використанням кварцового резонатора.

Для отримання зразків використовували різні методи формування плівок та їх комбінації. Зокрема, метод змінного стану для отримання серії зразків, що



знаходяться при різних температурах, а також метод змінного складу, який дає можливість отримувати зразки із дискретною або безперервною зміною товщини плівки чи концентрації компонентів. Вказані методи використовували також у диференціальній модифікації, коли в рамках одного вакуумного циклу, тобто за однакових умов на одній підкладці осаджували декілька зразків, що відрізнялися за складом, товщиною або кількістю шарів.

Електронно-мікроскопічні дослідження плівок проводили з використанням растрових електронних мікроскопів: Jeol JSM-840 і Vega3 Tescan LMN. Мікроскоп Vega3 Tescan LMN обладнано детекторами вторинних і зворотно розсіяних електронів, а також рентгенівським спектрометром з дисперсією за енергіями (з можливістю побудови елементних карт). Для оптичної мікроскопії використовували металографічний мікроскоп MIM-8, оснащений цифровою камерою для реєстрації зображень.

Для аналізу отриманих електронно-мікроскопічних зображень використовували кілька систем цифрової обробки, призначених для вирішення конкретних завдань. Розроблене у лабораторії оригінальне програмне забезпечення дало можливість визначити коефіцієнт заповнення підкладки плівкою, а також площу, довжину межі і положення кожного з об'єктів.

У **третьому розділі** «Твердофазне диспергування плівок, суцільних у вихідному стані» наведені та проаналізовані результати експериментальних досліджень, спрямованих на вивчення твердофазного диспергування плівок. Шляхом аналізу температурної залежності середнього розміру наскрізних пор, що спостерігаються в плівках металів Sn та Pb, конденсованих на аморфну вуглецеву підкладку, розрахована енергія активації поверхневої самодифузії. Для плівок Bi/Sn побудована концентраційна залежність енергії активації процесів, які здійснюють диспергування зразків.

За результатами мікроскопічних досліджень встановлено, що конденсовані плівки досліджених металів під час термічного впливу втрачають суцільність. Із збільшенням температури відпалу в плівках починають утворюватись наскрізні пори, середній розмір яких збільшується з температурою (Рисунок 1).

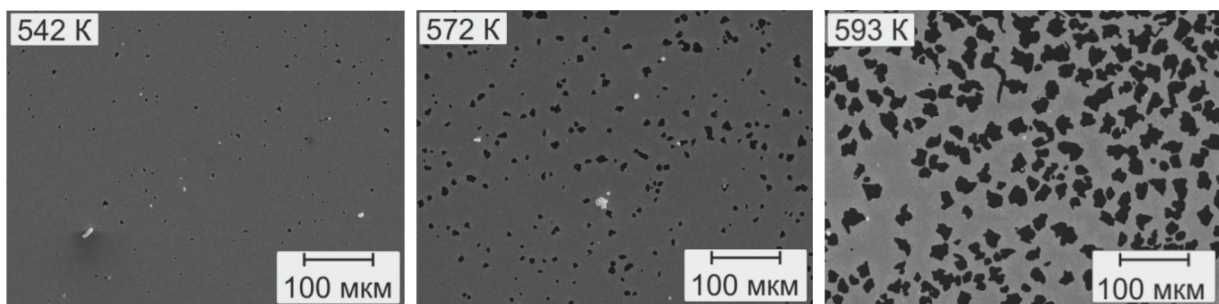


Рисунок 1 – РЕМ зображення плівки Рb після відпалу до різних температур

Показано, що із зростанням температури коефіцієнт заповнення підкладки плівкою  $\eta$  (Рисунок 2), зменшується аж до досягнення температури плавлення  $T_s$ , після чого він набуває сталого значення. Закономірно, що середня площа



пор  $S$  зростає з температурою (Рисунок 3). Варто зауважити, що для речовини на незмочуваній підкладці, перевищення температури плавлення викликає утворення острівцевої структури, для якої поняття наскрізних пор незастосовне.

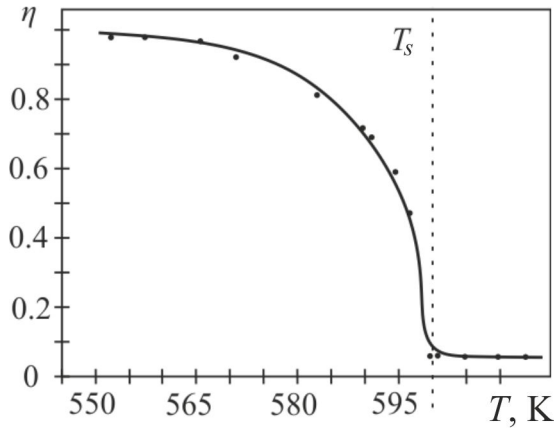


Рисунок 2 – Залежність коефіцієнта заповнення підкладки  $\eta$  від температури для плівок Pb

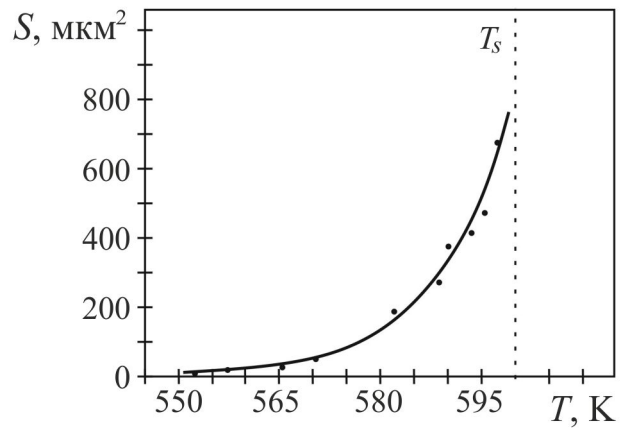


Рисунок 3 – Залежність середньої площі пор  $S$  від температури для плівок Pb

Для кількісного опису процесів, що відбуваються при утворенні пор, була використана модель зростання пори, запропонована Л. С. Палатником, з використанням якої для радіусу пори ( $r$ ) можна записати:

$$\ln(r) \approx \frac{E_a}{kT}, \quad (1)$$

де  $E_a$  – енергія активації процесу, завдяки якому відбувається зростання пори,  $k$  – стала Больцмана. Стосовно фізичного змісту величини  $E_a$  варто відзначити, що мікроскопічні дослідження меж пор вказують на наявність локальних стовпців, які вочевидь утворюються атомами, що відтікають від пори, що росте. Таким чином утворення пор відбувається шляхом дифузії атомів, а  $E_a$  – відповідає дифузії саме атомів, а не вакансій. Відповідно до моделі Палатника, зважаючи на співвідношення характерних розмірів у досліджуваних плівках, її варто ототожнити з енергією активації поверхневої самодифузії.

За даними температурної залежності логарифма середнього розміру пор  $r$  від зворотної абсолютної температури, тобто за графіками Арреніуса (Рисунок 4) було визначено енергії активації поверхневої самодифузії для плівок свинцю (1.2 eV), олова (1.1 eV) та індію (0.6 eV).

Під час вивчення бінарних плівок було встановлено, що при відпалюванні в них, так само як і в однокомпонентних плівках, утворюються наскрізні пори. Їх середній розмір  $r$  за однакової тривалості термічного впливу визначається температурою відпалу та концентрацією компонентів бінарної системи.

Графіки Арреніуса для бінарної системи Bi/Sn, як і для плівок чистих металів, добре описуються лінійною функцією (Рисунок 5). Це дає можливість

оцінити концентраційну залежність енергії активації, використовуючи підхід, апробований для однокомпонентних плівок металів.

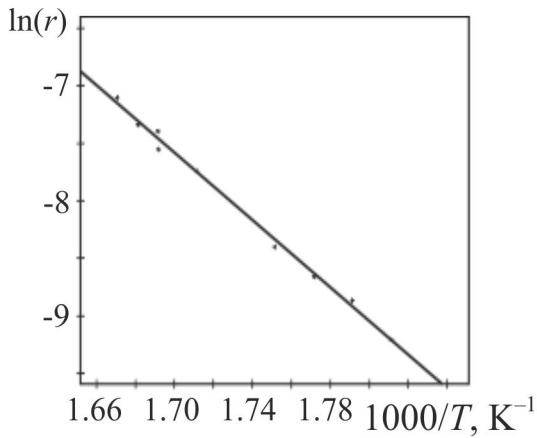


Рисунок 4 – Графік Арреніуса для плівок Pb

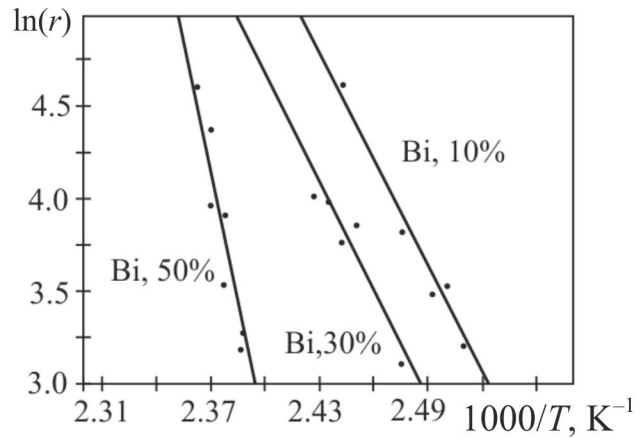


Рисунок 5 – Графіки Арреніуса температурної залежності середнього розміру наскрізних пор, отримані для плівок Bi/Sn, які відповідають різним концентраціям Bi

Встановлено, що залежність енергії активації поверхневої самодифузії від концентрації Bi має нелінійний характер (Рисунок 6).

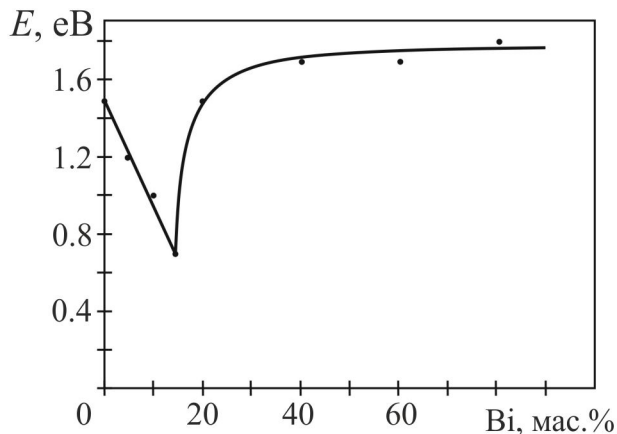


Рисунок 6 – Залежність енергії активації дифузії від концентрації вісмуту в плівках Bi/Sn

У четвертому розділі «Внутрішній розмірний ефект і плавлення плівок» наведені та проаналізовані експериментальні результати, присвячені впливу внутрішніх меж, таких як поверхня кристалітів чи межі між шарами металів у шаруватих плівках, на температуру утворення рідкої фази у вакуумних конденсатах (досліджено однокомпонентні плівки Pb, Sn, In, Bi, а також бінарні шаруваті системи Pb/Sn і Bi/Sn). Визначені величини зміни температури утворення рідкої фази та оцінено енергію міжзеренних та міжфазних меж.

На підкладках, вздовж яких після конденсації плівки було створено градієнт температур, візуально спостерігаються три зони, які відрізняються світлорозсіюванням (Рисунок 7). Дослідження однокомпонентних плівок показали, що межа  $T_s$  чітка, а температура, якій вона відповідає, не залежить від

масової товщини плівки. На ділянках підкладки, які відповідають температурам, що перевищують  $T_s$ , спостерігаються сферичні частинки. Це свідчить про те, що речовина плівки під час термічного впливу досягла рідкого стану. В той же час межа  $T_d$  з боку більш низької температури розмита, а сама температура  $T_d$  зменшується зі зменшенням товщини зразка. Нижче межі  $T_d$  плівка залишається суцільною та не має ознак утворення рідкої фази.

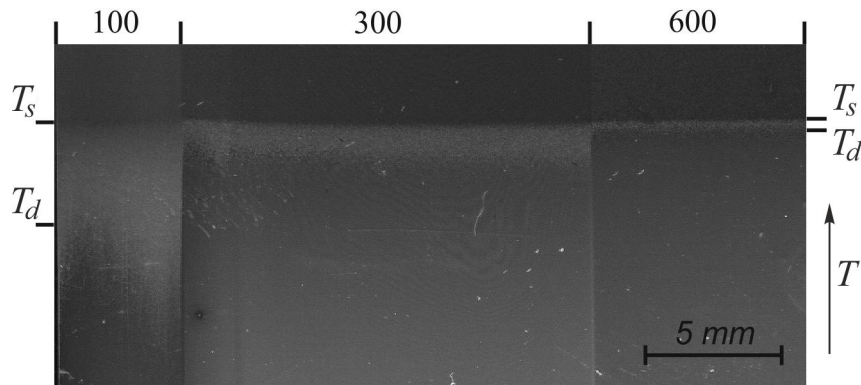


Рисунок 7 – Оптичне зображення плівок Sn товщиною 100, 300 і 600 нм що були відпалені на підкладці з градієнтом температур

Між межами  $T_s$  та  $T_d$  розташована ділянка плівки, на якій із зростанням температури спостерігається поступова зміна її морфології від суцільної до острівцевої структури (Рисунок 8). Аналіз форми острівців свідчить про те, що між температурами  $T_s$  та  $T_d$ , поблизу верхньої границі, існує вузький температурний інтервал в якому рідка та тверда фази співіснують одна з одною. Тобто плавлення плівок відбувається саме у цьому інтервалі температур, та починається дещо раніше за  $T_s$ .

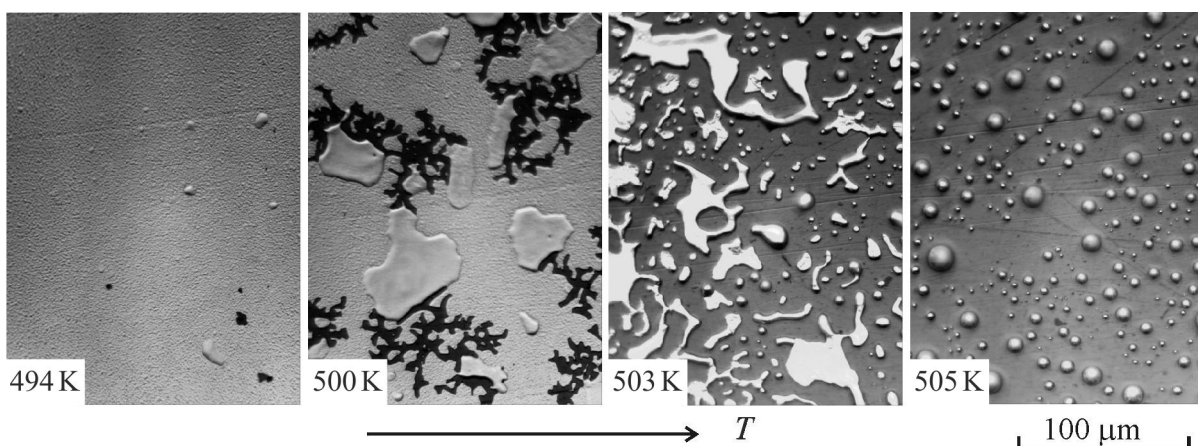


Рисунок 8 – Мікроструктура плівок олова товщиною 100 нм, які були відпалені при різних температурах

Пояснити плавлення плівки у деякому інтервалі температур можна тим, що досліджувані зразки складаються з величезної кількості хаотично орієнтованих кристалітів різного розміру. У такій високодисперсній системі спостерігається

велика кількість міжзеренних меж, які зникають при плавленні. Саме зникнення міжзеренних меж, з якими пов'язана деяка енергія, що забезпечує відповідний внесок в енергію Гібса, є термодинамічним чинником зниження температури плавлення окремого кристаліта. Оскільки кристаліти мають різні розміри (Рисунок 9), а відносний внесок міжзеренної енергії збільшується зі зменшенням розміру зерна, загальне плавлення полікристалічної плівки буде відбуватися не при конкретній температурі, а в деякому температурному інтервалі, величина якого, вірогідно, визначається розподілом кристалітів за розмірами і значенням міжзеренної енергії.

Для енергії міжзеренних меж ( $\sigma_{12}$ ) використано вираз, отриманий у рамках термодинамічного підходу з використанням моделі Павлова

$$\sigma_{12} \approx \frac{2\Delta T\lambda tS}{T_S l} = \frac{2\Delta T\lambda S}{T_S l}, \quad (2)$$

де –  $T_S$  температура плавлення,  $\Delta T$  – зниження температури плавлення,  $\lambda$  – нормована на об'єм питома теплота плавлення,  $S$  – середня площа зерна у площині плівки,  $t$  – товщина плівки,  $l$  – середня довжина межі кристалітів.

З використанням отриманих даних щодо зниження температури плавлення для полікристалічної плівки Рb визначене середнє значення енергії міжзеренних меж, яке становить 230 мДж/м<sup>2</sup>. Для визначення впливу середнього розміру кристалітів на температурний інтервал, в якому відбувається плавлення, була отримана серія плівок Рb/С, які конденсували на підкладки, що мали різну температуру: від 80 К до 300 К. Отримана залежність величини температурного інтервалу плавлення від середнього розміру кристалітів  $R$  має гіперболічний вигляд (Рисунок 10). У той же час у дослідженому інтервалі розмірів зерен не було виявлено розмірної залежності міжкристалітної енергії.

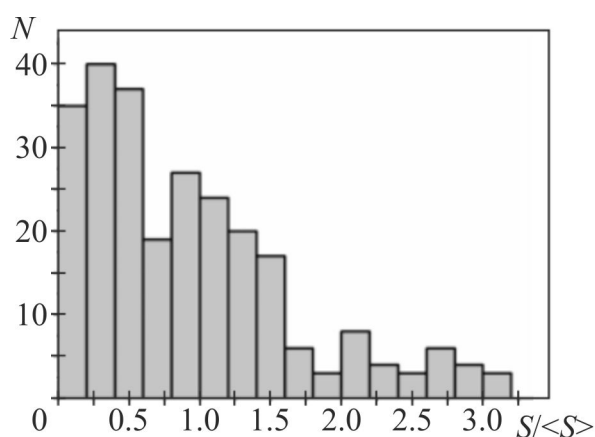


Рисунок 9 – Розподіл кількості кристалітів за відносними розмірами в плівках Рb товщиною 1 мкм

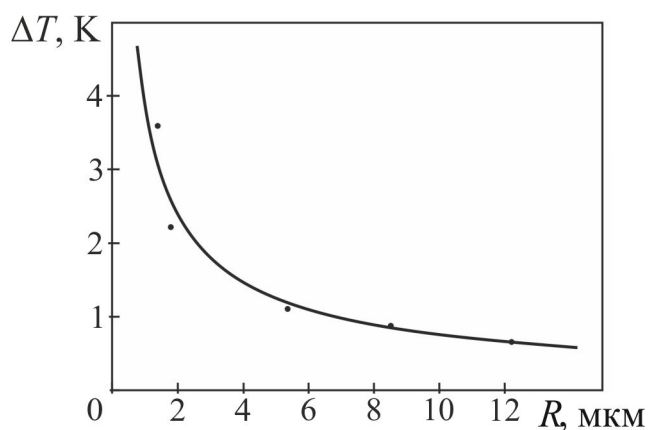


Рисунок 10 – Залежність інтервалу плавлення полікристалічної плівки Рb від середнього розміру зерен

Середня міжзеренна енергія для полікристалічної плівки олова, визначена за тією самою методикою, складає 140 мДж/м<sup>2</sup>. Отримані значення знаходяться на

рівні 0.3 від величини поверхневої енергії рідкої фази. Це узгоджується з даними прямих вимірювань, наявними в літературі.

При дослідженні внутрішнього розмірного ефекту у шаруватих структурах використовували бінарні системи евтектичного типу. З метою більш наочного спостереження внутрішнього розмірного ефекту на протяжну підкладку конденсували поряд дві плівки. Одна була контрольною двошаровою, інша мала ту саму масову товщину, однак складалася з по чергово конденсованих шарів Pb/Sn чи Bi/Sn. Після цього вздовж підкладки створювали градієнт температури, що забезпечувало повне плавлення зразка в одній частині та збереження кристалічного стану в іншій. Потім підкладку охолоджували до кімнатної температури та плівки досліджували мікроскопічними методами.

Так само, як і у випадку однокомпонентних, на підкладках з двошаровими та шаруватими плівками спостерігаються дві межі, які розділяють ділянки з різним світлорозсіюванням (Рисунок 11).

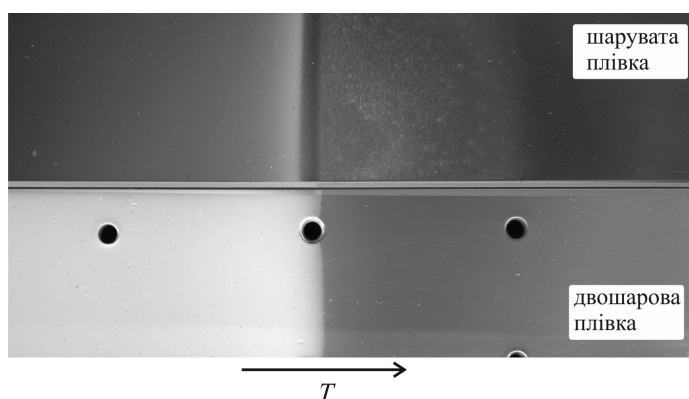


Рисунок 11 – Підкладка з двошаровими та шаруватими плівками Pb/Sn

Між цими межами знаходиться перехідна зона, у якій можна водночас спостерігати як кристалічну фазу, так і ознаки утворення рідкої фази. В бінарних контактних парах евтектичного типу рідка фаза утворюється за евтектичної температури при контактному плавленні на міжфазній межі. Спостережувана морфологія відпалених плівок свідчить про кінцевий температурний інтервал такого утворення евтектичного розплаву, тобто в зразках спостерігається розмиття температури контактного плавлення. Температурний інтервал контактного плавлення для шаруватих зразків більший ніж для двошарових. Наприклад, він складає 4 К в плівках Pb/Sn (по 10 шарів олова і свинцю), та лише 0.4 К для двошарової системи тієї ж загальної товщини. Тобто можна говорити про те, що плавлення шаруватих зразків починається при більш низькій температурі. Це можна пояснити впливом міжфазної енергії поверхонь, які розділяють окремі шари.

Для багатошарової плівки, яка складається з шарів компонентів А і В, що чергуються, для енергії міжфазних меж можна отримати:

$$\sigma_{AB} \approx \frac{1}{2}(t_A + t_B)\lambda \frac{\Delta T}{T_S}, \quad (3)$$

де  $\sigma_{AB}$  – міжфазна енергія межі між компонентами,  $t_A$  і  $t_B$  – товщини шарів компонентів А і В.

З використанням літературних даних значення прихованої теплоти плавлення було отримано, що для багатошарових плівок значення міжфазної енергії межі розділу шарів олово-вісмут становить  $33 \text{ мДж/м}^2$ , а олово-свинець –  $45 \text{ мДж/м}^2$ .

Відзначимо, що плавлення у деякому температурному інтервалі, хоч і в меншій мірі, спостерігається і в двошарових зразках. Ймовірно, в цьому випадку ми маємо справу з проявом внутрішнього розмірного ефекту, обумовленого полікристалічною структурою шарів, який є аналогічним до явищ, що спостерігаються у однокомпонентних плівках.

У п'ятому розділі «Впорядкування частинок речовини при термічному впливі, як засіб створення функціональних масивів» подані результати, присвячені дослідженню морфологічних змін, які за участю рідкої фази відбуваються при нагріванні плівкових систем.

Як об'єкти дослідження використовували плівки металів і бінарних систем двох типів. А саме конденсовані в тверду фазу, а потім розплавлені, і такі, які відразу ж конденсували у рідку фазу.

Встановлено, що плівки, конденсовані за механізмом пара-кристал, після плавлення складаються з частинок сферичної форми (Рисунок 12). Порівнюючи зображення можна бачити, що коефіцієнт заповнення підкладки  $\eta$  та розмір частинок змінюються із масовою товщиною плівки.

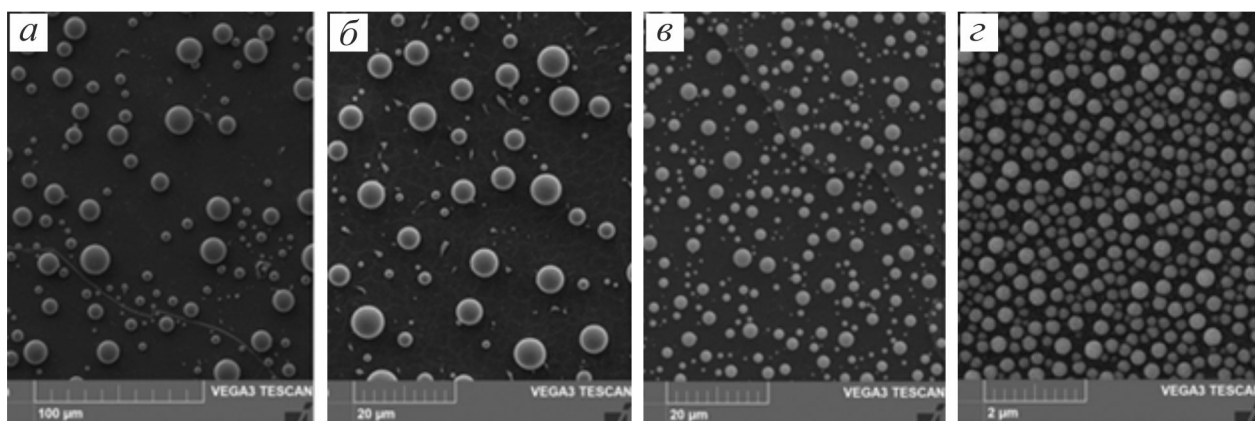


Рисунок 12 – РЕМ зображення плівок Sn після плавлення. Масова товщина шару олова: а) 1000 нм, б) 420 нм, в) 275 нм, г) 70 нм

Коефіцієнт заповнення підкладки плівкою, що зазнала повного плавлення, з товщиною змінюється нелінійно (Рисунок 13). Для плівок олова товщиною понад 0.5 мкм, коефіцієнт практично сталий, однак зі зменшенням товщини спостерігається досить швидке його зростання.

Гістограми розподілу за розмірами частинок, на які розпадаються плівки досліджених товщин, мають один максимум. Зі збільшенням масової товщини



плівки ширина розподілів збільшується, а їх максимум зміщується у бік більших розмірів.

Для кількісної оцінки енергетичних стимулів диспергування у наближенні, що плівка товщиною  $t$  на незмочуваній підкладці розпадається на острівці однакових розмірів, можна отримати вираз для надлишкової енергії, яка вивільняється при диспергуванні

$$f = \sigma_l \left(1 - \cos \theta - \frac{3t}{R}\right), \quad (4)$$

де  $\sigma_l$  – енергія вільної поверхні рідкого розплаву,  $\theta$  – кут змочування,  $R$  – радіус частинки, що утворилася. В реальних зразках під  $R$  можна розуміти значення найбільш ймовірного радіусу, що відповідає максимуму гістограм розподілу.

Виграш енергії  $f$  при утворенні острівця під час плавлення суцільної плівки (Рисунок 14), так само як і коефіцієнт заповнення підкладки плівкою описується нелінійною залежністю, хід якої змінюється на схожій критичній товщині. Це можна пояснити тим, що при досягненні деякої критичної товщини змінюється механізм диспергування плівки. За малих товщин розпад плівки на острівці здійснюється ще в твердій фазі, а за більших – переважно після плавлення шляхом рідкофазної течії. Аналізуючи дані про розміри та густоту кристалітів й острівців можна зробити висновок про те, що фізичним чинником ініціювання термічного диспергування плівки є енергія меж зерен. За оцінками вона складає лише кілька відсотків від загальної величини  $f$ , проте саме наявність такої енергії та відповідної локальної неоднорідності свіжоконденсованих плівок стимулює початковий розпад суцільного шару на окремі острівці, які в подальшому еволюціонують як єдине ціле.

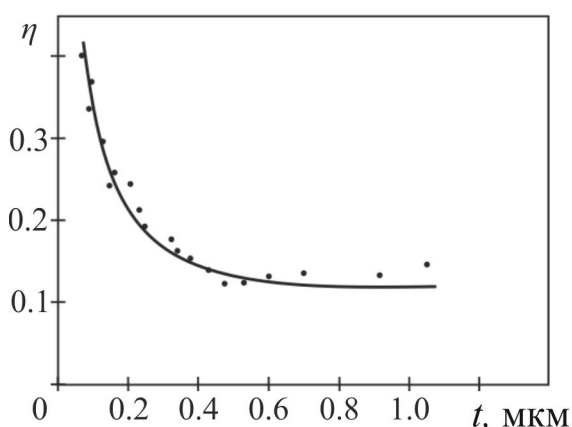


Рисунок 13 – Залежність коефіцієнта заповнення підкладки плівкою  $\eta$  від масової товщини  $t$  для розплавлених плівок олова

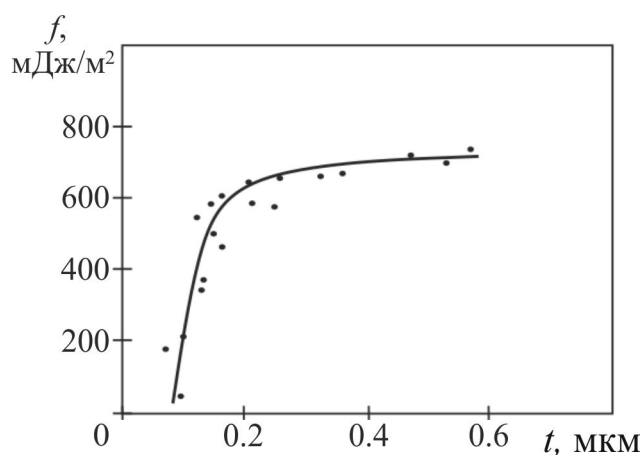


Рисунок 14 – Залежність надлишкової енергії  $f$  суцільної плівки, від найбільш ймовірного радіусу частинок олова, що утворюються при плавленні

Дослідження бінарної системи Pb/In на підкладці з молібдену показали, що так само, як і у випадку однокомпонентних плівок, такі зразки після плавлення

складаються з частинок сферичної форми. Найбільш ймовірний розмір частинок практично не залежить від концентрації компонентів (Рисунок 15). Проте для однокомпонентних плівок In і Pb характерні більш вузькі розподіли, яким відповідає менше значення найбільш ймовірного радіусу і напівширини.

Збільшення товщини плівки Pb/In викликає збільшення найбільш ймовірного розміру частинок, що виникають під час її плавлення (Рисунок 16), так само як і для плівок Sn і Pb на підкладці з вуглецю. Це супроводжується збільшенням напівширини гістограм розподілу.

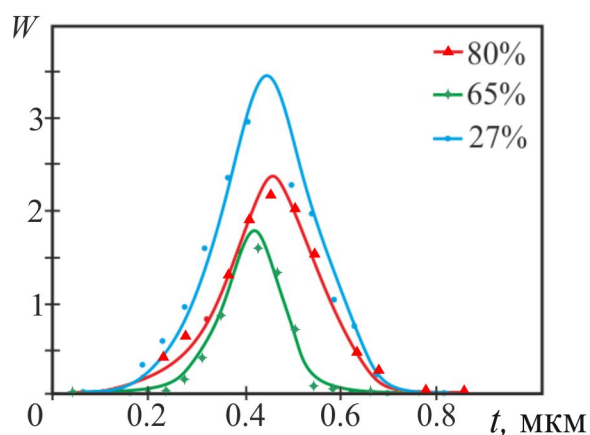


Рисунок 15 – Розподіл острівців за розмірами, що відповідають системі Pb/In із різною концентрацією компонентів

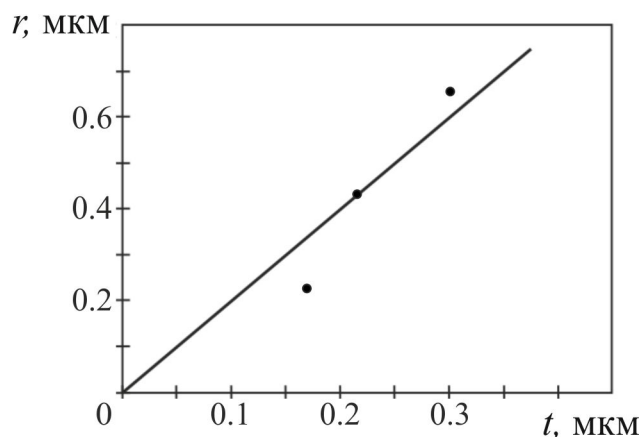


Рисунок 16 – Залежність найбільш ймовірного радіусу частинок від загальної товщини легкоплавкого шару в плівках Pb/In

При дослідженні структур, які формуються при конденсації речовини в рідку фазу (Рисунок 17), встановлено, що найбільш явна відмінність між зразками, які зазнали плавлення, та тими, що одразу були конденсовані в рідку фазу, полягає у значенні коефіцієнта заповнення підкладки плівкою.

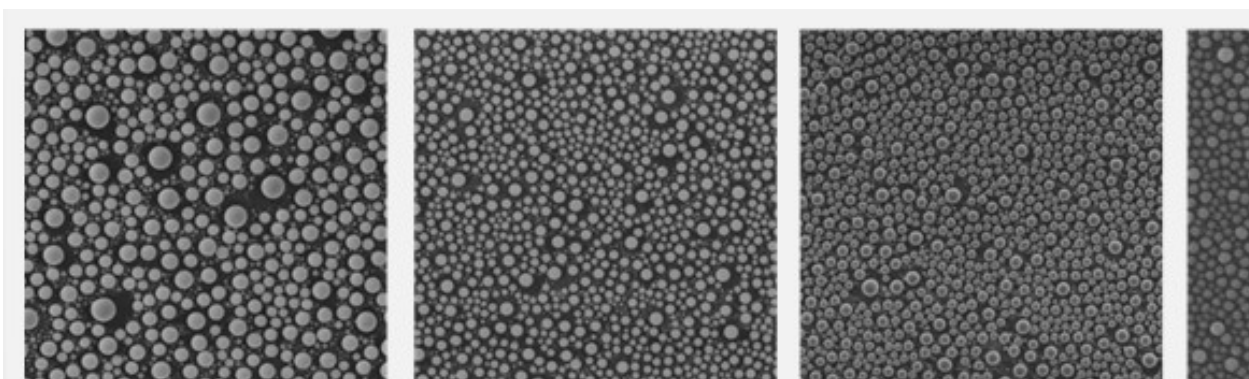


Рисунок 17 – Плівки Sn різної масової товщини, які отримані конденсацією в рідку фазу. Для зразків, отриманих в такий спосіб, коефіцієнт заповнення підкладки плівкою фактично не залежить від товщини та становить 0.4

При конденсації за механізмом пара-рідина навіть для плівок Sn, товщиною понад 800 нм, коефіцієнт заповнення підкладки плівкою  $\eta$  перевищує 0.4, тобто

має значення, які в разі плівок, що були розплавлені після конденсації у тверду фазу, спостерігаються лише при товщині зразка менше ніж 100 нм.

Відмінності у морфології плівок, отриманих безпосередньо конденсацією в рідку фазу, і тих, які конденсували за механізмом пара-кристал, а потім нагрівали до температури плавлення, можна пояснити тим, що при конденсації за механізмом пара-рідина плівки вже безпосередньо у процесі конденсації стають острівцевими. У випадку конденсації за механізмом пара-кристал, такий механізм можливий лише для найтонших зразків, що під час осадження ще не утворюють зв'язної структури.

Узагальнений аналіз мікроструктур, які утворюються при відпалюванні плівок, дозволяє запропонувати наступний механізм перерозподілення речовини при осадженні та відпалюванні шарів, отриманих вакуумною конденсацією. Формування зразків, що осаджуються в тверду фазу відбувається за острівцевим механізмом та добре описується в рамках моделі зон живлення – наявні острівці збільшують свій розмір за рахунок захоплення атомів, що потрапляють на підкладку поряд з існуючими острівцями. Нові центри осадження можуть з'явитись на вільних ділянках підкладки. Поступово зі збільшенням товщини острівці зливаються один з одним, утворюючи зв'язну структуру, яка внаслідок рекристалізації стає полікристалічною плівкою з мікронними зернами. При її відпалюванні зі зростанням температури спочатку з'являються пори, розмір яких зростає з температурою дифузійним шляхом. Потім, безпосередньо перед температурою плавлення, завдяки внутрішньому розмірному ефекту, в зразках утворюється рідка фаза, яка сприяє диспергуванню та перетворенню суцільної плівки в острівцеву. Цей процес переважно відбувається по границях зерен полікристалічної плівки. Після цього острівці еволюціонують незалежно. Вони не мають енергетичних чинників для подальшого диспергування та внаслідок прагнення системи до мінімізації поверхневої енергії збираються в частинки сферичної форми. У випадку осадження плівок в рідку фазу, завдяки більшій рухливості розплаву, значно збільшується розмір зон живлення, що перешкоджає об'єднанню острівців, які весь час еволюціонують незалежно. В цьому випадку одразу виникає острівцева плівка, яка не має фізичних стимулів до зміни морфології.

## ВИСНОВКИ

У дисертації встановлена фізична суть процесів, що відповідальні за термічне диспергування, і визначенні особливостей утворення рідкої фази у одношарових полікристалічних плівках металів (Pb, Sn, In, Bi) та шаруватих бінарних плівках (Bi/Sn, Pb/Sn).

У результаті проведеного дослідження:

1. Встановлено, що термічне диспергування плівок Sn та Pb, а також шаруватих плівок Bi/Sn, які були суцільними у вихідному стані, починається у твердій фазі. Це обумовлено поступовим ростом середнього розміру наскрізних

пор, які виникають на потрійних стиках кристалітів ще у процесі конденсації зразків.

2. З використанням моделі Палатника визначено енергію активації поверхневої самодифузії, що складає 1.2 еВ, 1.1 еВ та 0.6 еВ для плівок свинцю, олова та індію відповідно. Для двошарових зразків Bi/Sn побудовано концентраційну залежність енергії активації дифузійних процесів, які обумовлюють твердофазне диспергування плівок. Експериментально показано, що зі збільшенням вмісту вісмуту енергія активації швидко зменшується до мінімуму 0.7 еВ при концентрації компонентів, яка відповідає граничній розчинності вісмуту в олові. Після цього вона швидко зростає, досягаючи значення 1.6 еВ при концентрації 30 мас.%, і надалі практично не змінюється. Тобто енергія активації поверхневої дифузії в двофазній концентраційній області виявляється незалежною від концентрації компонентів.

3. Уперше встановлено що досить широкий розподіл кристалітів за розмірами (відхилення площі кристалітів від середнього розміру складає близько 70%) у полікристалічній структурі вакуумних конденсатів Pb, Bi, Sn та In є причиною поступового плавлення однокомпонентних плівок навіть за умови мікронних розмірів кристалітів, з яких вони складаються.

4. Показано, що ширина температурного інтервалу плавлення полікристалічних плівок зростає зі зменшенням середнього розміру кристалітів, та може досягати 5 К у плівках з розміром зерен на рівні 1 мкм. Для бінарних шаруватих плівок у порівнянні із двошаровими плівками температурний інтервал контактного плавлення збільшується у 5 разів. Так в контактній парі Bi/Sn інтервал контактного плавлення зростає від 0.4 до 2 К. У плівках Pb/Sn цей інтервал змінюється від 0.9 до 4.5 К. Згідно з новими уявленнями щодо впливу міжзеренних та міжфазних меж показано, що підходи, використані в класичних моделях розмірних ефектів плавлення, засновані на розгляді різниці поверхневих енергій рідкої та твердої фаз, можуть бути поширені на нанокompatитні структури.

5. Здійснено подальший розвиток методів аналізу структурного стану, які ґрунтуються на використанні моделі Павлова та показано, що вона може бути застосована для нанокристалітів, якщо під енергетичним чинником ефекту розуміти енергію внутрішніх меж, які зникають при плавленні. Беручи до уваги вплив міжзеренних та міжфазних меж як основних чинників причин зниження температури початку утворення рідкої фази, було визначено середнє значення енергії міжзеренних меж для одношарових плівок Pb – 230 мДж/м<sup>2</sup>, Sn – 140 мДж/м<sup>2</sup>, а також значення міжфазної енергії меж розділу шарів бінарних систем Pb/Sn – 45 мДж/м<sup>2</sup> та Bi/Sn – 33 мДж/м<sup>2</sup>.

6. На основі порівняльного аналізу масивів частинок, що утворюються при плавленні плівок олова та внаслідок його конденсації безпосередньо у рідку фазу встановлено, що для плівок, конденсованих у тверду фазу, товщиною понад 500 нм після плавлення коефіцієнт заповнення практично не залежить від товщини і становить 0.13 – 0.15. Однак зі зменшенням товщини. по досягненню

деякого критичного значення, що для плівок Sn складає близько 300 нм, змінюється характер розмірної залежності коефіцієнта заповнення. При конденсації за механізмом пара-рідина, для плівок Sn навіть товщиною понад 800 нм, коефіцієнт заповнення підкладки плівкою перевищує 0.4, тобто має значення, які в разі плівок, конденсованих в тверду фазу, спостерігаються лише при товщині зразка менше ніж 100 нм.

7. Запропоновано нові фізичні міркування стосовно механізмів морфологічної еволюції вакуумних конденсатів при їх осадженні та різних етапах відпалювання

## СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

### *Розділи монографій:*

1. Petrushenko S.I. Effect of Temperature on the Growth of Pores in Binary Bi/Sn Films / S.I. Petrushenko, S.V. Dukarov, Z.V. Bloshenko, **I.G. Churilov**, V.N. Sukhov // Advances in Thin Films, Nanostructured Materials, and Coatings, Lecture Notes in Mechanical Engineering. – 2019. – P. 159 – 168. (**Scopus**) (*Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів*).

2. Dukarov S.V. Thermal Dispergation of Pb-In Alloys Films on the Molybdenum Substrate / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, **I.G. Churilov**, A.O. Lyalka, Z.V. Bloshenko, V.N. Sukhov // Microstructure and Properties of Micro- and Nanoscale Materials, Films, and Coatings (NAP 2019). Springer Proc. In Physics. – 2020. – Vol. 240. – P. 379 – 388. (**Scopus**) (*Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів*).

### *Наукові праці в зарубіжних спеціалізованих виданнях, та фахових виданнях України, які індексуються в міжнародних наукометричних базах:*

3. Dukarov S.V. Effect of temperature on the pores growth in the polycrystalline films of fusible metals / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, V.N. Sukhov, **I.G. Churilov** // Питання атомної науки та техніки. – 2014. – Vol. 1, № 89. – P. 110 – 114. (**Scopus**) (*Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів*).

4. Petrushenko S.I. Inner size effect in the polycrystalline metal films of fusible metals / S.I. Petrushenko, S.V. Dukarov, V.N. Sukhov, **I.G. Churilov** // Журнал нано– та електронної фізики. – 2015. – Vol. 7, № 2, – P. 02033. (**Scopus**) (*Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, написання статті*).

5. Dukarov S.V. Inner Size Effect in Layered Films with Eutectic Interaction of Components /, S.I. Petrushenko, V.N. Sukhov, **I.G. Churilov**, A.L. Samsonik, O.I. Skryl // Acta Physica Polonica A. – 2018. – Vol. 133, № 5. – P. 1186 – 1190. (**Scopus**) *(Особистий внесок здобувача: проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, написання статті).*

6. Dukarov S.V. Formation of Island Structures During Melting Process of Tin Films on Amorphous Carbon Substrate / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, V.M. Sukhov, **I.G. Churilov** // Металофізика та новітні технології. – 2019. – Vol. 41, № 4. – P. 445 – 459. (**Scopus**) *(Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів).*

### **Наукові праці у наукових фахових виданнях України:**

7. Дукаров С.В. Особенности плавления металлических пленок на несмачиваемых поверхностях / С.В. Дукаров, В.М. Сухов, **I.G. Чурілов** // Вісник Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна. Серія «Фізика». – 2009, № 865. – С. 77 – 80. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, написання статті).*

8. Сухов В.М. Исследование сквозной пористости в плёнках свинца на аморфной углеродной подложке / В.М. Сухов, С.В. Дукаров, **I.G. Чурілов**, С.І. Петрушенко, А.В. Павлов // Вісник Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна. Серія Фізика. – 2011, № 962. – С. 69 – 73. *(Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів).*

9. Дукаров С.В. Плавление поликристаллических плёнок свинца и висмута на аморфных углеродных подложках / С.В. Дукаров, В.М. Сухов, **I.G. Чурілов**, С.І. Петрушенко, А.В. Павлов // Фізична інженерія поверхні. – 2012. – Т. 10, № 4. – С. 423 – 429. *(Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, обговоренні та тлумаченні результатів).*

10. Дукаров С.В. Переохлаждение при кристаллизации висмута в многослойных плёнках Cu-Bi-Cu и C-Bi-C / С.В. Дукаров, С.І. Петрушенко, В.М. Сухов, **I.G. Чурілов** // Фізична інженерія поверхні. – 2013. – Т. 11, № 4. – С. 345 – 350. *(Особистий внесок здобувача: участь у обговоренні та тлумаченні результатів).*

11. Churilov I.G. Morphological structure of the Pb island films melted on the Ta layer surface / **I.G. Churilov**, O.O. Nevgasimov, S.I. Petrushenko, S.V. Dukarov. V.M. Sukhov // Вісник Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна. Серія Фізика – 2023 – Iss. 38, p. 7-14. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, написання статті)*



***Наукові праці апробаційного характеру за темою дисертації:***

12. Petrushenko S.I. Mutual Solubility in Thin Cu-Pb Film / S.I. Petrushenko, S.V. Dukarov, V.N. Sukhov, **I.G. Churilov** // Physics and technology of thin films and nanosystems: ICPTTFN-XV: 11–16 May 2015, abstracts. – Ivano-Frankivsk, 2015. – P. 300. (*Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, заочна участь*).

13. Dukarov S.V. Inner size effect in Bi-Sn and Sn-Pb films / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, V.N. Sukhov, **I.G. Churilov** // Physics and technology of thin films and nanosystems: ICPTTFN-XVI: 15–20 May 2017, abstracts. – Ivano-Frankivsk, 2017. – P. 276. (*Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, виступ із стендовою доповіддю*).

14. Чурилов И.Г. Внутренний размерный эффект в бинарных пленочных системах / **И.Г. Чурилов**, С.В. Дукаров, С.И. Петрушенко, В.Н. Сухов // Сенсорна електроніка і мікросистемні технології: VIII Міжнародна науково-технічна конференція, 28 травня – 1 червня 2018, тези доп. — Одеса, 2018. – С. 65. (*Особистий внесок здобувача: участь у проведенні експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, підготовка презентації, виступ перед учасниками конференції на пленарному засіданні секції*).

15. Dukarov S.V. Creation of Self-Organizing Nanoparticle Arrays by Thermal Dispergation of Continuous Film / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, **I.G. Churilov**, G.O. Orlov, V.N. Sukhov // International Freik Conference on the Physics and Technology of Thin Films and Nanosystems: ICPTTFN-XVII, 20–25 May 2019, abstracts. – Ivano-Frankivsk, 2019. – P. 25. (*Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, підготовка презентації, виступ перед учасниками конференції на пленарному засіданні секції*).

16. Dukarov S.V. Formation of nanoparticle array by melting of continuous tin films on carbon substrate // S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, **I.G. Churilov**, O.O. Bulgakova, V.N. Sukhov / Nanotechnologies and Nanomaterials: 7th International Conference NANO-2019, 27–30 August 2019. abstracts. – Lviv, 2019. – С. 639. (*Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, заочна участь*).

17. Petrushenko S.I. Thermal dispergation of Pb-In alloys films on the molybdenum substrate // S.I. Petrushenko, S.V. Dukarov, Z.V. Bloshenko, **I.G. Churilov**, A.O. Lyalka, V.N. Sukhov / Applications & Properties: 9th IEEE International Conference on Nanomaterials, 15–20 Sep 2019, abstracts. – Odesa. – С. 01ТА34. (*Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, заочна участь*).

18. Чурілов І.Г. Дослідження плавлення та термічного диспергування одно- та двокомпонентних плівок. // **І.Г. Чурілов**, С.В. Дукаров, С.І. Петрушенко, В.М. Сухов / Фізичні явища в твердих тілах: XIV Міжнародна наукова конференція, 3–6 грудня 2019, тези доп. – Харків. – С. 100. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, підготовка презентації, виступ перед учасниками конференції на пленарному засіданні секції)*

19. Дукаров С.В. Термічне диспергування плівок сплавів In-Pb на молібденовій підкладці. // С.В. Дукаров, А.О. Лялька, **І.Г. Чурілов**, С.І. Петрушенко, В.М. Сухов / Фізичні явища в твердих тілах: XIV Міжнародна наукова конференція, 3 – 6 грудня 2019, тези доп. – Харків. – С. 101. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, заочна участь).*

20. Dukarov S.V. Formation of liquid fase during annealing of single- and multilayer vacuum condensate / S.V. Dukarov, S.I. Petrushenko, **I.G. Churilov**, O.O. Bulgakova, V.N. Sukhov // Proceedings of Ukrainian Conference with International participation "Chemistry, Physics and Technology of Surface" dedicated to the 90th birthday of Aleksey Chuiko, Academician of NAS of Ukraine – Kyiv, 2020. – P. 141. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, підготовка презентації. Виступ перед учасниками конференції на пленарному засіданні секції).*

21. Петрушенко С.І. Переохолодження, розмірні ефекти та явища самоорганізації у вакуумних конденсатах металів та сплавів / С.І. Петрушенко, С.В. Дукаров, **І.Г. Чурілов**, В.М. Сухов // Information technologies: science, engineering, technology, education, health – Харків, 2022. – P. 209. *(Особистий внесок здобувача: участь в обговоренні та тлумаченні результатів, заочна участь).*

***Наукові праці, які додатково відображають  
наукові результати дисертації:***

22. Сухов В.Н., Внутренний размерный эффект плавления в слоистых пленочных системах эвтектического типа / В.Н. Сухов, **И.Г. Чурилов** // Адгезія розплавів і пайка матеріалів, 2008, N 41. – С. 9–14. *(Особистий внесок здобувача: формулювання завдання, проведення експерименту, участь в обговоренні та тлумаченні результатів, написання статті)*

## АНОТАЦІЯ

**Чурілов І. Г. Особливості термічного впливу на морфологічні зміни і механізм утворення рідкої фази у конденсованих однокомпонентних плівках (Pb, Sn, In, Bi) та у бінарних шаруватих плівках (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In). – Рукопис.**

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Сумський державний університет, Суми, 2024.

Метою дисертаційної роботи є вирішення наукового завдання, яке полягає у визначенні особливостей утворення рідкої фази, а також з'ясуванні особливостей морфологічних змін, що відбуваються за участі рідкої фази у одношарових полікристалічних плівках металів (Sn, Bi, Pb, In) та шаруватих бінарних плівках (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In).

Досліджено кінетику зростання наскрізних пор та диспергування зразків, суцільних у вихідному стані. Визначено енергію активації поверхневої самодифузії для плівок Pb, Sn, In. Отримано концентраційну залежність енергії активації дифузійних процесів для шаруватих зразків Bi/Sn.

Встановлено, що плавлення полікристалічних зразків відбувається у деякому температурному інтервалі. Це пояснюється як прояв внутрішнього розмірного ефекту, який у однокомпонентних плівках обумовлено енергією міжзерених меж, а у бінарних шаруватих структурах викликано міжфазною енергією. Визначено енергію міжзерених меж у плівках Sn та Pb. Оцінена енергія міжфазних меж компонентів для плівок Bi/Sn та Sn/Pb.

При дослідженні плавлення острівців, які утворюються при диспергуванні плівки, показано, що розподіл за розміром частинок є досить вузьким та одноmodalьним, а найбільш вірогідний радіус частинок та напівширина гістограм розподілу лінійно залежать від масової товщини конденсату.

Виявлено, що надлишкова енергія, яка обумовлює диспергування, суцільних у вихідному стані плівок, для товстих плівок практично не змінюється, а по зменшенню масової товщини плівки менш за деяку критичну, різко зменшується. При цьому морфологічна структура плівок товщина яких більша та менша за критичну, так само має значні відмінності.

Для бінарної системи Pb/In отримано концентраційну залежність найбільш вірогідного радіусу частинок та напівширини гістограм їх розподілу за розмірами. Встановлено, що для плівок, які містять від 20 до 80 мас. % свинцю, ці величини не залежать від складу плівки, проте значно зменшуються при переході до чистих компонентів.

Досліджено особливості морфології плівок, що отримані конденсацією за механізмом пара-рідина. Виявлено, що їм притаманні великі значення коефіцієнта заповнення підкладки плівкою та біmodalьний розподіл частинок за розмірами.

**Ключові слова:** внутрішній розмірний ефект, плавлення плівок, впорядковані масиви, термічне диспергування, гістограми розподілу, коефіцієнт заповнення, надлишкова енергія

## ABSTRACT

**Churilov I. G. Peculiarities of thermal influence on morphological changes and the mechanism of liquid phase formation in condensed one-component films (Pb, Sn, In, Bi) and in binary layered films (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In). – Manuscript.**

The thesis for the scientific degree of the candidate of physical and mathematical sciences by speciality 01.04.07 – solid state physics. Sumy State University, Sumy, 2024.

The purpose of the dissertation is to solve the scientific problem, which is to determine the peculiarities of the formation of the liquid phase, as well as to clarify the peculiarities of morphological changes that occur with the participation of the liquid phase in single-layer polycrystalline films of metals (Sn, Bi, Pb, In) and layered binary films (Bi/Sn, Pb/Sn, Pb/In).

The kinetics of through-pore growth and de-wetting of samples that are solid in the initial state are investigated. The activation energy of surface self-diffusion for Pb, Sn, and In films was determined. The concentration dependence of the activation energy of diffusion processes for layered Bi/Sn samples was obtained.

It was found that the melting of polycrystalline samples occurs in a certain temperature range. It is explained as a manifestation of the inner size effect due to the influence of the energy of grain boundaries (for single-component films) and the energy of interphase boundaries of components in binary layered structures. The energy of the grain boundaries in Sn and Pb films has been determined. The energy of interphase boundaries of the components for Bi/Sn and Sn/Pb films is estimated.

It has been shown, when studying the melting of islands formed during film dispersion, that the particle size distribution is rather narrow and unimodal. The most probable particle radius and the half-width of the distribution histograms depend linearly on the mass thickness of the condensate.

It has been found that the excess energy that causes de-wetting of the films that are solid in the initial state practically does not change for thick films, and decreases sharply when the mass thickness of the film decreases below a certain critical value. At the same time, the morphological structure of the films changes.

The concentration dependence of the most probable particle radius and half-width of the histograms for the binary Pb/In system was obtained. It was found that for films containing from 20 to 80 wt. % Pb, these values do not depend on the film composition, but significantly decrease when changing to pure components.

The peculiarities of the morphology of the films obtained by vapor-liquid condensation are investigated. It was found that they are typical for high values of the coefficient of coverage of the substrate by the film and bimodal distribution of particles by size.

**Keywords:** inner size effect, films melting, ordered arrays, thermal de-wetting, distribution histograms, coverage, excess energy.

ДЛЯ ПОДАТОК

Формат 60 x 84/16. Ум. Вид. арк. 0.9. Тир. 100 прим. Зам. № 049-24.  
Підписано до друку 16.02.2024. Папір офсетний.

[www.stil-izdat.com](http://www.stil-izdat.com)

Надруковано з макету замовника ФОП Бровіна І.П.  
61022 м. Харків, вул. Трінклера, 2, корп. 1. Т. (066) 822-71-30