

**Diszlokáció struktúra –és ikerhatárok
karakterizációja
vékony -és multirétegek esetén
röntgen vonalprofil analízis alapján**

Csiszár Gábor
doktori értekezés

Témavezető:

Dr. Ungár Tamás
egyetemi tanár, MTA doktor

ELTE TTK Fizika Doktori Iskola

Iskolavezető: Dr. Csikor Ferenc

Anyagtudomány és Szilárdtestfizika Program

Programvezető: Dr. Lendvai János



Eötvös Loránd Tudományegyetem, Természettudományi Kar

Fizikai Intézet, Anyagfizikai Tanszék

Budapest, 2012

Tartalomjegyzék

1.	Bevezető	4
2.	Elméleti háttér	7
2.1.	A röntgen vonalprofil analízis alapjai	7
2.1.1.	Krisztallitok mérethatásának profilfüggvénye	8
2.1.2.	Diszlokációk hatására kialakuló profilfüggvény.....	9
2.1.3.	Rétegződési -és ikerhibák hatásának profilfüggvényei.....	12
2.1.3.1.	Tetszőleges kristály, tetszőleges rétegződési hibájának profilalakja.....	12
2.1.3.2.	Hexagonális, szoros illeszkedésű kristályrendszer, piramidális síkon történő ikresedési profilfüggvénye.....	13
2.1.3.3.	Rétegződési- és ikerhibák, alreflexiókat módosító hatásának <i>hkl</i> függése	15
2.2.	A röntgen vonalprofil analízis módszerei.....	16
2.2.1.	Mikroszerkezet vizsgálat Williamson-Hall módszerrel.....	16
2.2.2.	Mikroszerkezet vizsgálat Konvolúciós Teljes Profil Illesztéssel (eCMWP).....	17
2.3.	Deformációs-anizotrópia diszlokáció modellje	18
2.3.1.	Diszlokációk individuális kontraszt faktorai	19
2.3.1.1.	Kontraszt faktorok elméleti számolása különböző csúszási rendszerekben	19
2.3.2.	Csúszási rendszerek és az elméleti kontraszt faktorok kapcsolata.....	21
2.4.	Alkalmazott matematikai módszerek	22
2.4.1.	Kramer-szabály	24
2.4.2.	Newton-féle numerikus illesztési módszer.....	25
3.	Diszlokáció-populációk– és rétegződési hibák kísérleti vizsgálata	28
3.1.	Különböző rost-textúrával rendelkező, Ni fázisú vékonyrétegek diszlokáció és síkhiba analízise.....	28
3.1.1.	Bevezetés.....	28
3.1.2.	Ni vékonyrétegek előállítása.....	29
3.1.3.	Röntgen diffrakciós mérések	31
3.1.4.	A mért diffrakciós profilok kiértékelése.....	34

3.1.5. A diszlokáció-struktúra kiértékelése	40
3.1.5.1. Diszlokáció sűrűség különböző textúra komponensek esetén	40
3.1.5.2. Fő-textúra komponenshez tartozó krisztallit sokaság Burgers-vektor analízise	41
3.1.6. Diskusszió	41
3.1.6.1. Diszlokáció sűrűség	41
3.1.6.2. Burgers vektor analízis	45
3.1.6.3. Koherensen szóró tartományok mérete és az ikerhatár sűrűség	53
3.1.6.4. Mikroszerkezeti paraméterek és a vékonyrétegek mechanikai tulajdonságai	55
3.1.7. Konklúzió	58
3.2. Éles textúrájú Cu-Nb multirétegek Burgers vektor analízise és diszlokáció struktúrájának karakterizációja	60
3.2.1. Irodalmi áttekintés	60
3.2.2. Cu-Nb multirétegek előállítása	64
3.2.3. Röntgen diffrakciós mérések	68
3.2.4. A diffrakciós spektrumok kiértékelése	72
3.2.5. Diszlokáció-szerkezet meghatározás	73
3.2.5.1. A diszlokációk individuális kontraszt faktorai	73
3.2.5.2. Burgers vektor analízis, a két fázis diszlokáció-szerkezetének karakterizációja	75
3.2.6. Eredmények	75
3.2.6.1. Kvantitatív eredmények	75
3.2.6.2. Kvalitatív eredmények	80
3.2.7. Diskusszió	92
3.2.8. Makroszkopikus tulajdonságok	96
3.2.9. Konklúzió	99
3.3. Ikerhatár struktúra változásának vizsgálata Cu vékonyrétegekben	101
3.3.1. Irodalmi áttekintés	101
3.3.2. A minta előállítása és hideghengerlése	104
3.3.3. Röntgen diffrakciós mérések	105
3.3.4. Röntgen diffrakciós spektrumok kiértékelése	106

3.3.4.1. A mérethatás- és deformációs vonalprofilok kiértékelése	106
3.3.4.2. Ikerhatárok vonalprofiljainak kiértékelése	107
3.3.5. Eredmények	111
3.3.5.1. Kvalitatív eredmények	111
3.3.5.2. Kvantitatív eredmények	114
3.3.6. Diskusszió	117
3.3.7. Konklúzió	122
4. Új tudományos eredmények	124
5. Irodalomjegyzék.....	129
6. Köszönetnyilvánítás.....	138
7. Összefoglalás.....	139
8. Abstract	140

1. Bevezető

Az emberiség fejlődésének nagy korszakai szorosan összeköthetők az általuk felhasznált anyagokkal. A bronzkorszaktól kezdődően a fémek nélkülözhetetlen társai lettek az életnek. A fémek kémiai tulajdonságainál a legmeghatározóbb, hogy milyen atomokból épülnek fel. Ezek a szilárd anyagot felépítő kémiai elemek alapvető fontosságúak a kémia tulajdonságait illetően. Atomi méretskálájuk 10^{-2} nm nagyságrendű. A fizikai tulajdonságoknál azonban sokkal több tényező játszik szerepet. A következő méretskála 10^{-1} nm nagyságrendű, mely a kristályszerkezetet jellemző rácsállandó méretskálája. Különböző kristályszerkezetű anyagok, különböző fizikai tulajdonságokkal rendelkeznek. A fémek változatos formákban tudnak megjelenni, gondolhatunk itt az allotróp módosulatokra vagy speciális ötvözetekre, melyek amorf fázis előállítását teszik lehetővé. Egy adott szerkezet esetén az anyag tulajdonságait, a kristályszerkezeten felül, jelentősen befolyásolják nagyobb léptékű jellemzők is, melynek mikroszerkezeti méretskálát tulajdoníthatunk. Ez a méretskála egészen a nano-skálától, a meso-skálán keresztül, a milliméteres skáláig terjedhet. Ezen méretskálán belül említhetünk meg minden olyan mikroszerkezeti jelenséget, amely megbontja a végtelen nagy és hibamentes kristály eltolási szimmetriáját. A leggyakrabban előforduló kristályhibák a következők lehetnek: (a) diszlokációk, (b) diszklínációk, (c) különböző rétegződési hibák, (d) szemcsehatárok, (e) antifázis határok (f) kiválások illetve zárványok és (g) ponthibák, nevezetesen vakanciák illetve intersticiális szennyezők. A mikroszerkezetnek ezen sokféle megjelenési formája, a rácshibák mennyisége és minősége alapvetően meghatározza a kristályos anyagok számos fizikai tulajdonságát. Ilyen fizikai tulajdonság például a folyáshatár, a ridegség, a duktilitás, stb.

Ahhoz azonban, hogy meghatározott fizikai tulajdonsággal rendelkező anyagokat állíthassunk elő, szükségünk van jól megalapozott módszerekre, melyek segítségével a mikroszerkezeti paraméterek számszerűsíthetővé válnak. A röntgen vonalprofil analízis (RVPA) módszere az utóbbi időben, a transzmissziós (TEM) és a pásztázó elektron mikroszkópia (SEM) mellett, a mikroszerkezet vizsgálatának egyik leghatékonyabb alternatív módszerévé nőtte ki magát, melynek segítségével éppen a fent említett kristályhibák mennyiségére és minőségére adható kvantitatív válasz.

A mai szerkezeti anyagok energetikai felhasználási köre mind-mind az anyagoktól olyan környezeti hatások elviselését igényli, mint a hatalmas mértékű mechanikus feszültség és deformáció, nagyon magas hőmérséklet és nyomás, korrózió, nagymértékű ionbesugárzás,

nagy mágneses és elektromos tér jelenléte. Ilyen terheltségű működési környezetben a hagyományos anyagok életkoruk rövidülésével, alacsonyabb teljesítőképességgel válaszolnak. Ezek a megszkott szerkezeti anyagok több esetben megjósolhatatlanul befolyásolják a működési eljárást, sok esetben pl.: külső feszültség hatására az egykristályra jellemző keményedés elméleti határának 10%-nál többet nem képes elviselni. Több évtizedes kutatás során sok újdonság született, áttörést viszont nem hozott. Ha az extrém környezeti hatás-anyag közötti kapcsolatot kontrollálni tudnánk, azaz ismernénk a szerkezeti anyag választát a különböző fizikai helyzetekben, megjósolható tulajdonságú, újszerű szerkezetek kialakítását tehetnénk meg és így talán közelebb kerülhetünk pl.: a túszerű egykristályoknál tapasztalható deformációs határhoz [U.S. Department of Energy, *Basic Research Needs for Materials under Extreme Environments*, 2007; Madden, 2007; Bouaziz et al., 2008].

A szerkezeti anyagok terén az elmúlt évtizedben olyan multifunkciós anyagok megalkotása volt a cél, ahol a fent említett jövőbeni terheltség elvárható. Ilyen újszerű anyagok mikroszerkezeti sajátosságai viszont sokkal komplexebb jegyeket hordoznak, mint elődeik. A tömegsűrűség, termikus szigetelőképesség, elektromos vezetőképesség, mágneses tulajdonságok, energia-abszorpció, deformálhatóság tulajdonságainak javítása érdekében más és más újabb fázis hozzáadásával próbáltak eredményeket elérni miközben a mikroszerkezeti skálát a nanométeres tartományra próbálták leszorítani. Ezeknek a törekvéseknek az eredményei pl.: a nano-struktúrák Ni vékonyrétegek vagy a nanokompozitként emlegetett Cu-Nb multiréteg is.

Az anyagokban előforduló kristályszemcsék nagyságrendje, nanokristályos struktúrák esetén, elérheti a 5-10 nm-es skálát is. Az 1980-as évektől kezdődően napjainkig jelentős figyelem szentelődött az ilyen nano-struktúrájú anyagok kiindulási, illetve deformált állapotainak vizsgálatára. Ezek közé tartoznak a nanokristályos metalikus vékony –illetve multirétegek is, melyeknek elméleti és kísérleti vizsgálata több évtizede folyik. Kitéüntetett figyelmet élvez a multirétegekkel foglalkozó kutatók körében a Cu-Nb kompozitból előállított nano-skálájú multiréteg, mivel szilárd halmazállapotban elhanyagolhatóan oldódnak egymásba, így kitűnő vékonyrétegek készíthetők belőlük, sőt még hőmérséklet-változás és deformáció hatására sem mutatnak keveredést.

A jelen disszertációban nanokristályos Cu- és Ni vékonyrétegekben, illetve nanokristályos Cu-Nb multirétegekben található különböző kristályhibák (diszlokációk, ikerhatárok) sűrűségének és eloszlásának meghatározását dolgoztam ki, illetve individuális kontraszt faktorok segítségével a teljes Burgers vektor analízis megállapítását végeztem el. A diszlokáció szerkezetek, illetve az ikerhatárok vizsgálatán túl a vizsgált anyagok mechanikai

tulajdonságainak részletes leírására, illetve a mikroszerkezet és a mechanikai tulajdonságok közti korreláció bemutatására is sor kerül. A Ni vékonyréteg különböző előállítási paramétereinek változtatásával kívántuk elérni az adott mikroszerkezeti sajátosság kialakulását, míg a Cu/Nb multiréteg esetén, elsősorban, a két fázis határán létrejövő határfelület mikroszerkezetét próbáltam jellemezni. A nano-ikresedett, Cu vékonyrétegek esetén, az alakítási keményedést jellemző lehetséges okokra is fényt deríttek.

2. Elméleti háttér

2.1. A röntgen vonalprofil analízis alapjai

A RVPA számos vonatkozásban hasonló, ugyanakkor igen sok tekintetben más típusú információkat szolgáltat a mikroszerkezetről mint a TEM, vagy a SEM. Ezek az információk statisztikailag nagyobb biztonsággal jellemzik a mikroszerkezetet, mint a mikroszkópos vizsgálatok, mert míg az előbbieket lokális módszerek közé sorolhatóak, addig az RVPA, röntgen és neutron diffrakciós technikák által kapható, nagy térfogatot jellemző tartományról adnak információt. A mikroszerkezet meghatározásában akkor kapjuk a valóságnak leginkább megfelelő eredményeket, ha a vonalprofil analízist és a mikroszkópos módszereket együtt alkalmazzuk, hiszen a TEM a hibatípusok meghatározásának, míg az RVPA a hibatípusok sűrűségének direkt módszere.

A RVPA módszere alapvetően két különböző mikroszerkezeti elemről ad felvilágosítást: (i) a kristallit méretről, (ii) és a különböző kristályhibák sűrűségéről és eloszlásáról. A röntgen vonalprofilokat mérhetően befolyásoló kristályhibák a következők lehetnek: (a) diszlokációk, (b) különböző rétegződési hibák, (c) szemcsehatárok, (d) kiválások illetve zárványok, (e) belsőfeszültségek, (f) kémiai heterogenitások és (g) ponthibák, nevezetesen vakanciák illetve intersticiális szennyezők. A diszlokációk [Krivoglaz, 1969; Wilkens, 1970a; Gaál, 1975; Groma, 1998; Ungár et. al., 1999b], a kristallit méret [Bertaut, 1950; Warren et al., 1950; Guinier, 1963; Ungár et. al., 2005], a rétegződési hiba [Warren, 1959; Warren, 1969; Velterop et al., 2000] és ponthibák [Krivoglaz, 1969; Wagner et al., 1969; Ungár et. al., 2007] hatásának fizikai modelljeit az utóbbi években sikerült kidolgozni.

A röntgen vonalprofil analízis (RVPA) a fizikai modellekből származtatott elméleti profilfüggvények konvolúciója illetve a mért adatok összehasonlításából származtatja a mikroszerkezetre jellemző fizikai paramétereiket. Az összehasonlítási módszerek között találjuk a félérték-szélességen (FWHM) illetve integrális-szélességen (β) alapuló Williamson-Hall ábrázolást, vagy a jól ismert, bár bonyolultabb, Warren-Averbach módszert, mely a mért profilok Fourier-transzformáltjának, adott Fourier változónál vett szélességén alapul. Ezeknél a módszereknél kifinomultabb a kinematikus szórás elmélet alapján kapható elméleti profilfüggvények teljes vizsgálata.

2.1.1. Krisztallitok mérethatásának profilfüggvénye

A kinematikus szóráselmélet alapján a véges szemcsemérettől, rácsdeformációtól, illetve rétegződési hibától származó intenzitásprofilok konvolúciója adja a mérhető intenzitásprofilok egészét. Az intenzitásprofil Fourier-együtthatói, A , megadhatók, mint a "méret" (S), "deformáció" (D) és rétegződési hiba (PF) profilok Fourier-együtthatóinak, A^S , A^D , A^{PF} szorzata [Warren, 1959; Warren, 1969; Guinier, 1963; Wilson, 1962]:

$$A(L) = A(L)^S A(L)^D A(L)^{PF} \quad (1)$$

ahol L a Fourier-hosszt jelöli. Definíció szerint $L=na_3$, ahol n egész szám és $a_3 = \frac{\lambda}{2(\sin\theta_1 - \sin\theta_2)}$, ahol λ a röntgensugárzás hullámhossza, θ_1 és θ_2 pedig az a diffrakciós szög tartomány, amelyre a vonalprofil kiértékelést végezzük. A szóráselmélet alapján a méretre vonatkozó Fourier-együtthatókat a következő formula adja meg [Guinier, 1963]:

$$A(L)^S = \frac{1}{(t)} \int_L^\infty (t-L)p(t)dt \quad (2)$$

ahol $\langle t \rangle$ a reflektáló szemcsék átlagos méretének és a diffrakciós vektorra merőleges kétdimenziós vetületének hányadosa, $p(t)$ pedig azon oszlop méret-eloszlás sűrűségfüggvénye, amelyben az oszlopok, definíció szerint, a reflektáló szemcsék, (g) diffrakciós vektorral párhuzamos, infinitezimális keresztmetszetű tartományai. A gyakorlatban a $p(t)$ függvény alakját a szemcsék alakja és méretének eloszlása függvényében adjuk meg, azaz $p(t)$ függvényt a szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényével, $f(x)$, fejezzük ki a következő módon [Guinier, 1963]:

$$p(t) = N \int_0^\infty h(t,x)f(x)dx \quad (3)$$

ahol N egy normálási tényező és $h(t,x)dt$ azoknak az oszlopoknak a relatív hányada az x átmérőjű szemcsében, amelyek hossza t és $t+dt$ közé esik [Warren, 1969]. Legtöbbször olyan szemcsék, szubszemcsék, koherensen szóró tartományok alkotják a vizsgált anyagokat, melyek leggyakrabban log-normális szemcseméretet és ellipszoid alakú szemcséket jelentenek, így a következő alakot ölti a szemcsék véges méretét jellemző Fourier együttható [Ribárik et al., 2001; Ungár et al., 2001]:

$$\begin{aligned}
A(L)^S &= \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[\frac{\ln \left(\frac{Ll}{m} \right)}{\sqrt{2}\sigma} - 1.5\sqrt{2}\sigma \right] - \\
&- \frac{3}{4m \exp(8.125\sigma^2)} |L| \operatorname{erfc} \left[\frac{\ln \left(\frac{Ll}{m} \right)}{\sqrt{2}\sigma} - \sqrt{2}\sigma \right] + \\
&+ \frac{3}{4m^3 \exp(10.125\sigma^2)} |L|^3 \operatorname{erfc} \left[\frac{\ln \left(\frac{Ll}{m} \right)}{\sqrt{2}\sigma} \right],
\end{aligned} \tag{4}$$

ahol erfc függvény a komplementer hibafüggvényt jelenti. Az így kapott Fourier-transzformált inverz Fourier-transzformáltja adja a véges méretből adódó intenzitás-eloszlást, mely csupán két (m és σ) paraméter függvénye. Ebből a két paraméterből pedig a szemcseátmérők felülettel súlyozott átlaga kiszámítható [Hinds, 1982]:

$$\langle x \rangle_{\text{area}} = \frac{\int_0^{\infty} x \cdot x^2 \pi \cdot f(x) dx}{\int_0^{\infty} x^2 \pi \cdot f(x) dx} = m \cdot e^{2.5\sigma^2}. \tag{5}$$

ahol $f(x)$ a lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvénye. Természetesen az ismert sűrűségfüggvényből aritmetikai illetve térfogattal átlagolt szemcseátmérő is számolható. TEM felvételeken a vizsgált anyag szerkezetének síkmetszeteit mutatjuk be, és a tapasztalat szerint ezeken a TEM felvételeken látható véges méret az $f(x)$ lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényének második momentumával korrelál leginkább. Ez a méret áll a legközelebb a szubszemcsék átlagos, TEM felvételeken látható méretéhez [Ungár, et al., 2005].

2.1.2. Diszlokációk hatásra kialakuló profilfüggvény

Kristályos anyagokban a képlékeny deformáció jelensége a diszlokációk révén megy végbe, bár ismerünk olyan képlékeny deformációt is, ahol a képlékeny alakváltozás, a kompatibilitásához szükséges legalább öt csúszási rendszer hiánya miatt [Chun et al., 2005; Ungár, 2008], ikerképződéssel történik. A diszlokációk között megtalálhatóak az úgynevezett geometriailag szükséges, *misfit* típusú diszlokációk, melyek szerepe adott, kétfázisú, egymásba nem-keveredő pl.: multirétegek esetén szükségszerűek. A diszlokációk ilyesfajta szerepe az ikerképződésnél is megtalálható, ahol a létrehozandó anyag stabilabb szerkezetének érdekében, a képződés során kialakuló nagyszámú ikerhatár szükségszerűen

kialakuló diszlokációk jelenlétét mutatják [Csiszár et al., 2012a]. Ezek a nagyszámú *misfit* típusú diszlokációk, illetve ikerhatárok szignifikáns szerepet töltenek be erősen texturált minták szerkezetének felépülésében.

A rácsdeformáció okozta diffrakciós vonalprofil Fourier-együtthatóinak alakja a következőképpen adható meg [Krivoglaz et al., 1963]:

$$A^D(\mathbf{g}, \mathbf{L}) = e^{-2\pi^2 \mathbf{L}^2 \mathbf{g}^2 \langle \varepsilon_{\mathbf{g}, \mathbf{L}}^2 \rangle} \quad (6)$$

ahol \mathbf{L} a Fourier változó, \mathbf{g} a diffrakciós vektor hossza és $\langle \varepsilon_{\mathbf{g}, \mathbf{L}}^2 \rangle$ a diffrakciós vektor irányú deformáció négyzetének átlaga. A rács diszlokációk okozta átlagos rácsstorzulása elsőrendben 0, azonban a négyzetének átlaga már nem. Érdemes megjegyezni, hogy a *hkl* indexű „deformációs” intenzitásprofil szélességét, a (*hkl*) Miller-indexű síkokra merőleges irányú rácsdeformációk határozzák meg.

A rácshibák közül a ponthibák viszonylag rövidtávú deformációs térrel rendelkeznek, nagysága a hibától számított távolság négyzetének reciprokával csökken. Ezzel szemben a diszlokációk okozta rugalmas deformáció a távolság reciprokával csökken, így az egy hosszú hatótávolságú deformációs tér. A kristálytér és a reciproktér reciprocitása miatt a ponthibák Huang-szórást eredményeznek, így a Bragg csúcs közelében nem ad lényeges járulékot. Ezzel szemben a diszlokációk jól mérhető szélesedést okoznak a diffrakciós csúcsokban. Ebben az esetben a deformáció négyzet-átlaga a következő képlettel adható meg [Wilkens, 1970a; Groma, 1998; Gaál, 1975]:

$$\langle \varepsilon_{\mathbf{g}, \mathbf{L}}^2 \rangle = \frac{b^2}{4\pi} \rho C f \left(\frac{|\mathbf{L}|}{R_e} \right) \quad (7)$$

ahol ρ és b a diszlokációk átlagos sűrűsége illetve Burgers-vektorának hossza, C az ún. diszlokáció kontraszt faktor és R_e a diszlokációk effektív külső levágási sugara és f az úgynevezett Wilkens függvény [Wilkens, 1970a].

Ha ellentétes előjelű Burgers vektorral rendelkező diszlokációk dipólokba rendeződnek, akkor leárnyékolják egymás deformációs terét, így a diszlokációk effektív külső levágási sugara kisebb lesz. Ebből következően a diszlokáció-szerkezet dipól-jellegének jellemzésére használhatnánk ezt a mennyiséget, ehelyett mégis inkább egy dimenziótlan $M = R_e \sqrt{\rho}$ mennyiség szolgál, amit a diszlokáció elrendeződési paraméterének neveznek. A

diszlokációk minél inkább leárnýekolják egymás terét, annál kisebb lesz M értéke [Wilkens, 1970].

A (7) egyenletben szereplő C diszlokáció kontraszt faktor fejezi ki a diszlokációk anizotrop deformációs tere miatt kialakuló anizotrop vonalprofil-szélesedést, mely a kristályszerkezetre és az adott csúszási rendszerben létező diszlokációkra jellemző. Ez a fizikai mennyiség függvénye a diszlokációt jellemző Burgers vektornak, a vonalvektor és a diffrakációs vektor egymáshoz viszonyított irányának, illetve az anyagot jellemző rugalmas állandóknak [Groma et al., 1988; Ungár et al., 1989; Groma, 1998]. Textúrálatlan, polikristályos anyag esetén a profilfüggvényt, a teljes diszlokáció-populációra számolt átlagos kontrasztfaktor, \overline{C}_{hkl} , jellemzi [Krivoglaz, 1969; Wilkens, 1970; Kuzel et al., 1988], ami nem más, mint a különböző irányú diszlokációk csúcs-kiszélesedésre gyakorolt hatásának kiátlagolódása. Az átlagos kontrasztfaktor köbös és hexagonális kristályokban az alábbi módon számolható [Ungár et al., 1999]:

$$\text{köbös kristály esetén } \overline{C}_{hkl} = \overline{C}_{h00}(1 - qH^2), \text{ ahol } H^2 = \frac{h^2k^2 + h^2l^2 + k^2l^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2}, \quad (8)$$

$$\text{hexagonális kristály esetén } \overline{C}_{hkl} = \overline{C}_{hk0}(1 + a_1H_1^2 + a_2H_2^2), \text{ ahol} \quad (9)$$

$$H_1^2 = \frac{|h^2 + k^2 + (h+k)^2|l^2}{\left[(h^2 + k^2 + (h+k)^2) + \frac{3}{2}\left(\frac{a}{c}\right)^2 l^2\right]^2}, \quad (10)$$

$$H_2^2 = \frac{l^4}{\left[(h^2 + k^2 + (h+k)^2) + \frac{3}{2}\left(\frac{a}{c}\right)^2 l^2\right]^2}, \quad (11)$$

ahol \overline{C}_{h00} és \overline{C}_{hk0} a köbös illetve a hexagonális kristály rugalmas állandóiból származtatható állandók, a és c konstansok a hexagonális kristály rácsállandói, h, k, l pedig a pordiffrakációs reflexiók Miller indexei. A (8) egyenletben szereplő q paraméter az anyag rugalmas állandóitól és a mintában lévő, él vagy csavar jellegű diszlokációk típusától függ [Dragomir et al., 2002a; Dragomir et al., 2002b]. A (9) egyenlet a_1 és a_2 paramétereiből a hexagonális kristályra jellemző diszlokációk Burgers vektor típusoknak arányára lehet következtetni. Ezek a számítási módszerek csupán egyenlő valószínűséggel jelenlevő diszlokáció-populációk esetén igazak. Egykristályok vagy erősen textúrált minták esetén individuális kontraszt faktorok alkalmazása indokolt azokban az esetekben, mikor a Burgers vektor populáció nem véletlenszerű [Borbély et al., 2000; Nyilas et al., 2004, 2006].

2.1.3. Rétegződési -és ikerhibák hatásának profilfüggvényei

A különböző kristályrendszerekben a rétegződési -és ikerhibák hatásai más-más módon mutatkoznak meg. Lapcentrált köbös kristályok ikresedési tulajdonsága a szorosan illeszkedő rácscsikokhoz van kötve [Warren, 1959, 1969]. Ez a típusú ikresedés más jellegű, mint a hexagonális kristályszerkezetű anyagok ikresedési tulajdonságai. Míg az előzőt részlegesen merohedrális ikresedésnek ismerjük, addig a hexagonális kristályszerkezet, piramidális síkjain történő ikresedést nem-merohedrális jelleg övezi [Balogh, 2009]. Ebből következően a két ikresedési mód diffrakciós vonalszélesítő hatása sem egyezik meg. A rétegződési hibák profilalakot módosító hatásai is más megközelítést igényelnek. Az alábbiakban bemutatott, Balogh által kidolgozott, kettős-lamella modell nem alkalmazható pl.: rétegződési hibák leírására. Így a következő részekben, a különböző struktúrákhoz illeszkedő tárgyalás módokat ismertetem, melyeknek részletesebb leírását és azok megértését a megfelelő hivatkozásokra való utalások segítik.

A rétegződési -és ikerhibák okozta diffrakciós profilalakok tárgyalását három csoportba rendezhetjük: 1. tetszőleges kristály, tetszőleges rétegződési hibák 2. hexagonális, szoros illeszkedésű rendszer, piramidális síkon történő ikresedése és 3. lapcentrált, köbös kristályszerkezetű anyagok ikresedése.

2.1.3.1. Tetszőleges kristály, tetszőleges *rétegződési* hibájának profilalakja

Egy adott α valószínűséggel létrejövő rétegződési hiba esetén, az összes lehetséges konfiguráció szórt intenzitásának az átlaga [Balogh et al., 2006, 2009]:

$$\langle I(\mathbf{q}) \rangle = \langle |A(\mathbf{q})|^2 \rangle = |F(\mathbf{q})|^2 |A_0(\mathbf{q})|^2 \sum_{n,m} \left\{ e^{iq a_0(n-m)} \left[(1-\alpha) + \alpha e^{iqs} \right]^{(n-m)} \right\} \quad (12)$$

ahol \mathbf{q} a reciprok tér koordinátája, $F(\mathbf{q})$ a szerkezeti tényező és egy adott síkról szóródó hullám amplitúdóját $A_0(\mathbf{q})$ adja meg. Elvégezve az összegzést, a szórt intenzításra Lorentz-típusú függvény adódik:

$$\langle I(\mathbf{q}) \rangle = \langle |A(\mathbf{q})|^2 \rangle = |F(\mathbf{q})|^2 |A_0(\mathbf{q})|^2 \frac{2 \ln P}{(\ln P)^2 + (\mathbf{q} \mathbf{a}_0 + \Phi)} \quad (13)$$

ahol

$$P = \sqrt{1 - 2\alpha(1 - \alpha)(1 - \cos(\mathbf{q}\mathbf{s}))}, \quad (14)$$

$$\tan \Phi = \frac{\alpha \sin(\mathbf{q}\mathbf{s})}{1 - \alpha + \alpha \cos(\mathbf{q}\mathbf{s})}. \quad (15)$$

A fenti kifejezésben Φ hordozza a Lorentz függvény maximumának eltolódását a hibamentes kristályhoz képest, míg $2\ln P$ a Lorentz függvény félértékszélessége. Ezek alapján írható [Balogh et al., 2006, 2009]:

$$FWHM_{hex} = 2\ln P = \ln[1 - 2\alpha(1 - \alpha)(1 - \cos(\mathbf{q}\mathbf{s}))], \quad (16)$$

$$\Phi = \text{atan}\left(\frac{\alpha \sin(\mathbf{q}\mathbf{s})}{1 - \alpha + \alpha \cos(\mathbf{q}\mathbf{s})}\right). \quad (17)$$

ahol a *hex* index arra utal, hogy a félértékszélességet a lapcentrált, köbös szerkezetű kristályrácsához illesztett hexagonális rendszerben jellemezzük.

2.1.3.2. Hexagonális, szoros illeszkedésű kristályrendszer, piramidális síkon történő

ikresedésének profilfüggvénye [Balogh et al., 2009]

A szoros-illeszkedésű, hexagonális kristály piramidális síkon történő ikresedése minden más, eddig megismert leírási módtól eltérő tárgyalást igényel. Egy ikresedett kristályban az ikresedés síkjára merőlegesen bomlik meg a kristályos rend. Az eltolási szimmetria minden ikerhatárnál megszűnik. Az egymást követő kristály és iker-kristály tartományok lamellákat alkotnak, méretükkel és helyzetükkel befolyásolva a többi lamella méretét és helyzetét.

A valóságot jól közelítő profilfüggvényt akkor kapunk, ha a következő két tulajdonsággal rendelkezik az u.n. kettős-lamella modell [Balogh et al., 2009]:

(i) Az lamellának egyik fontos tulajdonsága: a tükörszimmetria. Két szomszédos lamella kristálykoordinátái egymás tükörképei az ikresedés síkjára nézve. Egy adott lamellához mindig tartozik egy kristálytanilag tükörszimmetrikus iker-lamella, ebből következően az ikerkristály reciprokláncpontjai is megjelennek a reciproklánc térben, a kristály reciprokláncpontjai mellett. Az ikresedő sík típusa, a kristályszerkezettel együtt határozzák meg, hogy hogyan helyezkednek el a kristály és az ikerkristály reciprokláncpontjai egymáshoz képest.

(ii) A lamellák térbeli helyzete nem véletlenszerű, vagyis ezek egymáshoz képest történő elhelyezkedése, a különböző lamellákról koherensen összeadódó, szóródó hullámot eredményez.

A kettős lamellákat függetleneknek tekintve a következőképpen adhatjuk meg a kettős lamelláról szórt intenzitást [Balogh et al., 2009]:

$$I_D(L') = \left| A_{D_p}(L' - L'_p) + A_{D_t}(L' - L'_t) \right|^2 \quad (18)$$

ahol L'_p és L'_t a kristály illetve az ikerkristály, két szomszédos reciprok rácspontjának a koordinátája ugyanarra a HK egyenesre nézve, miközben $L'_p \neq L'_t$.

A kidolgozott elmélet idetartozó részleteinek közlése nélkül az ikresedés hatására kialakuló vonalprofil alakja a következő [Balogh et al., 2009]:

$$I(L') = \frac{I_0}{1 + \frac{4(L' - L'_0)^2}{(FWHM_{triklin})^2}} [1 + Asym \cdot (L' - L'_0)], \quad (19)$$

$$FWHM_{triklin} = \frac{2\beta}{D_{tri}\sqrt{1-\beta}} \quad (20)$$

és

$$Asym = \left\{ \frac{L'_t - L'_p}{1 + \frac{4(L'_t - L'_p)^2}{(FWHM_{triklin})^2}} \left[1 - \frac{2(FWHM_{triklin})^2}{(L'_t - L'_p)^2 + (FWHM_{triklin})^2} \right] \right\}. \quad (21)$$

ahol L' dimenziótlan változó, $L' = q/q_0$, adott triklin koordináta-rendszer harmadik Miller indexe [Balogh et al., 2009], illetve $FWHM_{triklin}$ az itt definiált félértékszélesség, β jellemzi az ikerhatár-sűrűséget, míg D_{tri} egy állandó, amit numerikus módszerekkel határozhatunk meg.

A fent említett elméleti tárgyalás kristályrendszer-től függetlenül, teljesen általánosan kezeli az ikresedés jelenségét. Ebből következően, a kettős lamella-modell a lapcentrált *köbös* kristályok ikresedésének tárgyalására is alkalmas [Balogh et al., 2009]. A vonalprofil alakja és a hozzátartozó félértékszélességek hibásűrűség-függése *fcc* kristályok esetében is a (19-21) egyenletekben leírtakkal adható meg.

2.1.3.3. Rétegződési -és ikerhibák, alreflexiókat módosító hatásának hkl függése

A 2.1.3.2. fejezetben található (19-21) egyenletek nem adják meg az alreflexiók szélesedésének hkl függését a piramidális síkon megjelenő ikerhatár létezősekor. Rétegződési hibák hkl -függő szélesedését, illetve az egzakt Bragg-csúcs, diffrakciós vektor szerinti eltolódásának mértékét a (13-17) egyenletek sem közlik. Így a következő részben ezekkel az egyenletekkel foglalkozom.

Hexagonális struktúra esetén, abban az esetben, mikor $L'_p = L'_t$, az alreflexiókra nincs hatással a kristály ikresedése, vonalprofiljuk Dirac-delta jellegű függvényvel jellemezhető. Minden más esetben a következő képletek használhatók a szélesedés hkl függésére, figyelembe véve az ikresedő kristály síkját [Balogh et al., 2009]:

$$FWHM_{11\bar{1}1}(g) = \frac{2}{g} \left| \frac{2c^2h+2c^2k+a^2l}{2a^2c^2} \right| FWHM_{\text{triklin}} \quad (22)$$

$$FWHM_{10\bar{1}1}(g) = \frac{2}{g} \left| \frac{2c^2h+2c^2k+a^2l}{2a^2c^2} \right| FWHM_{\text{triklin}} \quad (23)$$

$$FWHM_{10\bar{1}2}(g) = \frac{2}{g} \left| \frac{2c^2h+2c^2k+a^2l}{2a^2c^2} \right| FWHM_{\text{triklin}} \quad (24)$$

$$FWHM_{11\bar{1}2}(g) = \frac{2}{g} \left| \frac{2c^2h+2c^2k+a^2l}{2a^2c^2} \right| FWHM_{\text{triklin}} \quad (25)$$

Mivel a fenti profil-alakok, illetve az azokból származtatható félértékszélességek csupán adott alreflexiókra vonatkoznak, a teljes pordiffrakciós reflexiót akkor kapjuk meg, ha összeadjuk az összes alreflexió járulékat. Láthatjuk, hogy hexagonális kristályrendszer esetén az ikresedésnek csupán profil-szélesítő hatása van. Rétegződési hibák esetén a szélesítő hatás kiegészül az egzakt Bragg-csúcsok eltolódásával is.

Ha a síkhibák, köbös kristályrendszerben történő, profilt módosító hatását vizsgáljuk, a megfelelő félértékszélességek a következőképpen alakulnak, ha $h + k + l \neq 3N$:

$$\text{Rétegződési hibák esetén:} \quad FWHM_g = \frac{1}{g} \frac{|h+k+l|}{3a^2} \frac{1}{2} \ln(1 - 2\alpha^2) \quad (26)$$

$$\text{Ikerhibák esetén:} \quad FWHM_g = \frac{1}{g} \frac{|h+k+l|}{3a^2} \frac{2\beta}{\sqrt{1-\beta}} \quad (27)$$

ahol α és β a rétegződési és ikerhiba frekvencia, h, k, l pedig a köbös kristályrendszer Miller indexei. Rétegződési hibák okozta eltolódások, $h + k + l \neq 3N$ esetén, a következőképpen alakulnak [Balogh et al., 2009]:

$$\text{Shift}_g = \pm \frac{1}{g^2} \frac{|h+k+l|}{3a^2} \left\{ \text{atan}[\sqrt{3}(1-2\alpha)] - \frac{\pi}{2} \right\}. \quad (28)$$

A fenti egyenletben szereplő \pm választása a rétegződési hiba típusától függ. Azokban az esetekben, ahol a kristály alreflexiói egybeesnek az ikerkristály alreflexióival, az ikresedés nem lesz hatással az alreflexióra, profilfüggvénye Dirac-delta jellegű függvénnyel jellemezhető. Ez éppen az az eset, amikor $h + k + l = 3N$.

Végül a pordiffrakcióval mérhető hkl reflexiók teljes profilalakját úgy kapjuk, hogy súlyozottan adjuk össze az adott reflexióhoz tartozó összes alreflexió hatását, ahol a súlyozást az adott alreflexió típus multiplicitása határozza meg.

2.2. A röntgen vonalprofil analízis módszerei

2.2.1. Mikroszerkezet vizsgálat Williamson-Hall módszerrel

A vonalszélesedés okainak feltérképezésére évtizedek óta használják a Williamson-Hall módszert, hiszen a gömb alakú szemcsék „méret” vonalprofil alakja a (4) egyenletből következően nem függ a \mathbf{g} vektor hosszától és így a hkl indexektől sem, azaz rendfüggetlen. Ezzel szemben a „deformációs” profilfüggvény szélessége az (6) egyenletből következően növekszik a \mathbf{g} vektor nagyságának növekedésével. Erre a két ismervre támaszkodva használjuk a Williamson-Hall kvalitatív ábrázolást, mely a különböző diffrakciós indexű hkl vonalak félértékszélességét (FWHM) ábrázolja a \mathbf{g} vektor hosszának függvényében [Williamson et al., 1953]. Williamson és Hall ábrázolásuk során a profilok integrális szélességét használták, ezzel kvalitatívan megegyező következtetéseket kapunk, ha a reflexiók FWHM értékeit használjuk. Ha a vonalszélesedést csak gömb alakú szemcsék okoznák, akkor az összes mérhető diffrakciós csúcsonl egyforma szélesedést tapasztalnánk. Ha van rácsdeformáció, de $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ nem függne \mathbf{g} -és L -től, akkor a félértékszélességek monoton növekedést mutatnának. Ebből következik, hogy a két vonalprofil-szélesítő jelenség rendfüggése különbözik. Ezt kihasználva lehetőség van arra, hogy megállapítsuk a vonalszélesedés okait. Diszlokációk jelenléte, a deformációs anizotrópián keresztül,

bonyolultabbá teszi a kiértékelés menetét. A deformációs anizotrópia miatt a $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ értéke nemcsak a g hosszától, de annak irányától is függ, azaz az FWHM értéke nem-monoton függvénye g -nek. Az (6) és (7) egyenletekben látható viszont, hogy a diszlokációk okozta vonalszélesedés a hkl indexektől csak a $g^2 \bar{C}$ kifejezésen keresztül függ. Ha a megfelelő FWHM értékeket az átskálázott $g^2 \bar{C}$ függvényében ábrázoljuk, lehetőségünk van annak megállapítására, hogy az adott anyagban a rácsdeformációt elsősorban diszlokációk okozzák-e. Ha valóban ezek a vonalhibák a rácsdeformáció okai, akkor a mérési pontok egy folytonos görbére kell, hogy illeszkedjenek. Ezzel az ábrázolási módszerrel nemcsak a diszlokációk jelenlétére következtethetünk, hanem arra is, hogy melyek azok a diszlokációk, amelyek részt vesznek a vonalprofil szélesítésében. Az így kapott kvalitatív ábrázolást nevezzük *módosított Williamson-Hall* módszernek [Ungár et al., 1996].

A *módosított Williamson-Hall* ábrázolás [Ungár et al., 1999b] során, a (8) és (9) egyenletek alapján látható, hogy az adott reflexióhoz tartozó K érték a $\overline{C_{h00}}$ és a q paraméteren keresztül skálázódik át. A q értéke függ a diszlokáció él illetve csavar jellegétől. Azokban az esetekben, mikor az adott kristályrendszert jellemző csúszási rendszerek közül csak néhány csúszási rendszer jellemzi a vizsgált anyag mikroszerkezetét, az individuális kontraszt faktorokkal végzhetjük el az átskálázást. A *módosított Williamson-Hall* módszer azonban egyik esetben sem alkalmas a diszlokáció-sűrűség meghatározására, mivel a mérési pontokra illesztett polinom együtthatói nemcsak a diszlokációk sűrűségétől, hanem azok elrendeződésétől (R_e) is függenek.

2.2.2. Mikroszerkezet vizsgálat Konvolúciós Teljes Profil Illesztéssel (eCMWP)

A vonalprofil analízis módszerek közül csak azok adják meg megbízhatóan egy adott anyag mikroszerkezeti paramétereit, melyek a teljes profil illesztésén alapulnak. A Konvolúciós Teljes Profil Illesztés (eCMWP) módszere [Ribárik et al., 2004; Balogh et al., 2009] éppen egy ilyen tulajdonságú illesztési eljárás. A módszer használata során, az összes mért diffrakciós profil-csúcsra, egyszerre illesztett elméleti profilfüggvények alapján határozódnak meg a mikroszerkezeti paramétereket. A 2.1. fejezetben közölt elméleti profilfüggvények tartalmazzák mindazokat a fizikai paramétereket, melyek segítségével számszerűsíthetjük a szemcseméret-eloszlás két paraméterét (m és σ), vagy diszlokációk jelenlétét feltételezve, a diszlokáció-szerkezetet jellemző három paramétert (ρ , q , R_e). Ezenfelül a rétegződési (α) –és ikerhiba (β) sűrűsége is kaphatunk választ a numerikus illesztést követően.

Az eCMWP módszer, egy adott mikroszerkezeti paraméterkombináció esetén, minden csúcsra kiszámítja a „mért”, „deformációs”, „síkhiba” és „instrumentális” Fourier-transzformáltakat és ezeket összeszorozza. Az „instrumentális” profil a rendelkezésre álló berendezéstől származik. A Fourier-transzformáltak szorzatából inverz Fourier-transzformációval számítja ki az elméleti vonalprofil függvényt az adott mikroszerkezeti paraméterkombinációhoz. Ezek után a program az általunk meghatározott háttérhez hozzáadja az összes kiértékelendő csúcsához tartozó elméleti profilfüggvényt, majd az így kapott elméleti diffraktogramot illeszti a mért diffraktogramhoz. Az illesztés során az így kapott elméleti és a mért diffraktogram intenzitása közötti különbség négyzetösszegét csökkenti.

2.3. Deformációs-anizotrópia diszlokáció modellje

A diszlokáció okozta deformációs-anizotrópia a különböző diffrakciós csúcsok kiszélesedésében, a (7) egyenletben található $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ fizikai mennyiségen keresztül pontosan követhetővé válik [Kuzel et al., 1988, 1989; Ungár et al., 1996; Ungár et al., 1998; Ungár et al., 1999a; Ungár et al., 1999b; Ungár, 2008; Wu et al., 1998]. Ez a fizikai mennyiség az anizotrop jelleget a (7) egyenletben található C , diszlokáció kontraszt faktoron keresztül hordozza magában [Kuzel et al., 1989; Wu et al., 1998; Ungár et al., 1996; Ungár et al., 1999a, 1999b]. A kontraszt faktor numerikusan meghatározható a kristály rugalmas állandóinak illetve a lehetséges diszlokáció krisztallografikus tulajdonságainak ismeretében. A diszlokáció kontrasztjának, vonalprofilra tett hatásával Krivoglaz foglalkozott úttörőként [Krivoglaz et al., 1969]. Krivoglaz köbös kristályrendszerek rugalmas deformációjának anizotrop jellegét már ismerte. Wilkens [1970] volt az első, aki a rugalmas deformáció anizotrop jellegére komolyabb számításokat is végzett. Kiderült, miszerint a rugalmas állandók anizotrop jellege, nagymértékben befolyásolja a kontraszt faktorok értékeit. A transzmissziós elektron-mikroszkópiában jól ismert diszlokáció-kontraszt jelensége, mely a diszlokációk Burgers –és vonal vektorának, illetve a diffrakciós vektor egymáshoz viszonyított helyzetén alapul, éppen a diszlokációk krisztallográfiai aspektusait rejti magában. Mivel a diszlokációk geometriai elhelyezkedése is meghatározza a diszlokációkhoz tartozó kontraszt faktorokat, így a rugalmas állandók és a krisztallográfiai elhelyezkedésből következően lehetőség nyílik arra, hogy az egyes diffrakciós csúcsokhoz tartozó profilek vizsgálatán keresztül illetve a diszlokációkhoz tartozó kontraszt faktorok ismeretében, a vizsgált anyag diszlokáció-szerkezetére, illetve Burgers vektor eloszlására következtethessünk. [Ungár et al., 1999b; Dragomir et al., 2002a, 2002b].

2.3.1. Diszlokációk individuális kontraszt faktorai

Ebben a részben, az anizotrop rugalmas közegben létező diszlokációk, individuális kontraszt faktor kiszámításának általános formalizmusával, illetve a különböző kristálytani rendszerekben található csúszási rendszerekkel foglalkozom. Az elméleti leírás magában foglalja az anyagra jellemző rugalmas állandókat illetve a diszlokációk geometriai elhelyezkedését. Ezeknek a kontraszt faktoroknak a számszerűsítése teszi lehetővé az erősen textúrált anyagok vizsgálatát, vagy olyan struktúrák jellemzését, ahol a diszlokációk elrendeződése nem statisztikus jellegű. Azokban az esetekben, ahol nem beszélhetünk semmilyen orientációs kitüntetettségről, vagy a lehetséges Burgers vektorú diszlokációk egyenlő valószínűséggel létezhetnek, a vizsgált mikrostruktúra diszlokáció jellegéről az individuális kontraszt faktorokból származtatott átlagos kontraszt faktorok segítségével kaphatunk információt.

2.3.1.1. Kontraszt faktorok elméleti számolása különböző csúszási rendszerekben

Ahhoz, hogy a vizsgált mikrostruktúra diszlokáció-struktúrájáról beszélhessünk, elengedhetetlen, hogy az elméletileg lehetséges diszlokáció Burgers vektorát, jellegét, illetve a diszlokációk csúszási síkját meghatározzuk. A megfelelő csúszási al-rendszerek, illetve rugalmas állandók megadása után az individuális kontraszt faktorok számszerűsíthetők. Lapcentrált köbös rendszerekben többnyire az $a/2\{111\}\langle 110 \rangle$ csúszási rendszert ismerjük, például CaF_2 , NaCl , LiF anyagok esetén [Steeds, 1973], míg tércentrált köbös kristályok esetén elsődleges, illetve másodlagos csúszási rendszerekről is beszélhetünk. Remek példa erre a vas illetve a wolfram, ahol a két csúszási rendszer lehetőség szerint aktiválódhat. Az elsődleges rendszert az $a/2\{110\}\langle 111 \rangle$ jelenti, míg másodlagos rendszerként szokás $a/2\{112\}\langle 111 \rangle$ -et említeni. Ionkristályok esetén (PbS) akár az $a/2\{110\}\langle 110 \rangle$ csúszási rendszer is aktiválódhat [Steeds, 1973], míg alacsony hőmérsékletű deformáció során a flourit-típusú struktúrák a $a/2\{001\}\langle 110 \rangle$ csúszási rendszert preferálják [Kovács et al., 1965; Steeds, 1973]. Látható, hogy nagyon sokrétű a különböző csúszási rendszerekkel jellemezhető mikrostruktúra jellemzés, melyek az anyag egyéb más pl.: makroszkopikus mechanikai tulajdonságait is meghatározzák.

Köbös kristálytani rendszerben a rugalmas tulajdonságok egyszerűen kezelhetők. 3 rugalmas állandó segítségével jellemezhetjük a köbös kristálytani rendszereket: c_{11} , c_{12} , c_{44} .

Ezeknek az állandóknak az ismeretében, illetve az alábbiakban közölt általános formalizmus segítségével, minden csúszási rendszerhez tartozó individuális kontraszt faktor meghatározható.

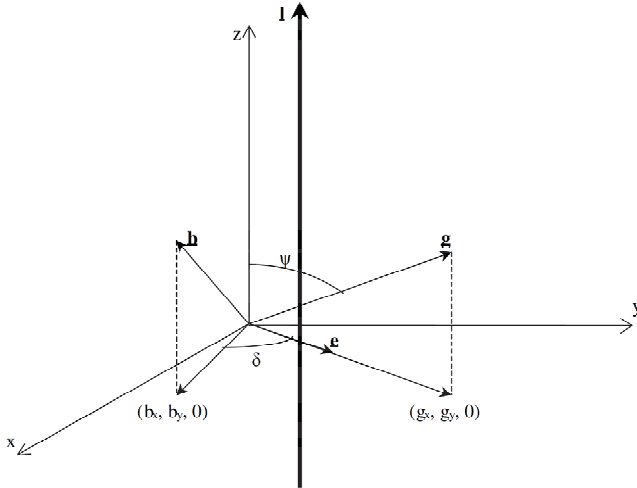
Ha a z -tengellyel párhuzamos él-diszlokációt vizsgálunk, ahol a diszlokáció elmozdulás terét polár-koordinátákban (xy síkban értelmezett (φ, r)) adjuk meg, a C individuális kontraszt faktor legáltalánosabban a következők szerint tárgyalható [Wilkins, 1970a; Kuzel, 1988; Groma et al., 1988]:

$$C = \frac{1}{\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi K^2(\varphi), \quad (29)$$

$$K(\varphi) = \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^2 \gamma_i \gamma_j \beta_{ij}(\varphi), \quad (30)$$

$$\beta_{ij} = \frac{2\pi r}{b} \frac{\partial u_i}{\partial x_j}, \quad i = 1, 2, 3 \text{ és } j = 1, 2 \quad (31)$$

ahol $K(\varphi)$ trigonometrikus polinom, γ_i és γ_j a diffrakciós vektor 1. ábrán definiált xy -síkban vett vetületeinek irány-koszinuszai, $\frac{\partial u_i}{\partial x_j}$ a disztorziós tenzor, \mathbf{u}_i jellemzi a diszlokáció elmozdulás terét, s végül r hossz-dimenziójú változó. A disztorziós tenzor φ szögtől való függését, a diszlokáció elmozdulás terének gradiense szolgáltatja.



1. ábra

Egyenes diszlokáció Burgers vektorának, vonal-vektorának és a diffrakciós vektornak relatív elhelyezkedése a megadott koordináta-rendszerben. A diszlokáció vonal-vektora párhuzamos a koordináta-rendszer z -tengelyével, míg a Burgers- és diffrakciós vektorok projekciói láthatóak az xy síkon.

2.3.2. Csúszási rendszerek és az elméleti kontraszt faktorok kapcsolata

Az előző fejezetekben eljutottunk odáig, hogy a rugalmas állandók illetve a csúszási alrendszerek ismeretében, az egyes individuális kontraszt faktorok kiszámíthatóak. Mivel a diszlokációkat jellemző elmozdulás tér lineáris, ezért a (6) egyenletben szereplő Cb^2 mennyiség, több diszlokáció esetén a $\overline{Cb^2}$ átlagos mennyiséggel helyettesítendő [Wilkins, 1970; Dragomir et al., 2002b]. $\overline{Cb^2}$ hordozza az anyagban megtalálható diszlokációk szerkezetét, mely az alábbi egyenlettel jellemzhető:

$$\overline{Cb^2} = \sum_{i=1}^N f_i \bar{C}^{(i)} b_i^2, \quad (32)$$

ahol N az al-csúszási rendszerek száma, $\bar{C}^{(i)}$ jellemzi az i -dik al-csúszási rendszer átlagos kontraszt faktorát, f_i jelöli az adott al-csúszási rendszer relatív hányadát, mely egy adott diffrakciós csúcshelyhez járul hozzá. Mivel köbös rendszerekben egy csúszási rendszerről beszélünk, így az al-csúszási rendszerek hiánya miatt a (32) egyenletben szereplő, különböző Burgers vektorokról létéről nem beszélhetünk, illetve az al-rendszerek relatív hányadáról sem. Lapcentrált- és tércentrált köbös kristályrendszerekben a fő csúszási rendszer $\mathbf{b} = a/2\langle 110 \rangle$ és $\mathbf{b} = a/2\langle 111 \rangle$ Burgers vektorokkal jellemezhető.

A (32) egyenletben szereplő $\bar{C}^{(i)}$ kontraszt faktorok átlagos jelzőt hordoznak. Ez annyit jelent, hogy az adott diffrakciós csúcsot jellemző összes hkl indexre meghatározott individuális kontraszt faktorok átlagolódnak ki, egyetlen, adott diszlokáció esetén. Ezek ismeretében az egyes mérési eredmények alapján kapott mért kontraszt faktorok már összehasonlíthatókká válnak az adott reflexiókhoz tartozó elméleti kontraszt faktorokkal.

2.4. Alkalmazott matematikai módszerek

A (7) egyenletben szereplő $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ mennyiségen keresztül jól jellemezhető a diszlokációk okozta vonalprofil. Ha tudomásunk van arról, hogy egy adott szerkezetű anyagban minden lehetséges csúszási rendszer jelen lehet, akkor a (7) egyenletben szereplő C , kontraszt faktor elméletileg meghatározható, így a diszlokáció sűrűség független fizikai paraméterként kezelhető. Azokban az esetekben, ahol bizonyos, a szerkezetet jellemző vonalhiba kitüntettség várható, a C , kontraszt faktor meghatározása nem tehető meg, hiszen nem ismertek az anyagban lévő diszlokációk. A diszlokációk ismerete nélkül viszont azok sűrűségére sem tudunk pontos, kvantitatív értékkel szolgálni. Ezekben az esetekben, a vonalprofil jellemző $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ fizikai mennyiségen keresztül csak a ρC mennyiség határozható meg jól. Mivel a diszlokációkat jellemző elmozdulás tér lineáris, ezért a következő egyenlet adja meg a számolt és a mért ρC mennyiségek összehasonlítására vonatkozó összefüggést [Csiszár et al., 2011a, 2012a]:

$$KC_{valódi}(hkl) \frac{1}{K} \rho_{valódi} = \sum_{i=1}^n \bar{C}_{th}(hkl, \mathbf{b}_i) f_i = \sum_{i=1}^n \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N'} C_{th}(h_j k_j l_j, \mathbf{b}_i) f_i \quad (33)$$

ahol K egy választott konstans, mely tetszőlegesen megválasztható a kiértékelés során, $K C_{valódi}(hkl)$ a reflexiók mért kontraszt faktora, $\frac{1}{K} \rho_{valódi}$ a mért diszlokáció sűrűség, f_i az i . diszlokáció sűrűsége, n a modellben résztvevő diszlokációk száma, $C_{th}(h_j k_j l_j, \mathbf{b}_i)$ azok az individuális kontraszt faktorok, melyek egy adott diszlokáció esetén, adott reflexió al-reflexióira vonatkoznak, $N^* \leq N$, ahol N a hkl reflexió multiplicitása, N^* pedig azon al-síkok száma, melyek az adott rost-textúra irányát figyelembe veszik egy adott hkl -re nézve. Ez utóbbi két-indexű mennyiség bevezetésére azért van szükség, mert erősen textúrált minták, adott reflexióihoz tartozó profiljainak mérésénél, a textúra-komponens iránya és a laborhoz rögzített koordináta-rendszer együttesen jelöli ki azokat az al-reflexiókat, melyek a diffrakció során aktívak. Csak ezeket az al-reflexiókat szabad figyelembe venni az elméleti számolás során. A (33) egyenlet pedig nem más mint egy lineáris egyenletrendszer, hogyha hkl Miller-indexeket értelemszerű futó-indexeknek tekintjük. Így a következő egyenletrendszert írhatjuk:

$$\begin{aligned}
 C_{ind}^*(h_1 k_1 l_1) \rho^* &= \sum_{i=1}^n \overline{C_{th}}(h_1 k_1 l_1, \mathbf{b}_i) f_i \\
 C_{ind}^*(h_2 k_2 l_2) \rho^* &= \sum_{i=1}^n \overline{C_{th}}(h_2 k_2 l_2, \mathbf{b}_i) f_i \\
 &\vdots \\
 C_{ind}^*(h_t k_t l_t) \rho^* &= \sum_{i=1}^n \overline{C_{th}}(h_t k_t l_t, \mathbf{b}_i) f_i
 \end{aligned} \tag{34}$$

ahol t index szimbolizálja az egyenletek számát, azaz a mérhető reflexiók számát. * szimbólummal kívántam kifejezni, hogy a mért kontraszt faktorok, illetve diszlokáció sűrűségek, egy K faktor erejéig meghatározottak. Ennek az egyenletrendszernek, pontosabban rész-egyenletrendszereknek a megoldása, esetleg megoldásai adják a keresett diszlokációkat illetve azok (valódi) sűrűségét. Az egyenletrendszer megalkotása után annak megoldásával kell foglalkoznunk, melyet a következő fejezetekben részletezek.

2.4.1. Kramer-szabály

A (34) egyenletrendszer megoldási módszerei közé sorolható a jól ismert Kramer-szabály. Tudjuk, hogy a Kramer-szabály $n \times n$ -es mátrixok esetén alkalmazható, ha az egyenletrendszer bal oldalán szereplő együtthatókból képzett u.n. együttható-mátrix determinánsa nem nulla. Esetünkben sajnos nem áll módunkban annyi reflexiót mérni, ahány változónk (f_i) van, így csak úgy tudjuk alkalmazni a fent említett eljárást, ha éppen annyi diszlokációt választunk ki egy adott egyenletrendszer megoldásakor, ahány mért, független reflexiót mérni tudunk. Így viszont $\binom{n}{r}$ féleképpen kell megoldani az adott egyenletrendszert. A kapott megoldások közül azokat, amelyek negatív értékek segítségével oldják meg az egyenletrendszert, elhagyjuk, hiszen negatív diszlokáció sűrűséget nem értelmezünk. Ahol a megoldás-vektor minden értéke nem-negatív, lehetőségünk van annak megállapítására, hogy az adott anyagban a rácsdeformációt valóban diszlokációk okozzák-e. Ugyanis a (34) egyenlet megoldásából meghatározható $\sum_i f_i$ értéke, így felhasználva a (33) egyenletet [Csiszár et al., 2011a, 2012a] kapjuk, hogy

$$\frac{1}{K} \rho_{\text{valódi}} = \rho_{\text{mért}} = \frac{1}{K} \sum_i f_i \quad (35)$$

↓

$$\frac{1}{\rho_{\text{mért}}} \sum_i f_i = K \quad (36)$$

↓

$$C_{\text{valódi}}(hkl) = \frac{C_{\text{mért}}(hkl)}{K} = \frac{C_{\text{mért}}(hkl)}{\frac{1}{\rho_{\text{mért}}} \sum_i f_i} \quad (37)$$

A (37) egyenlet jobb oldalán álló mennyiség függvényében minden hkl indexhez tartozó K értékhez rendelhetünk egy valódi kontraszt faktort. A 2.2.1. fejezetben említett *módosított* Williamson-Hall ábrázolás segítségével immár megállapíthatjuk, hogy valóban ezek a vonalhibák-e a rácsdeformáció okai, hiszen az adott reflexiókhoz tartozó félértékszélességek, mint mérési pontok egy folytonos görbére kell, hogy illeszkedjenek. A folytonos görbét, lineáris illetve másodfokú polinomok jelentik. Minél jobban illeszthetőek az átskálázott mérési pontok a folytonos görbére, annál inkább fogadható el a diszlokáció-szerkezet leírására az átskálázáskor figyelembe vett diszlokációk részhalmlaza. Ezzel az ábrázolási módszerrel

viszont nemcsak a diszlokációk jelenlétére következtethetünk, hanem arra is, hogy melyek azok a diszlokációk, amelyek részt vesznek a vonalprofil szélesítésében.

Nagy valószínűséggel fordulhatnak elő olyan esetek is, mikor a vizsgált mikroszerkezet, a valósághoz hűen, több diszlokáció segítségével írható le, mint ahány reflexiót mérni tudtunk. Kevesebb az egyenletek száma, így az adott egyenletrendszer Kramer-szabállyal való megoldhatósága miatt, kevesebb diszlokációt tartalmaz, mint ahány diszlokációra szükség lenne. Ezekben az esetekben a (34) egyenletrendszer, fent említett megközelítésével, azaz a Kramer-szabály alkalmazásával, csak úgy oldható meg, hogy a fizikai tartalom érvényét veszti. Más megoldási utat kell választani. Mivel viszont nem tudjuk a mért eredmények kiértékelésekor, hogy hány diszlokációra lesz szükség, a kiértékelés során egy másik kiértékelési eljárást is használok, melyet a következő részben ismertetek.

2.4.2. Newton-féle numerikus illesztési módszer

A Kramer-szabály alkalmazása során az egyenletek megoldására, megoldhatóság esetén, egyértelmű megoldást kapunk. A Newton-féle numerikus módszer használata során viszont számolnunk kell azzal az eshetőséggel, miszerint a kezdeti paraméterek befolyásolják a kapott végeredményeket illetve mivel a mérési lehetőségek következtében változóink száma meghaladja a független egyenletek számát, szabad paraméterek lesznek az iteráció során. A kapott eredményeket ebben az esetben is górcső alá kell venni, a 2.2.1. fejezetben ismertett *módosított* Williamson-Hall ábrázolás segítségével.

A numerikus illesztési módszernél definiálnunk kell azt a függvényt, melyet jelen esetben minimalizálni kívánunk. Így a (33) egyenlet alapján kapjuk [Csiszár et al., 2011a, 2012a]:

$$E(f_i) = \sum_{hkl} \left[\sum_{i=1}^n \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N'} C_{th}(h_j k_j l_j, \mathbf{b}_i) f_i - C_{mért}^{hkl} \rho_{mért} \right]^2 \quad (38)$$

ahol $E(f_i)$ a minimalizálandó függvény, f_i az egyes diszlokációk sűrűsége, míg az egyenlet jobb oldalán álló mennyiségek a (33) egyenletnél definiált mennyiségeket jelölik. Az optimalizálási probléma során az

$$E(f_i^{OPT}) := \min E(f_i) \quad (39)$$

elérését tűzzük ki. Az alkalmazott Newton-féle módszer esetén adott a fent említett $E(f_i)$, n darab változót tartalmazó minimalizálandó függvény, illetve léteznek az $E(f_i)$ függvény parciális deriváltjai. További feltevés, hogy az $E(f_i)$ függvény első, és második parciális deriváltjai léteznek és folytonosak azon a tartományon, ahol a kezdeti, illetve az végeredményt tartalmazó vektort választjuk (Megjegyzés: $E(f_i)$ függvény vektorosan is írható, azaz: $E(\bar{\mathbf{d}})$) [Süli et al., 2003]. Ha másodrendig Taylor-sorba fejtjük $E(f_i)$ függvényt $\bar{\mathbf{d}}_0$ körül, kapjuk

$$Q(\bar{\mathbf{d}}) = E(\bar{\mathbf{d}}_0) + \nabla E(\bar{\mathbf{d}}_0) \cdot (\bar{\mathbf{d}} - \bar{\mathbf{d}}_0) + \frac{1}{2!} (\bar{\mathbf{d}} - \bar{\mathbf{d}}_0) \cdot \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1^2} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1 d_n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1 d_n} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_n^2} \end{pmatrix} \cdot (\bar{\mathbf{d}} - \bar{\mathbf{d}}_0)^T + \dots \quad (40)$$

Mivel a $Q(\bar{\mathbf{d}})$ függvénynek ott lesz minimuma, ahol $\nabla Q(\bar{\mathbf{d}}) = \bar{\mathbf{0}}$, így a Taylor-sorfejtés gradiensére a következőt írhatjuk:

$$\nabla Q(\bar{\mathbf{d}}) = \nabla E(\bar{\mathbf{d}}_0) + (\bar{\mathbf{d}} - \bar{\mathbf{d}}_0) \cdot \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1^2} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1 d_n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_1 d_n} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_0)}{\partial d_n^2} \end{pmatrix} = \bar{\mathbf{0}}. \quad (41)$$

Abban az esetben, ha $\bar{\mathbf{d}}_0$ közel van a minimumhelyhez, a fenti Hesse-mátrix invertálható és az egyenletrendszer megoldhatóvá válik. Az előző formula tartalmazza azt a rekurzív eljárást, amivel egy jól választott kezdeti vektor esetén, az algoritmus konvergálni fog az $E(f_i)$ függvény minimumhelyéhez. A rekurzív képlet a következőképpen adható meg:

$$\bar{\mathbf{d}}_{s+1} = \bar{\mathbf{d}}_s - \nabla E(\bar{\mathbf{d}}_s) \cdot \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_s)}{\partial d_1^2} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_s)}{\partial d_1 d_n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_s)}{\partial d_1 d_n} & \dots & \frac{\partial^2 E(\bar{\mathbf{d}}_s)}{\partial d_n^2} \end{pmatrix}^{-1}. \quad (42)$$

A Newton-iterációs algoritmus nagy előnye, hogy abban az esetben ha konvergál a minimumponthoz, akkor a konvergencia kvadratikussá válik. Előnye és egyben hátránya is, hogy a

konvergens megoldás nagy valószínűséggel abban az esetben található csak meg, ha a kezdeti értékek közel vannak a megoldáshoz. Itt megjegyzem, hogy esetünkben a 3. fejezetben, később bemutatott kiértékelésekkor, az összes vizsgált egyenletrendszerre konvergens megoldás született. Hátránya viszont, hogy a minimalizálandó függvény és annak deriváltjának kiszámítása nagyon időigényes.

3. Diszlokáció-populációk –és rétegződési hibák kísérleti vizsgálata
- 3.1. Különböző rost-textúrával rendelkező, Ni fázisú vékonyrétegek diszlokáció és síkhiba analízise

3.1.1. Bevezetés

A nanokristályos anyagok elterjedése az elmúlt évtizedekben óriási léptékűvé nőtte ki magát. Ez a hatalmas lendület az ilyen típusú anyagok kiváló multifunkciós tulajdonságának volt köszönhető. Ezek a tulajdonságok olyan fejlett alkalmazásokban testesültek meg, mint a nanostruktúrájú vékonyrétegek, nano-porok vagy a jól ismert nano porokból előállítható tömörített, tömbi, nanokristályos anyagok. Ezeknek az anyagoknak az előállítása több évtizedes munka gyümölcseként volt megvalósítható. Az egyik ilyen előállítási mód az elektrokémiai úton történő depozíció. Ennek a módszernek az előnye, hogy a nanoskálájú szerkezettel rendelkező anyagok a) rugalmasan kezelhető, széles skálájú mikroszerkezeti paraméterekkel rendelkeznek b) több, különböző fázis együttes alkalmazása érhető el c) ipari alkalmazásra alkalmas és végül d) költség-hatékony.

Az elektrokémiai depozíció során előállított vékonyrétegek belső struktúrája, illetve fizikai paraméterei jól kontrollálhatóak az előállítás során, mind az elektroлитikus fürdő kémiai összetétele, mind az alkalmazott áramsűrűség típusa illetve mértékének függvényében. A depozíció során a katód szerepét éppen a kívánt vékonyréteg, egykristály hordozója képviseli. A kialakult mikroszerkezeti struktúra nagy mértékben függ a alkalmazott hordozó tulajdonságaitól is [Natter et al., 2008; Weil, 1989]. Az előbbiekből felsorolt befolyásoló tényezőknél kívül a magas hőmérsékletű hőkezelés illetve az önlágyulás is meghatározzák a létrehozott vékonyréteg alkalmazás során tapasztalható megbízhatóságát, funkcionalitását [Pantleon et al., 2006; Hansen et al., 2008; Pantleon et al., 2010]. Az alkalmazott depozíciós módszerek fő aspektusa a kialakulandó mikroszerkezet szemcseméret struktúrájának kialakítására irányul vagy az előállítás vagy az utólagos kezelés paramétereinek gondos megválasztása mellett. A paraméterek gondos megválasztására jó példa a szuper-konform vékonyrétegek növesztése, melyet a mikroelektronikai egységek többrétegű fémbevonásakor alkalmaznak [Moffat et al., 2010; Andricacos et al., 1998]. A kialakítandó mikroszerkezet legfontosabb aspektusai közé tartozik a depozíciókor kialakítandó nanokristályos szubszemcse méret, míg utólagos, többszöri hőkezeléssel éppen a kristályhibáktól mentes, nagy szemcsés mikroszerkezet elérésére törekszik. A végső struktúra

kialakítása nagy mértékben befolyásolja a vékonyréteg elektromos tulajdonságait. A kialakuló szemcse –illetve szubszemcseméret nikkal és nikkal bázisú ötvözetek vékonyrétegeinél is szignifikáns szerepet kap, ezzel befolyásolva az anyag mechanikai tulajdonságait is. Az ilyen vékonyrétegek alkalmazási területei közé sorolhatjuk a MEMS (Micro-Electro-Mechanical Systems) struktúrák kialakítását illetve az *electroforming* eljárását [Erb, 2010].

A hagyományos depozíciós eljárás csupán a szemcseméret kontrollját tűzi ki célul. Azonban az elmúlt évek során bebizonyosodott, hogy a szemcseméret kialakításának befolyásolásán kívül, a mikroszerkezetet befolyásoló síkhibák típusa illetve sűrűsége, illetve a diszlokációk jellege, sűrűsége is jelentősen változtat a kialakuló vékonyréteg tulajdonságain, melyek az addig ismert jellemzőktől eltérő képet mutat [Lu et al., 2009a].

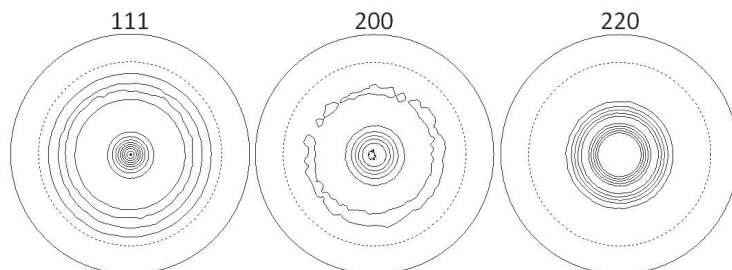
A vékonyrétegek mikroszerkezetének fizikai paramétereinek ismerete hozzásegítenek a vékonyréteg előállításánál során alkalmazott előállítási paraméterek finomhangolásához. A fizikai paraméterek vizsgálata direkt- és indirekt módon is történhetnek. Indirekt, pl.: elektromikroszkópos vizsgálatok lokális módszerek közé tartoznak, mely a minta nagyobb tartományairól nem szolgáltat megfelelő információt. Ezen felül a minta előkészítése nem kívánt szerkezeti változással járhat, hiszen sok esetben az anyagot jellemző szerkezet termodinamikailag nagyon nem-egyensúlyi. Röntgen-diffrakciós vizsgálatok - indirekt módszerként - ezzel szemben jóval nagyobb térfogatról adnak számot, így olyan diffrakciós diffraktogramokhoz juthatunk, melyek statisztikájuktól függően nemcsak a szemcsék méretéről, hanem a szubszemcse méretéről, a szemcsén belüli mikroszerkezetéről is kielégítő választ adhatnak. Ilyen információk nyerhetők a diszlokáció szerkezet, diszlokáció jelleg, diszlokáció sűrűség, síkhibák vagy akár ikresedő szemcsék ikerhatárainak sűrűségének tekintetében. Ez a fejezet nikkal fázisú vékonyrétegek mikroszerkezetének diffrakciós profil vizsgálatáról szól.

3.1.2. Ni vékonyrétegek előállítása

A különböző textúrával rendelkező vékonyrétegek úgynevezett Watts-fürdőben készülnek. A Ni fázis, elektrokémiai depozíció során egy Ni-P amorf fázisú rétegen növekszik. Különböző mértékű szerves adalék, dimetilacetilén-1,4diol, hozzáadásával illetve az elektrokémiai depozíció során használt áramerősséggel kontrolláljuk a kívánt textúra elérését. A Ni fázis depozícióját megelőzően egy réz polikristály hordozó felületére visszük fel a Ni-P amorf fázisú réteget. Az amorf Ni-P fázis azt a célt szolgálja, hogy a réz hordozó mikroszerkezete véletlenül se öröklőjön át a növeszteni kívánt Ni vékonyréteg mikroszerkezetébe [Alimadadi

et al., 2011]. Így elérhetővé válik, hogy a kialakítandó krisztallografikus orientációs preferencia ténylegesen csak az alkalmazott szerves adaléktól illetve az alkalmazott áram erősségétől függjön.

A 3 különböző textúrával rendelkező mintáink mikroszerkezetének vonalprofil analízise előtt, a minták textúrájának létezéséről kell meggyőződni. Hagyományos röntgen-diffraktogramok (D8 Discover Diffractometer, Bruker AXS) használatával meggyőződhetünk, hogy a minták valóban jellemzhetőek-e a kívánt textúrákkal. Az 2. ábra kvantitatív textúra-analízist szolgáló pólusábrái kiválóan szemléltetik a rost-textúrák létezését illetve azok kvalitatív erősségét, forgás-szimmetriájuk tökéletességével [Csiszár et al., 2012a].



2. ábra

$\langle 111 \rangle$, $\langle 200 \rangle$ és $\langle 220 \rangle$ reflexiók pólusábrái 2 A/dm² áramerősség és 5 mMol/dm³ koncentrációjú additív hozzáadásával növesztett Ni vékonyrétegnél. Minden vizsgált minta esetén, a hozzátartozó pólusábra, hasonló statisztikájú eredményt hozott.

A mért pólusábrákból számíthatók az u.n. *orientation distribution function*. A számítás során az adott rost-textúra irányának erőssége az inverz pólusábra segítségével készült el, *m.r.d.* mértékegységben (multiple-of-random-orientation-distribution), ahol az inverz pólusábra a vékonyréteg növesztési irányával párhuzamosan van definiálva. A minták többsége vagy $\langle 111 \rangle$, vagy $\langle 100 \rangle$ vagy $\langle 110 \rangle$ textúrákomponenssel rendelkezik. Egyes minták esetén a fő textúra komponens mellett egy másodlagos textúra komponenssel is rendelkezik. Az egyes mintákat jellemző adatokat az 1. táblázat tartalmazza [Csiszár et al., 2012a]. A filmek teljes vastagsága körülbelül 15 μ m.

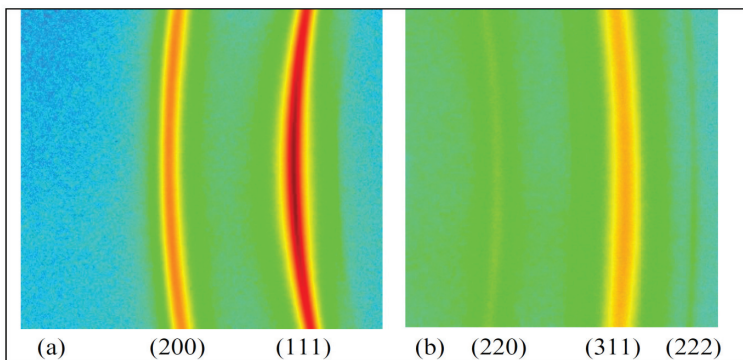
Koncentráció [mMoldm ⁻³]	Áramsűrűség [Adm ⁻²]		
	2	5	10
10	<111> 5.5	<111> 2.5 + <511> 1.6	<111> 3.2 + <511> 2.0
5	<211> 2.7	<111> 2.7 + <100> 2.1	<100> 32
0	<211> 4.9	<100> 5.5	<100> 10

1. táblázat

Különböző áramerősség és szerves adalék hozzáadásával növesztett Ni vékonyrétegek textúrákomponensei illetve a hozzájuk tartozó *m.r.d.* értékek a befolyásoló paraméterek függvényében. A rost-textúra tengelyének iránya a szokásos <uvw> formalizmussal jellemzett.

3.1.3. Röntgen diffrakciós mérések

A diffrakciós méréseket nagyfelbontású, két kristályos röntgen diffraktométerrel végeztem. A diffraktométer elhanyagolható mértékű instrumentális szélesítő hatással rendelkezik, így a vonalprofil analízis során a kapott eredményeket nem befolyásolja. Vonal finom- fókuszálású, Co anódú diffraktométer 30 kV és 30 mA, azaz 0.9 kW teljesítmény elérése mellett üzemelt. A karakterisztikus sugárzás egyetlen Co $K\alpha_1$ hullámhosszát, egy Ge (220) reflexiójára szimmetrikus síkjának segítségével értem el. A mintákat elérő nyaláb keresztmetszete $0.1 \times 2 \text{ mm}^2$ volt a minta felületén. A mintákról szóródott nyaláb detektálásához 2D *imaging plate* (IP)-et használtam, mindegyiket 193mm sugarú körív mentén, ahol a kör középpontjában a megvilágított minta helyezkedett el. Egy ilyen mérés eredménye látható az alkalmazott IP felvételek bemutatásával a 3. ábrán. Az ábrán bemutatott (111) és (311) reflexiók különböző mérési elrendezésben lettek detektálva.



3. ábra

IP felvételek (a) (111) és (b) (311) reflexiók esetén. Az IP-ken más reflexiókhoz tartozó Debye-Scherrer gyűrűk is láthatóak, ezek viszont nem az (111) és (311) reflexiók mérésénél figyelembe vett textúrakomponens szemcsétől származnak. A két fent említett reflexió az egyik $\langle 211 \rangle$ textúrával rendelkező mintára vonatkozik. Az (a) jelű képen nem teljesen éles, inkább elnyúlt, magas intenzitású Debye-Scherrer gyűrű éppen a textúra létezéséről tanúskodik.

A diffrakciós spektrum egyes reflexióihoz tartozó csúcsait az IP-ken rögzített intenzitás-eloszlás, Debye-Scherrer gyűrűk mentén való elhajlási szög szerinti kiintegrálásából kapjuk. A minta felületét 1.5mm nagyságú vertikális nyaláb éri, a minta-detektor távolság a fent említett 193mm és a mérés vertikális divergenciája a nyaláb beállíthatóságából következően körülbelül 4×10^{-3} . Ebből következően az IP-k középső 25mm magas tartományában a függőleges divergencia okozta szélesítő hatás a diffrakciós csúcsokra nézve kisebb, mint $5 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$. Ez a hatás kisebb, mint 5%-os mérési hibát okoz a legnagyobb elhajlási ívvel rendelkező Debye-Scherrer gyűrű esetén is. A hiba mértéke éppen nullává válik, mikor a gyűrűk “kiegyenesednek”. A vonalprofil analízis kiértékeléséhez ezt a középső 25mm magas négyeszőg tartományt használjuk. A kiértékelés során így lesznek olyan elhajlási csúcsok, melyek nem a várt abszolút, illetve relatív intenzitásukkal lesznek figyelembe véve. Mivel viszont a vonalprofil analízis nem függ az elhajlási csúcsok abszolút illetve relatív mértékétől a kiértékelés hiánytalanul elvégezhető.

A minták $\langle 111 \rangle$, vagy $\langle 100 \rangle$ vagy $\langle 110 \rangle$ textúrákomponenssel rendelkezik, mely irányok párhuzamosak a minta felületének normálisával. Ebből következően, ha azt szeretnénk, hogy a laborrendszerünkben mérhető összes reflexió esetén mindig ugyanaz a kristallit sokaság legyen aktív a diffrakció során, és amely sokaság éppen a textúra komponenshez tartozik, a minta felületének normálisa és a mintára eső, bejövő nyaláb közötti szög meghatározott értéket vehet csak fel. Így egy adott hkl reflexió mérésénél mindig az adott textúrákomponenshez tartozó hkl síkok diffraktálnak. Laborrendszerünkben 4 különböző reflexió volt mérhető, így a különböző fő-textúrával rendelkező mintákat a 2. táblázatban felsorolt szögben kellett a goniométeren elhelyezni. A 2. táblázatban α jelöli a bejövő nyaláb és a minta felületének normálisa közti szöget, mindenegyes fő-textúrákomponens (Ma) illetve reflexió függvényében. A méréseket minden esetben reflexió sík geometriában lehetett csak elvégezni.

a) $\langle 111 \rangle$ textúra

	Reflexió			
	111	220	311	222
α (°)	26	10.6	27	61.5
2θ ($\lambda=0.179$ nm) (°)	52.26°	91.97°	114.98°	123.47°

b) $\langle 100 \rangle$ textúra

	Reflexió			
	200	220	311	222
α (°)	30.5	~ 1	32	7
2θ ($\lambda=0.179$ nm) (°)	61.13°	91.97°	114.98°	123.47°

c) $\langle 211 \rangle$ textúra

	Reflexió			
	111	220	311	222
α (°)	7	16	47	42

2. táblázat

A minta felületének normálisa és a mintára eső, bejövő nyaláb közötti szög, α , kielégíti azt a követelményt, miszerint minden mért reflexió esetén mindig az adott textúrákomponens hkl síkjai a reflektáló síkok. A különböző 2θ , elhajlási szögeket is feltüntettem a mérés során használt hullámhossz függvényében.

A 3. ábrán bemutatott két IP felvétel egy <211> fő-textúrákomponenssel rendelkező minta (111) és (311) reflexióját mutatja, ahol a megfelelő szögek $\alpha_{111}=7^\circ$ and $\alpha_{311}=47^\circ$. A mérés során az IP-ken a (220) és (222) reflexiók is kivehetőek, bár alacsony intenzitással. Ezek azok a reflexiók, melyek nem a <211> fő-textúrákomponenshez tartozó kristallitok 220 és 222 síkjaitól származnak. Ezek a mért reflexiók viszont a fő-textúrákomponenshez nem tartozó kristallitok mikroszerkezetéről szolgáltatnak információt. Ezeket a reflexiókat is görcső alá veszem a vonalprofil analízis alkalmazása során, hiszen a fő-textúrához nem-tartozó kristallitok is rendelkeznek bizonyos mikroszerkezettel.

3.1.4. A mért diffrakciós profilok kiértékelése

A vonalprofil analízis, a mért diffrakciós profilok kiértékeléséhez 2.2.2. fejezetben bemutatott kiterjesztett Konvolúciós Teljes Profil Illesztés (eCMWP) módszerét alkalmazza. A numerikus illesztés során lehetőség van a mért profilok, fizikai tartalom tekintetében, egymástól teljesen eltérő kiértékelési eljárás alkalmazására. A eljárások alapvetően a textúra jelenségének figyelembe vételén vagy annak teljes figyelmen kívül hagyásán alapszik. (a) Ha a vizsgált mikroszerkezet kristallitokra vonatkozóan nem rendelkezik semmilyen kitüntetett iránnyal, az illesztés során átlagos diszlokációs kontraszt faktorok, \bar{C} , használata indokolt, mely a (8) egyenletben megadott hkl formulával meghatározható. (b) Fizikai értelemben eltérő módon járunk el, mikor a textúrákomponensek figyelembevételével individuális kontraszt faktorok, $C_{ind}(hkl)$, használata szükséges a diszlokációk kontrasztjainak meghatározására.

A 2.4. fejezetben említettem, hogy ismeretlen diszlokáció szerkezet esetén a ρC mennyiség határozható meg pontosan. Ebből következően a numerikus illesztéskor szabadon megadható a diszlokáció sűrűségének mértéke, melyhez igazodva kerülnek a $C_{ind}^*(hkl)$, individuális kontraszt faktorok is illesztésre. A jelölésnél használt * szimbólum arra vonatkozik, miszerint ezek a kontraszt faktorok nem a valódi értéket hordozzák, hanem a megadott ρ^* szerint skálázódnak. Így kapjuk:

$$\langle e^2 \rangle \sim \rho^{valódi} C^{valódi} = \rho^* C^* \quad (43)$$

ahol a csillaggal ellátott mennyiségek formális fizikai tartalommal bírnak, míg a jelöletlen társaik a valódi diszlokáció sűrűséget illetve individuális kontraszt faktort hivatottak jelenteni.

Ezekután a (33) egyenletben definiált hkl -függő egyenletek felírása, a (34) egyenletrendszer megoldása és a kapott eredményekből, a (37) egyenlet alapján meghatározhatók a valódi diszlokáció sűrűség, $\rho^{\text{valódi}}$, illetve a valódi individuális kontraszt faktorok, $C_{\text{valódi}}$, is.

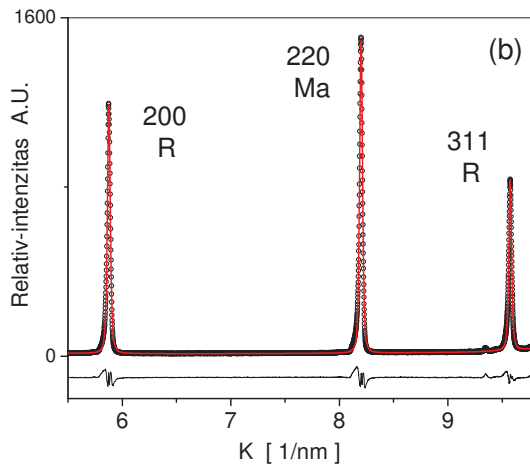
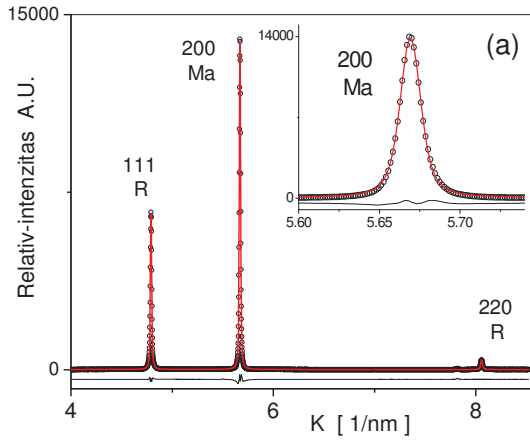
A fent említett két eltérő kiértékelési eljárás mellé egy harmadik módszer készült el, amely lehetővé teszi a különböző textúrákomponenshez tartozó kristallit sokaságra történő párhuzamos kiértékelést. (c) Az eCMWP módszer alkalmazása során ez esetben a kiértékelendő diffrakciós spektrum a reciprok tér változója, $K=2\sin\theta/\lambda$ szerint történik, ahol θ a diffrakciós szög, míg λ az alkalmazott röntgensugárzás karakterisztikus hullámhosszát jelöli. Mivel mindenegyes diffrakciós csúcs profiljának, a profil alakjának és kiszélesedésének kiértékelése az egzakt Bragg-csúcs körül történik, ezért elérhető az, hogy a laborrendszerben mérhető, összes fő- vagy esetenként mellék-textúrákomponenshez tartozó független hkl -ek szerinti mérési spektrum egy, összeillesztett fiktív spektrum kiértékelésére redukálódjon. Az összeillesztett spektrum megalkotásánál az adott egyedi spektrumokat K változó szerint el kell tolni. A K változó szerint eltolt és összeillesztett spektrumban így a mérhető összes diffrakciós csúcs párhuzamosan kiértékelhetővé válik (Megjegyzés: a diffrakciós csúcsok centruma a kiértékelés során csak a hozzájuk tartozó hkl indexek és a megfelelő rácsparaméter függvénye). Ennek az új módszernek az előnye, hogy több mint egy, azonos d ($d=\lambda/2\sin\theta$) értékhez tartozó diffrakciós csúcs profilja értékelhető ki egyszerre, míg a profilok más és más kristallit sokasághoz tartoznak.

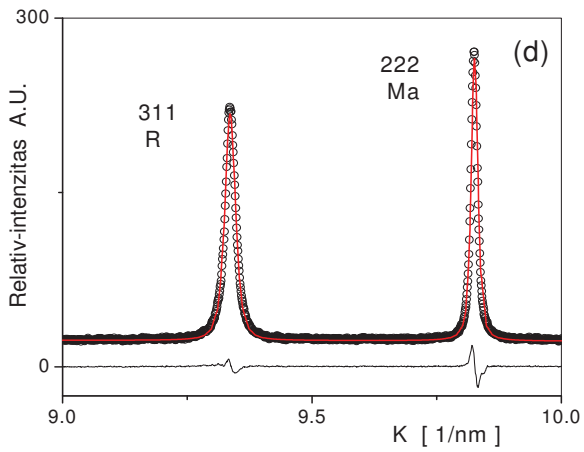
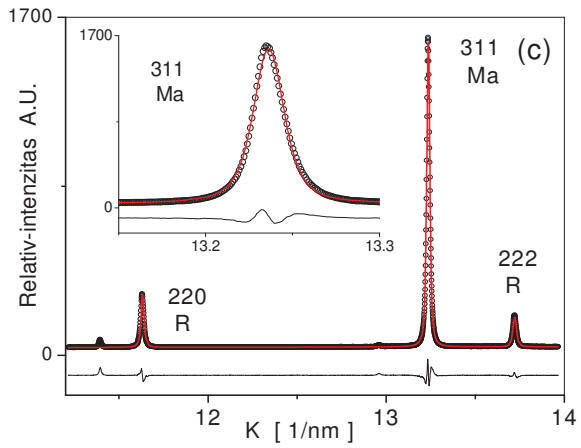
Természetesen a profilok alakjában konvolválódott deformációs hatás a különböző sokaságokra nézve más és más lehet. Így a (8) egyenletben megadott kiértékelési út nem alkalmazható, hiszen a számolt átlagos kontraszt faktorok használata a q paraméteren keresztül összekapcsolná a különböző sokaságokhoz tartozó deformációs profilokat. Ebből kifolyólag csak az individuális kontraszt faktorok, $C_{\text{ind}}^*(hkl)$, használata megengedett. Ez az út viszont nemcsak a mérési spektrumok helyes kiértékeléséhez vezet, hanem azt a lehetőséget is megadja, hogy az azonos textúrákomponenshez tartozó reflexiók kiértékelésekor éljünk a Burgers vektor populáció kialakulásának nem-véletlenszerű voltával. A kiértékelés során figyelembe veszem, hogy az azonos textúrákomponenshez tartozó hkl reflexiók és felharmonikusaik individuális kontraszt faktorai nem függetlenek egymástól. Így például a $C_{\text{ind}}^*(111)$ és a $C_{\text{ind}}^*(222)$ értékeinek azonosnak kell lenniük.

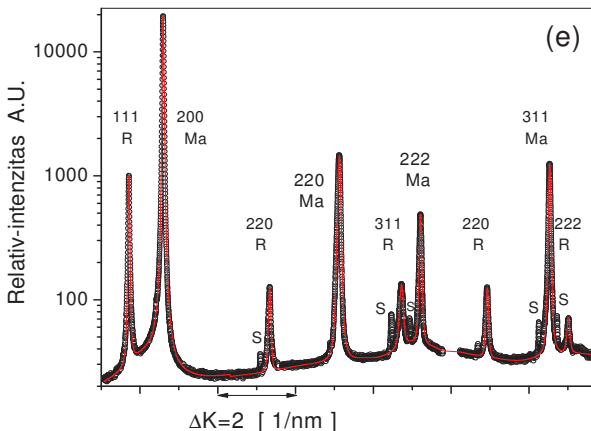
A (b) és (c) pontokban leírtak szerint értékeltem ki a mérésekből származó diffrakciós spektrumokat. Így párhuzamosan lehetett a kiértékelést elvégezni a fő-textúrákomponenshez (Ma) tartozó kristallit-sokaság mikroszerkezetére vonatkozóan, míg azon szemcsék, szub-

szemcsék mikroszerkezetéről is információt kaphattam, melyek véletlenszerű orientációval rendelkeznek (R). Ezenfelül egy esetleges másodlagos (Mi), mellék-textúrákomponenshez tartozó krisztallit sokaságról is szólhatok.

A 2. táblázatban közölt α szögek szerint beállított minta-pozíciók tipikus mérési spektrumai láthatóak a 4. ábra (a-d) képein [Csiszár et al., 2012a]. Ezek a beállítások a fő-textúrákomponensre vonatkozó krisztallitsokaságról adnak diffrakciós képet. Jól látható a különböző reflexiók mérésénél, hogy az adott textúrákomponenshez tartozó egyéb reflexiók, hogyan változtatják relatív intenzitásuk mértékét. A 4f. ábrán bemutatott, u.n. mesterséges spektrum próbálja illusztrálni a (c) pontban leírtak szerint elkészített és ezeketán kiértékelt spektrumot. A kiértékelés pontosságának bemutatását logaritmikus skála segíti, ahol a relatív-intenzitás értékek bár K függvényében ábrázoltak, mégis csak ΔK szerint értelmezhetőek. Ezeken az ábrákon a 200, 220, 311 és a 222 reflexiók, azonos textúrákomponenshez tartozó reflexiói voltak. Ezeket az ábrán (Ma) jelöléssel mutatom be. Ahogy azt említettem, az erős textúra mellett véletlenszerű orientációval rendelkező krisztallit sokaság is jelen van. Ezen krisztallitok megfelelő síkseregeik aktívak lehetnek egy adott beállítás során, így hozzájárulnak más reflexiók kirajzolódásához. Ezeket a csúcsokat (R) jelöléssel illetttem. A 4. ábrákon kivehető a Cu szubsztrátumhoz tartozó diffrakciós csúcsok is. Ezek nem vesznek részt a kialakuló Ni vékonyréteg mikroszerkezetében, így nem kap szerepet a kiértékelés során sem. A diffrakciós spektrumban megjelenő Cu reflexiókat (S) jelöli.







4. ábra

Mindegyik ábrán nyitott körök jelzik a diffrakciós mérés eredményét, míg a piros folytonos vonallal az elméleti, illesztett teljes profil-függvényt adom meg. (a), (b), (c) és (d) ábrák esetén 10 A/dm^2 áramerősség és additív hozzáadása nélkül elkészített, $\langle 100 \rangle$ textúrájú minta kerül bemutatásra. Az egyes ábrák az egyenként beállított, fő-textúrákomponenshez tartozó 200(a), 220(b), 311(c) és 222(d) reflexiók (Ma) mérésénél kapott diffrakciós spektrumot ábrázolják. (R) szimbólum, random-orientációjú szemcsék diffrakciós csúcsait jelentik.

(e) ábrán látható a mesterségesen összeillesztett diffrakciós spektrum. Az (e) ábrán látható spektrum 10 A/dm^2 áramerősség és 5 m Mol/dm^3 additív hozzáadása mellett depositált minta diffrakciós spektrumát illusztrálja, mely úgyszintén $\langle 100 \rangle$ textúrával rendelkezik. Az alkalmazott logaritmus skála segítségével a szubsztrátum Cu csúcsai is megfigyelhetőek. Ezeket (S) szimbólum jelöli.

A diszlokációk okozta profilalak illetve szélesítő hatás mellett a koherens szóró tartományok vonalprofilalakja is meghatározható az eCMWP módszerrel. A (4) egyenletben megadott profilfüggvényen keresztül számszerűsíthető a véges szubszemcseméret-eloszlás lognormális sűrűségfüggvénye, így megkapjuk a (4) egyenlet két leíró paraméterét, mely: m és σ . A log-normális eloszlásfüggvénye mediánja (m) és logaritmus variációjára (σ) lehetőséget ad a sűrűségfüggvény különböző momentumainak kiszámítására. Ezek a momentumok hordozzák

a különböző átlagú szubszemcseméreteket. Mivel a TEM képek az anyag egy adott síkmetszetét szolgáltatják, a TEM képeken látható szub-szemcseméret, a sűrűségfüggvény második momentumával korrelál legjobban. Ennek számszerűsítése az (5) egyenletben megadott formula segítségével adható meg.

3.1.5. A diszlokáció-struktúra kiértékelése

3.1.5.1. Diszlokáció sűrűség különböző textúrákomponensek esetén

Az egyesített diffrakciós spektrum kiértékelésekor mindenegyes reflexió esetén, egymástól függetlenül mérhető, $C_{ind}^*(hkl)$, mért individuális kontraszt faktorok kaphatók. Ahogy azt a 3.3.4. fejezetben már említettem, az egyetlen megkötés, hogy adott reflexió és felharmonikusainak kontraszt faktorai meg kell, hogy egyezzenek. Így ezek nem illeszthetők egymástól függetlenül. Ezen megkötés mellett a *különböző* textúrákhoz tartozó reflexiók diszlokációk okozta vonalszélesedése kiértékelhető, így a megfelelő diszlokáció sűrűségek is számszerűsíthetővé válnak.

A (34) egyenletrendszer Kramer-szabállyal történő megoldása illetve a (38) egyenletben megadott, minimalizálandó függvény esetén is szükség van az elméleti individuális kontraszt faktorok meghatározására. Az adott mérési geometriát figyelembe véve az elméleti kontraszt faktorokat az ANIZC program [Borbély et al., 2003] segítségével határoztam meg. A program figyelembe veszi a diszlokációt jellemző Burgers-vektort, \mathbf{b} , vonalvektort, \mathbf{l} , illetve a csúszási síkot, \mathbf{n} . Esetünkben, Ni , lapcentrált köbös anyagról lévén szó az elméleti kontraszt faktorok 12 él illetve 6 csavar jellegű diszlokáció figyelebevételét jelentik, mindegyik $\{111\}$ típusú csúszási sík és $[110]$ Burgers vektorú eltolás-vektorral. Figyelembe véve az adott fázist jellemző rugalmas állandókat, minden, a diffrakció során lehetséges aktív al-síkra meghatározható az adott elméleti érték. Az adott aktív al-síkok például $\langle 111 \rangle$ textúrákomponens esetén a $\{220\}$ reflexióra nézve: (220) , (202) és (022) , míg $\langle 100 \rangle$ textúrákomponens esetén ugyanarra a $\{220\}$ reflexióra a (220) , (202) , $(\bar{2}20)$ és $(0\bar{2}0)$ al-reflexiókat tartalmazza [Cheary et al., 2000; Csiszár et al., 2012a].

Az $\langle 111 \rangle$ textúrákomponenssel rendelkező minták között vannak olyanok is, melyek másodlagos textúra komponenssel is rendelkeznek. Ezek a másodlagos textúrák vagy $\langle 100 \rangle$ vagy $\langle 511 \rangle$ orientációt jelentenek. Az $\langle 511 \rangle$ másodlagos textúrával rendelkező minták másodlagos textúráját jellemző mikroszerkezeti sajátosságai is ki lettek értékelve. Azok a

diffrakciós csúcsok, amelyek nem tartoztak egyik textúrákomponenshez sem, úgyszintén görcső alá kerültek, viszont ezek mikroszerkezetére az átlagos kontraszt faktor alkalmazása tűnt célravezetőnek. Ezek a reflexiók természetesen jóval kisebb intenzitással rendelkeznek, mint a textúrákomponenshez tartozó társaik.

3.1.5.2. Fő-textúrákomponenshez tartozó krisztallit sokaság Burgers-vektor analízise

A sokaságra vonatkozó Burgers-vektor analízist a 2.4. fejezetben leírt módon, a mért, $C_{ind}^*(hkl)$, illetve a számolt, $\overline{C_{th}}(hkl, \mathbf{b}_i)$ individuális kontraszt faktorok összehasonlításával értem el. Mindkét módszer alkalmazása során a kapott diszlokáció sűrűségek, f_i , segítségével a (35), (36) és (37) egyenletek alapján a reflexiók valódi kontraszt faktorai már kiszámíthatóak, így a 2.2.1. fejezetben ismertetett, *módosított* WH ábrázolással meggyőződhetünk, hogy a kapott diszlokáció részalmaz valóban szerepet játszik-e a mikroszerkezet kialakításában. A Newton-féle numerikus illesztés során a diszlokáció sűrűségek kezdeti paraméter értékei, a diszlokációk nem-ismert kitüntetettsége folytán, azonos mértékű volt, illetve az abszolút értékük is olyan intervallumba eset, hogy a belőlük számolható individuális kontraszt faktorok nagyságrendje az esetleges valódi individuális kontraszt faktorok nagyságrendjébe essen. A 2.2.1. fejezet- és a 2.4. fejezetben részletezett lépések alapján tehát meghatároztam az anyagban előforduló (a) egyedi diszlokációkat és (b) valódi diszlokáció sűrűséget.

3.1.6. Diskusszió

3.1.6.1. Diszlokáció sűrűség

A minták diszlokáció sűrűségét jellemző diffrakciós profilok kiértékelése során széles tartományt tapasztaltam. A különböző textúrájú vékonyrétegek diszlokáció sűrűsége az $0.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ mértéktől egészen a $23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ -es mértékig terjednek. A diszlokáció sűrűségek magukban foglalják a majoráns, ρ_{Ma} , minoráns, ρ_{Mi} , és „random”, ρ_R , textúrákomponenshez tartozó krisztallitok deformációs jellegét. A mintákat jellemző diszlokáció sűrűségeket a 3. táblázat tartalmazza [Csiszár et al., 2012a].

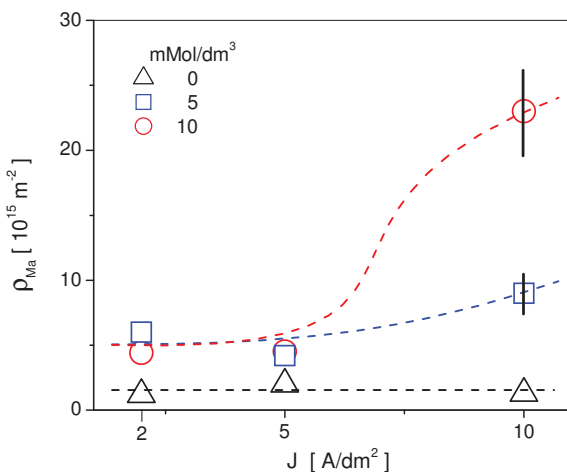
Depozíciós feltételek	Minta	ρ_{Ma} [10^{15} m^{-2}]	ρ_R [10^{15} m^{-2}]	ρ_{Mi} [10^{15} m^{-2}]
0 mMol/dm ³ , 2 A/dm ²	M/0/2/<211>	1.2 (±0.2)	0.5 (±0.1)	-
5 mMol/dm ³ , 2 A/dm ²	M/5/2/<211>	6.0 (±1.0)	6.1 (±1.0)	-
0 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²	M/0/10/<100>	1.3 (±0.2)	0.9 (±0.2)	-
0 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	M/0/5/<100>	2 (±0.2)	0.7 (±0.1)	-
5 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²	M/5/10/<100>	9 (±2)	9.1 (±2.0)	-
5 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	M/5/5/<111> +<100>	4.2 (±1.0)	-	-
10 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	M/10/5/<111> +<511>	4.5 (±1.0)	5.8 (±1.0)	14 (±3)
10 mMol/dm ³ , 2 A/dm ²	M/10/2/<111>	4.4 (±1.0)	5.9 (±1.0)	-
10 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²	M/10/10/<111> +<511>	23 (±4)	12 (±2)	26 (±5)

3. táblázat

A fő-, ρ_{Ma} , a minoráns, ρ_{Mi} , és a „random”, ρ_R , textúrákomponenshez tartozó kristallitok diszlokáció sűrűségei. A minták jelölése: M/additív-koncentráció/áramerősség/textúra. A vékonyrétegek előállítási feltételeit az első oszlop tartalmazza. A diszlokáció sűrűségét jellemző hibát a zárójelekben tüntettem fel. A zárójelekben található értékek a mérésből származó bizonytalanságot hordozzák, a numerikus illesztés hibája elhanyagolható.

A mintákat jellemző fő-textúrákomponens kristallitjai azonos vagy magasabb diszlokáció sűrűséget mutatnak, mint a textúrákomponenshez nem tartozó, véletlenszerű orientációval rendelkező társaik. A diszlokáció sűrűségeket összehasonlítva a 1. táblázatban közölt vékonyréteg-növesztési feltételekkel, arra a következtésre jutottam, miszerint a legalacsonyabb sűrűség értékek akkor adódnak, mikor az additív dimetilacetilén-1.4diol közreműködésétől eltekintünk. Az idetartozó diszlokáció sűrűség értékek $1 \times$ és $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$, függetlenül az alkalmazott áramerősségtől. 5 mMol/dm³ adalék hozzáadásával ρ_{Ma} mérteke növekedni kezd, míg el nem éri a $9 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ -es mértéket. A diszlokáció sűrűség növekedése ebben az esetben az alkalmazott áramerősség növekedésével erős korrelációt mutat. A legmagasabb, 10 mMol/dm³, koncentrációjú additív hozzáadása mellett, a növekvő, alkalmazott áramsűrűség függvényében, növekvő diszlokáció sűrűség tendenciát tapasztaltam,

sőt ilyen feltételek mellett a kialakult vonalhiba sűrűsége elérte a legmagasabb, $23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ – es értéket. Ennek szemléltetésére, hogy miként játszanak szerepet a depozíció során alkalmazott paraméterek a diszlokációk kialakulásában, a fő-textúrákomponenshez tartozó diszlokációk sűrűségeket, ρ_{Ma} , a 5. ábrán ábrázoltam az alkalmazott áramsűrűség és az additív koncentrációjának függvényében. Az ábrán nagyon jól látható, hogy az alkalmazott adalék 5 mMol/dm^3 koncentrációja felett, a Ni vékonyrétegben található diszlokációk mértékét az alkalmazott áramerősség befolyásolja szignifikánsan.

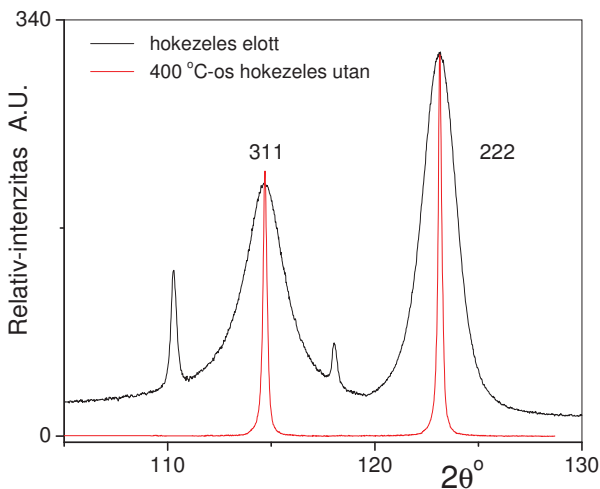


5. ábra

Diszlokáció sűrűség értékek az alkalmazott egyenáram, illetve az additív koncentrációjának függvényében. Az ábra az összes vizsgált vékonyréteg minta, fő-textúrákomponensére vonatkozó diszlokáció sűrűségeit mutatja. 10 mMol/dm^3 additív alkalmazása esetén, a növekvő áramsűrűség nagymértékben megváltoztatja a vékonyréteg mikroszerkezetét.

A röntgen diffrakciós mérések során tapasztalható diszlokáció sűrűségek, a tapasztalható átlagos mértéktől nagymértékben eltérnek. Ennek ellenőrzésére, hogy valóban ilyen mértékű

rácshibáról beszélhetünk, a legmagasabb diszlokáció sűrűséggel rendelkező vékonyrétegeket, hőkezelésnek tettük ki. A hőkezelés során 400 °C-on, 30 percig tartottuk a mintát. A minta hőkezelt és az azt megelőző állapotáról készített diffrakciós spektrumokat az 6. ábrán mutatom be. Az ábra a 311 és 222 reflexiókat szemlélteti, ahol a drasztikus vonal szélesedés illetve a hőkezelés hatására bekövetkező vonal-keskenyedés nyilvánvaló.



6. ábra

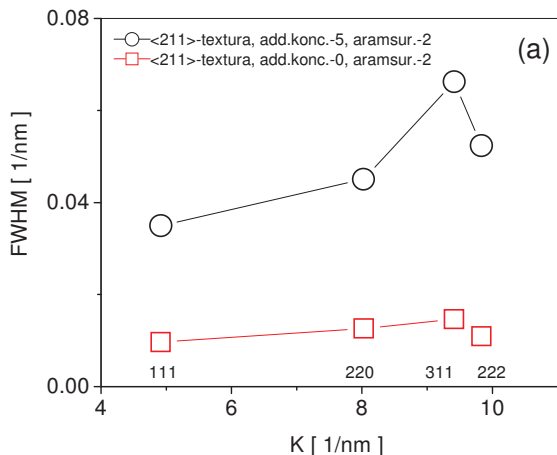
10 mMol/dm³ additív és 10 A/dm² áramerősség mellett növesztett minta 311 és 222 diffrakciós csúcsai a kiindulási (fekete), illetve a hőkezelt (piros) állapotban. A kiindulási állapotot leíró diffrakciós spektrumon jól kivehetők a Cu hordozó megfelelő elhajlási maximumai is. A két diffrakciós spektrumon detektált 311 és 222 reflexiók relatív intenzitásának megmaradása arra utal, miszerint az azonos laborrendszerbeli beállítás mellett kapott spektrumok, azonos, vagy közel azonos textúrákomponenssel rendelkeznek. Így állíthatjuk, hogy a kiindulási (111) textúra a hőkezelés hatására nem szűnt meg.

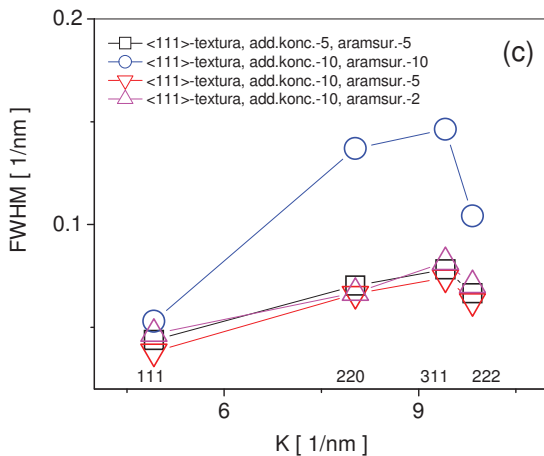
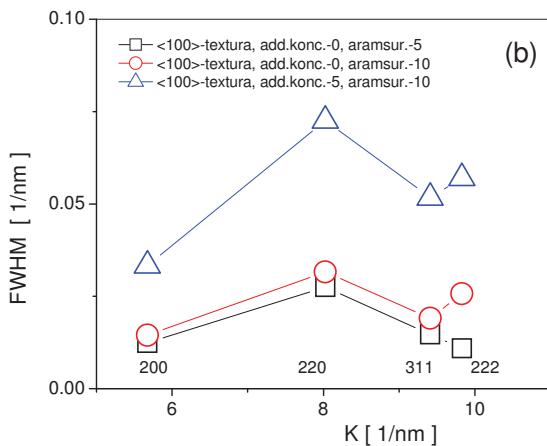
A 6. ábrán bemutatott diffrakciós spektrumok drasztikus mikroszrkezeti változásra utalnak. Ebből kifolyólag a 2.2.2. fejezetben részletezett (eCMWP) módszer segítségével kvantitatívan is kiértékeltem a hőkezelt állapotot hordozó profilok sajátosságait. A fizikai paraméterek

közül a diszlokáció sűrűsége $0.16 (\pm 0.05) \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ adódott. Ugyanez az érték a kiindulási állapotban $\rho = 23 (\pm 2) \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ volt, azaz több mint két nagyságrenddel kisebb mértékű rácshiba sűrűség alakult ki. A diffrakciós profilok kvalitatív jellemzésére használt Williamson-Hall ábrázolás viszont hasonló módon jellemzi a két állapot feszültség-anizotrópiáját. A kiindulási állapotot jellemző kvalitatív ábrázolást a 7c. ábrán mutatom be. Ezzel a kvalitatív képpel erős korrelációban áll, hogy mindkét állapot diszlokáció-szerkezetét jellemző Burgers vektor populáció teljesen azonosnak adódott, azaz sem a textúra, sem a diszlokáció struktúra nem változott a hőkezelés hatására. Ezzel részletesebben a következő fejezetben foglalkozom.

3.1.6.2. Burgers vektor analízis

A diffrakciós profilok kvalitatív vizsgálatára a Williamson-Hall (WH) ábrázolás mutatkozik a legcélravezetőbbnek, ahol a különböző elhajlási maximumok félérték-szélességeit, $FWHM = (2 \cos \theta / \lambda) \Delta \theta$, $K (1/\text{nm})$ függvényében ábrázoljuk. A 7. ábrán ábrázolt profil-szélességek textúrákomponensekként vannak szekcionálva.





7. ábra

Kvalitatív Williamson-Hall ábrák (a) $\langle 211 \rangle$, (b) $\langle 100 \rangle$ és (c) $\langle 111 \rangle$ texturával rendelkező minták esetén. Az alkalmazott additív koncentráció (mMol/dm^3) és áramerősség (A/dm^2) megadásával azonosíthatók a vizsgált minták.

A deformációs anizotrópia [Ungár, 2008] jegyei jól megfigyelhetők az egyes WH ábrákon. A ábrák más és más kvalitatív tulajdonságról tanúskodnak, ha a különböző rost-textúrájú mintákat vizsgáljuk. A $\langle 211 \rangle$ textúra-komponenssel rendelkező minták, 7a. ábra, olyan feszültség anizotrópiát képviselnek, melyet akkor tapasztalunk, ha a vonalhiba populációban előforduló diszlokáció sokaság, egyenlő valószínűséggel tartalmazza az adott kristályrendszerre jellemző összes diszlokációt. Ezekben az esetekben, azt tapasztalom, hogy a 311 reflexió FWHM értékei jóval meghaladják akár a 220, akár a 222 reflexiókhoz tartozó félérték-szélességeket. A 4.2. fejezetben leírt Burgers vektor analízis során végeredményként kapott diszlokációkat egyenlő előfordulási valószínűséggel kaptam meg a. Ebből az következik, hogy a vonalprofil, deformációs tér által közvetített szélesedésének leírásakor, azaz eCMWP módszer alkalmazásakor, a (8) egyenletben definiált átlagos kontraszt faktor használata is megengedhető. Ennek eredményeként, mérési hibán belül, azonos diszlokáció sűrűség adódott, mintegy igazolva az individuális kontraszt faktorok által kapott eredményeket illetve az abból levonható következtetéseket.

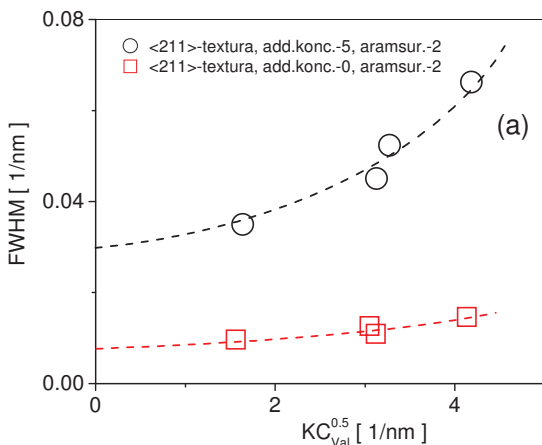
Az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúra-komponenssel rendelkező minták esetén viszont a vizsgált WH ábrázolás, 7b. és 7c. ábrák, lényegesen különböző, kvalitatív feszültség anizotrópiáról tanúskodnak a $\langle 211 \rangle$ textúra-komponenssel rendelkező mintákhoz képest. A 7b. ábrán jól látható, hogy a 220 reflexióhoz tartozó félérték-szélességek meghaladják a 311 reflexióhoz tartozó FWHM-et. A 7c. ábrán pedig arról szerzünk tudomást, miszerint a 220 reflexióhoz tartozó félérték-szélességek közel egyenlőek a 311 reflexióhoz tartozó FWHM-kel, míg a 222 reflexióhoz tartozó félérték-szélességeik nagymértékben eltérnek a 220 reflexióhoz tartozóktól. Ez a kvalitatív kép éppen arról árulkodik, miszerint a vizsgált anyag mikroszerkezetét csak bizonyos diszlokációk jellemezhetik. Így ezekhez a mintákhoz tartozó diffrakciós spektrumok nem értékelhetők ki az átlagos kontraszt faktorok használatával. Az átlagolás nem végezhető el sem a különböző diszlokációkra vonatkozóan, sem - a textúra-komponens létezése miatt - az összes *hkl* al-reflexióra.

Rost-textúrával rendelkező vékonyrétegek esetén felmerül a méret-anizotrópia jelenségének lehetősége is. Ennek vizsgálatára azért van szükség, mert ebből következően a profilok kiszélesedései szignifikáns anizotrópiát mutathatnak. Így a kapott WH ábrák jellegét pusztán a diszlokáció okozta rendhagyó vonalszélesedéssel nem lehetne egyértelműen magyarázni.

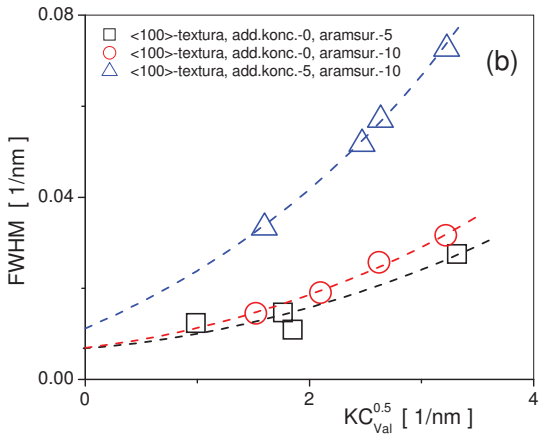
Figyelembe véve a 2. táblázatban megadott α elfordulási szögeket, könnyen belátható, hogy az anizotróp vonalszélesedés nem tulajdonítható a véges méret anizotrópiájának. Vegyük például az $\langle 100 \rangle$ textúrával rendelkező mintákat, ahol a 222 reflexió esetén $\alpha=7^\circ$

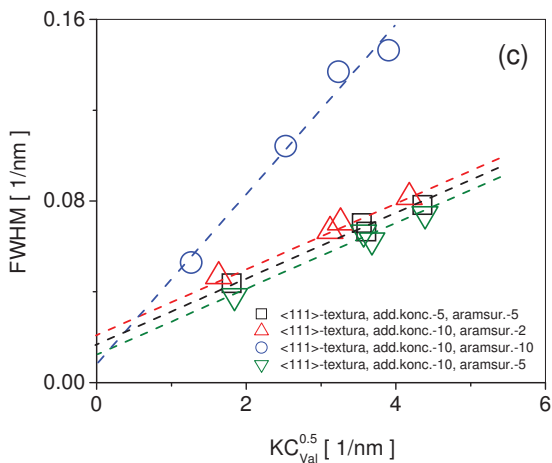
illetve $\theta=61.57^\circ$ értékeket találunk. Ilyen feltételek mellett, ha a 7b. ábrán tapasztalható *hkl*-függő anizotrópiát a koherensen szóró tartomány anizotrópiájának tulajdonítanánk, azaz a vékonyréteg növesztésének irányában elnyúlt szubszemcséket feltételeznénk, akkor éppen az $\alpha=7^\circ$ miatt, ebből az irányból látnánk a szemcse legkisebb méretét. Tehát a 222 reflexió kellene, hogy a legnagyobb vonal-szélesedést hordozza. A 7b. ábrán éppen ennek az ellenkezőjét tapasztaljuk, így arra a következtetésre jutottam, miszerint a WH ábrákon tapasztalható anizotróp vonalszélesedés nem magyarázható, és egyben nem tulajdonítható a koherensen szóró tartományok méret anizotrópiájának. Ez a megállapítás nemcsak az $\langle 100 \rangle$ textúrájú mintákra igaz, hanem az $\langle 111 \rangle$ textúrával rendelkező struktúrákkal kapcsolatosan is hasonló érvelés tehető.

A deformációs-anizotrópia jelenségének kezelésére a 2.2.1. fejezetben említett *módosított* WH ábrázolás használatával járhatuk a végére. Itt ugyanis K reciprok tér változó helyett a $K\sqrt{C_{valódi}(hkl)}$ függvényében ábrázoljuk a félérték-szélességeket [Ungár et al., 1999b], ahol $C_{valódi}(hkl)$ értékeit a (37) egyenletből nyerjük. Mivel a $\langle 211 \rangle$ textúrájú mintáknál átlagos kontraszt faktorok használata indokolt, a (8) egyenletben található $q=1.8$ érték esetén kaptuk a legjobb módosított ábrázolást. Ez az érték összhangban áll a numerikus, teljes profil-illesztés által kapott eredménnyel, ami éppen a diszlokáció jellegének, egyenlő valószínűséggel tapasztalható él- illetve csavar voltáról tanúskodik. A $\langle 211 \rangle$ textúrájú minták *módosított* WH ábrázolásait a 8a. ábrán mutatom be.



Hasonló *módosított* WH ábrázolások az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúrájú mintáknál is készíthető, ezeket a 8b. és 8c. ábrákon illusztrálom, ahol viszont a megfelelő $C_{valódi}(hkl)$ értékek éppen a megfelelő diszlokáció-szerkezetet képviselő, számolt skálamértékek. Az individuális kontraszt faktorok számolásánál figyelembe vett diszlokációkat a 4a. és 4b táblázatokban tüntettem fel.





8.ábra

Módosított Williamson-Hall ábrázolások a különböző textúrával rendelkező minták diszlokáció szerkezetének analíziséhez (a) <211> textúra, (b) <100> textúra és (c) <111> textúra esetén. A 8a. ábrán használt $C_{Val}^{0.5}$ értékei mind a (8) egyenlet, mind a (37) egyenlet alapján megkaphatóak.

A módosított Williamson-Hall ábrázolások valójában a számolt individuális kontraszt faktorok helyességét hivatottak ellenőrizni. Ha az ábrákon lineáris vagy kvadrátikus, általánosságban, sima görbe illeszthető a félérték-szélességekre, a diszlokációk választott részhalmaza jónak ítéhető.

Az <100> és <111> textúrájú minták diszlokáció-szerkezet meghatározására irányuló analízisének eredményeit tartalmazza a 4.táblázat. n , b és l a csúszási síkot, a megfelelő Burgers vektort illetve a diszlokáció vonal vektorát jelentik. A táblázatban szereplő R index azon diszlokáció részhalmazt kívánja képviselni, ahol a halmazban jelen levő diszlokációk a textúra komponens irányával megegyező tengelyű forgási szimmetriára nézve ekvivalensek. A táblázatból kiolvasható, hogy a megoldásként kapott diszlokációk vagy teljes egészében vagy nagy többségben olyan vonalhibaként jelentkeznek, amelyek Burgers vektora merőleges a fő-textúra komponens irányára. A <211> textúra komponens esetén nem tapasztaltam ilyen

mértékű kitüntetettségét, azokban a mintákban véletlenszerűen rendeződnek a kristályrendszert jellemző összes diszlokáció.

(a) $\langle 100 \rangle$ textúrájú minták

Diszlokáció				Relatív hányad [%]		
	n	b	l	0 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²	0 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	5 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²
				b_R	1 1 -1 _R	0 1 1 _R
	-	0 1 1	-	40 (±10)	100 (±20)	30 (±10)
	-	0 1 -1	-	-	-	25 (±10)

(b) $\langle 111 \rangle$ textúrájú minták

Diszlokáció				Relatív hányad [%]			
	n	b	l	5 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	10 mMol/dm ³ , 5 A/dm ²	10 mMol/dm ³ , 2 A/dm ²	10 mMol/dm ³ , 10 A/dm ²
				b_R	1 1 -1 _R	0 1 1 _R	2 -1 1 _R
	1 1 1	0 1 -1	-2 1 1	20 (±10)	20 (±10)	20 (±10)	33 (±10)
	1 1 1	1 0 -1	-1 2 -1	20 (±10)	20 (±10)	20 (±10)	33 (±10)
	1 1 1	1 -1 0	1 1 -2	20 (±10)	20 (±10)	20 (±10)	33 (±10)

4. táblázat

Diszlokáció szerkezet meghatározása az (a) $\langle 100 \rangle$ és (b) $\langle 111 \rangle$ textúrájú minták esetén. n , b és l a csúszási síkot, a megfelelő Burgers vektort illetve a diszlokáció vonal vektorát jelentik. A táblázatban szereplő R index azon diszlokáció részalmazt kívánja képviselni, ahol a halmazban jelen levő diszlokációk a textúra komponens irányával megegyező tengelyű forgási szimmetriára nézve ekvivalenseknek tekinthetők. Az adott textúra-komponensekre így a következő n - b - l értékek adódtak:

$\langle 100 \rangle$ textúra-komponens esetén: $\langle 11-1 \rangle \langle 011 \rangle \langle 2-11 \rangle$
 $\langle 1-11 \rangle \langle 011 \rangle \langle -2-11 \rangle$
 $\langle 1-1-1 \rangle \langle 01-1 \rangle \langle 211 \rangle$.

$\langle 111 \rangle$ textúra-komponens esetén: $\langle 11-1 \rangle \langle 011 \rangle \langle 2-11 \rangle$
 $\langle 1-11 \rangle \langle 011 \rangle \langle -2-11 \rangle$
 $\langle 11-1 \rangle \langle 101 \rangle \langle -1-2-1 \rangle$
 $\langle 1-1-1 \rangle \langle 101 \rangle \langle -1-21 \rangle$
 $\langle 1-1-1 \rangle \langle 110 \rangle \langle 1-12 \rangle$
 $\langle 1-11 \rangle \langle 110 \rangle \langle -112 \rangle$.

(Megjegyzés: Az adott halmazban jelenlevő diszlokációk kontraszt faktorai mind megegyeznek).

Vékonyrétegek növesztésekor gyakran találkozunk azzal jelenséggel, ahol a vékonyréteg és a szubsztrátum között kialakuló illeszkedési hiba rácsorzulást okoz. Ennek mértékének csökkentésére éppen a diszlokációk jelenléte kíván megoldást adni. Ezek a diszlokációk nagyrészt a két fázis között elhelyezkedő felület normálisára merőleges Burgers vektorral rendelkeznek [Demkowicz et al., 2008]. Ezt a jelenséget a multirétegek esetén is megfigyelhetjük, ahol a két fázis rétegei között kialakuló határfelület mikroszerkezetét hasonló jelenség jellemzi [Akasheh et al., 2007, Levay et al., 1999].

Ebben a fejezetben vizsgált, különböző textúrával rendelkező minták mikroszerkezeténél, az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúra esetén, hasonló képpel találkozunk. Ebből arra következtethetünk, hogy az elektrolitikus eljárásnál, a növekvő szemcsék mikroszerkezeti evolúciója, a *szemcsébe növekvő* diszlokációkkal együtt alakították ki a végső mikroszerkezetet. Ezek a diszlokációk próbálják csökkenteni a szubsztrátum és az első atomi rétegek között kialakuló *misfit*-et, illetve a textúra-növesztés későbbi fázisaiban, az egyes atomi rétegek között kialakuló rácsközi eltérést. Mivel ez a jelenség a $\langle 211 \rangle$ textúra komponensnél nem volt megfigyelhető, ezért az ott kialakult mikroszerkezetből arra következtethetünk, miszerint *fcc* szerkezetű kristály esetén a $\{211\}$ típusú atomi rétegekből növesztett krisztallitok nem képesek egy u.n. 2D mikroszerkezet létrehozására. A $\langle 211 \rangle$ textúra esetén 3D szerkezetű Burger vektor hálózatra van szükség, hogy az adott textúra-komponens létrejöhessen a növesztés során. Kijelenthetjük tehát, hogy a különböző textúrájú minták növesztése eltérő növekedési jelleggel társul.

3.1.6.3. Koherensen szóró tartományok mérete és az ikerhatár sűrűség

A koherensen szóró tartományok átlagos méretére vonatkozó megállapításaim csak a főtextúra komponens kristallitjaira vonatkoznak. Az idetartozó értékeket az 5.táblázatban adom meg [S3].

Minta	m [nm]	σ	$\langle x \rangle_{\text{area}}$ [nm]	β [%]	d_{iker} [nm]
M/0/2/<211>	70 (± 10)	0.3 (± 0.05)	90 (± 10)	0.0 (± 0.02)	>1 μm
M/5/2/<211>	30 (± 5)	0.1 (± 0.02)	30 (± 5)	0.0 (± 0.02)	>1 μm
M/0/10/<100>	45 (± 5)	0.71 (± 0.1)	160 (± 25)	0.0 (± 0.02)	>1 μm
M/0/5/<100>	55 (± 5)	0.3 (± 0.05)	70 (± 10)	0.0 (± 0.02)	>1 μm
M/5/10/<100>	55 (± 5)	0.15 (± 0.02)	60 (± 8)	0.0 (± 0.02)	>1 μm
M/5/5/<111> +<100>	6 (± 1)	0.71 (± 0.1)	22 (± 5)	0.54 (± 0.05)	37 (± 4)
M/10/5/<111> +<511>	10 (± 1)	0.71 (± 0.1)	35 (± 5)	3.1 (± 0.3)	6.5 (± 0.6)
M/10/2/<111>	29 (± 4)	0.32 (± 0.05)	37 (± 7)	3.8 (± 0.3)	5.3 (± 0.5)
M/10/10/<111> +<511>	6 (± 1)	0.71 (± 0.1)	22 (± 5)	0.0 (± 0.02)	>1 μm

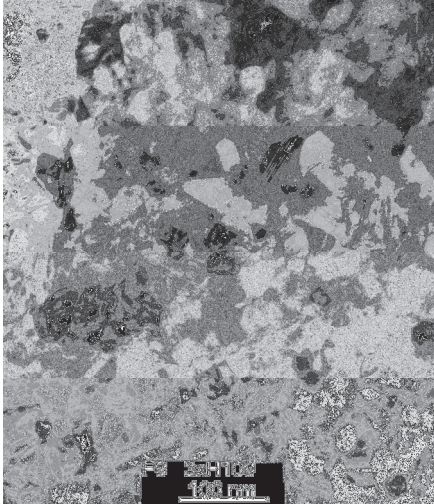
5.táblázat

A táblázatban m a medián, σ pedig a lognormális méret-eloszlás függvény varianciája. Az (5) egyenlet alapján ezekből képezhető átlagos méret az $\langle x \rangle_{\text{area}}$. β mennyiség jelöli a különböző textúrájú mintáknál tapasztalható ikerhatár sűrűséget, illetve d_{iker} számszerűsíti a sűrűségből kapható átlagos ikerhatár távolságot az <111> kristálytani irányban. A minták jelölése a 3.táblázatban megadottak szerint történt.

A 5.táblázatban jól látszi, hogy az azonos textúra komponenssel rendelkező mintáknál a kisebb koherensen szóró tartomány, $\langle x \rangle_{\text{area}}$ értékekhez éppen 3.táblázatban található magasabb diszlokáció sűrűség értékek tartoznak. A legkisebb domén méretet az <111> textúrával rendelkező mintáknál tapasztaltam, ahol ez az érték 20 és 40 nm között mozgott.

A teljes konvolúciós profil-illesztés (eCMWP) lehetőséget ad az ikerhatárok által okozott vonalprofil módosulás figyelembevételére is. Ebből következően, az 5. táblázatban az ikerhatárok sűrűségére kapott eredményeimet is feltüntettem [Csiszár et al., 2012a]. A táblázatban megadott átlagos ikerhatár távolságot, d_{iker} az alábbiak szerint határoztam meg:

$d_{iker}=(100/\beta) \times d_{111}$, ahol d_{111} jelenti az 111 kristálysíkok közötti távolságot, ami $d_{111}=0.204$ nm. Ikerhatárokról a vizsgált minták tekintetében csak az $\langle 111 \rangle$ fő-textúrával rendelkező minták esetén beszélhetünk, kivéve azt az $\langle 111 \rangle$ textúrájú mintát, ahol a legmagasabb additív koncentrációt illetve alkalmazott áramerősséget használtuk. A nullától különböző mértékű ikerhatár-sűrűségek nagy mértékre utalnak. Az $M/5/5/\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$, $M/10/5/\langle 111 \rangle + \langle 511 \rangle$ és $M/10/2/\langle 111 \rangle$ minták esetén sorrendben növekvő ikerhatár sűrűséget kaptam, míg éppen ezeknél a mintáknál tapasztaltam növekvő diszlokáció sűrűségeket, ρ_{Ma} , is. Mind a $M/10/5/\langle 111 \rangle + \langle 511 \rangle$ minta, mind a $M/10/2/\langle 111 \rangle$ minta esetén a d_{iker} értékek és a ρ_{Ma} -ból kapható átlagos diszlokáció távolságok arra utalnak, hogy a minta textúra-növekedése során átlagosan minden *harmadik* kialakuló ikerhatár esetén egy geometriailag szükséges diszlokáció biztosítja a textúra irányának megmaradását. A többi minta esetén ikerhatárok létezéséről a vonalprofil analízis nem adott számot, bár hasonló mintákon készült hátraszórt-elektron diffrakciós mérések kimutatták az ikerhatárok létezését [Alimadadi et al., 2011]. Az ellentmondást a következőképpen oldottam fel. Mivel az ikerhatárok jelensége bizonyos feltételek mellett biztosan analizálható a megfelelő profil-függvények segítségével [Balogh et al., 2006, 2009] így a mikroszkópos felvételeken tapasztalható ikerhatároknak, vagy (a) olyan távolságáival állunk szemben, amely a röntgen diffrakciós mérések maximálisan detektálható tartományán kívül esik, $d_{iker} \geq 1 \mu\text{m}$ vagy (b) azon tartományok relatív térfogati hányada ahol az adott orientációjú ikerhatárok távolsága a detektálható tartományon belül található, kicsi. Így az (a) esetben az esetlegesen detektálható ikerhatárok okozta vonalszélesedés túl kicsi, míg a (b) esetben, pl.: $\langle 511 \rangle$ textúra esetén, az ikresedett tartomány mértéke túl kicsi. A koherensen szóró tartományok méretét igazolja a mintákon elvégzett TEM felvételek is, melyre egy tipikus példát a 9.ábrán mutatok be.



9.ábra

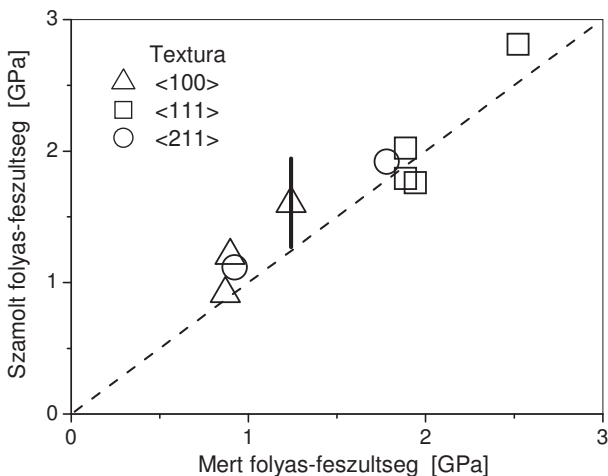
Az $M/10/10/\langle 111 \rangle + \langle 511 \rangle$ -jelű mintán készült TEM felvételen a koherensen szóró tartományokra 20 és 40 nm közötti értéket tapasztalunk, illetve helyenként az ikresedő kristályok jelenléte is megfigyelhető.

3.1.6.4. Mikroszerkezeti paraméterek és a vékonyrétegek mechanikai tulajdonságai

A mikroszerkezeti paraméterek, mint a diszlokáció sűrűség illetve szubszemcse-méret hatással vannak az anyagot jellemző makroszkópikus jellemzőre. Annak megállapítására, hogy a kapott diszlokáció sűrűségek és domén méretek valóban összhangban állnak-e az anyag makroszkópikus tulajdonságaival Vickers-keménységméréseket végeztem minden egyes textúrával jellemezhető vékonyréteg esetén, ahol a HV értékeket egy Zwick/Roell-ZH μ -Indentec mikrokeménység mérővel végeztem. A feszültséget a mért HV értékekből a következőképpen határoztam meg: $\sigma = HV/3$. A leírás során természetes posztulátum, miszerint a mikrokeménységet a diszlokációknak illetve a szubszemcsék jelenlétének tulajdonítom. Ebből következően alkalmazom a jól ismert Taylor és Hall-Petch összefüggést az alábbiak szerint [Taylor, 1934; Petch, 1953]:

$$\sigma = \sigma_0 + \alpha \mu M_T b \sqrt{\rho} + \frac{K}{\sqrt{d}}, \quad (44)$$

ahol σ , σ_0 , α , μ , b , M_T és K a folyás-feszültség, a rugalmas tartomány határát jellemző feszültségérték, egy 0 és 1 közé eső konstans, a nyírási modulus, a Burgers vektor abszolút értéke, a megfelelő Taylor faktor és végül a megfelelő Hall-Petch konstans. A Taylor konstans értéke textúra-függő paraméter. Így a különböző textúrákra nézve, a Taylor összefüggésen keresztül, más és más mértékben játszik szerepet a diszlokációk okozta keményedés a folyás-feszültség kialakításában. Az $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ és $\langle 211 \rangle$ textúrák esetén a megfelelő értékek a következők: $M_{100}=2.4$, $M_{111}=3.2$ és $M_{211}=3$ [Clausen et al., 1998], ahol a megfelelő textúra élességének függvényében kaphatóak meg a fent megadott értékek. A (44) egyenlet alkalmazhatóságának érdekében a K , Hall-Petch konstansot irodalmi értéként tüntettem fel, ami elektrokémiailag előállított, nanokristályos Ni anyagra: $K_{Ni} = 0.18 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ [Hansen, 2004]. Az egyenletben szereplő d mértékét a vonalprofil analízis során nyert $\langle x \rangle_{\text{area}}$ átlagos mérettel közelíttem. Az irodalmi $\sigma_0(\text{Ni})=220 \text{ MPa}$, $\mu_{\text{Ni}}=76 \text{ GPa}$, $b_{\text{Ni}}=0.2492 \text{ nm}$, $\alpha=0.15 (\pm 0.02)$ értékekkel számolt feszültség értékeket illetve a mikrokeménység mérés során nyert eredményeket a 10.ábrán mutatom be. A ábra jól szemlélteti a mikroszerkezeti paraméterek és a makroszkópikus jelleg erős korrelációját.



10.ábra

Számolt és mért folyás-feszültségek a különböző textúra komponensek esetén. Taylor illetve Hall-Petch mechanizmusok segítségével együttesen mutatják be a mikroszerkezeti paraméterek (diszlokáció sűrűség, szemcseméret) okozta folyás-feszültségek alakulását. Az ábrán feltüntetett vertikális vonal, a mérési hibát kívánja illusztrálni.

Általános megjegyzésként említem, hogy a fent bemutatott számítások, kiértékelések annál pontosabban adják vissza a valósághoz közeli értékeket, minél élesebb az adott textúra komponens jelenléte. A textúra élességének fokozatos elmaradása éppen azt jelenti, hogy a választott textúra komponenshez tartozó kristallitok száma egyre kevesebb, így egy adott orientációs beállítással mért reflexió esetén, az adott textúra komponens, csekélyebb mértékben járul hozzá a diffrakciós profil kialakításához. Ebből következően viszont az anyagot jellemző fizikai paramétereikről egyre kevesebb, és kevesebb mondható el az itt bemutatott módszer alkalmazásával.

3.1.7. Konklúzió

Ebben a fejezetben Ni fázisú, nanokristályos vékonyrétegek karakterizációját végeztem el diszlokáció sűrűség, Burgers vektor analízis, koherensen szóró tartomány és ikerhatárok sűrűségének tekintetében. A karakterizációt röntgen vonalprofil analízis módszerével végeztem ahol az egyes mikroszerkezeti jelenségek profil függvényeit együttesen illeszttem a mért diffrakciós profilokra. Különböző koncentrációjú additív hozzáadása illetve alkalmazott áramerősség segítségével készültek el a különböző fő-textúra komponenssel rendelkező struktúrák, nevezetesen: $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ és $\langle 211 \rangle$ fő-textúra komponensek. A kiértékelés a teljes konvolúciós profil illesztés módszerének (eCMWP) továbbfejlesztett változatával végeztem, ami lehetőséget adott, párhuzamosan a fő-textúrával, az anyagban található más textúra komponens krisztallitjainak a kiértékelésére is. Az egyesített Taylor és Hall-Petch összefüggések által a mikroszerkezeti paraméterek és makroszkópikus tulajdonságok között erős korrelációt tapasztaltam.

1) Az eCMWP módszer új opcióként több textúra komponenshez tartozó krisztallitok mikroszerkezetének párhuzamos kiértékelhetőségét teszi lehetővé. Az adott textúrához tartozó különböző hkl indexek mért diffrakciós spektrumait, annak $I(2\theta)$ eloszlását $K=2\sin\theta$ reciprok tér változója szerint írjuk fel, majd a kapott spektrumokat összeillesztve illetve a megjelenő elhajlási maximumok textúra komponenshez való tartozásának megállapítása után, a különböző textúrákhoz tartozó krisztallitok mikroszerkezeti paramétereire párhuzamosan nyerhető eredmény. Így előfordul, hogy többször ugyanaz a hkl index is megjelenik a spektrumban, ezeket formálisan más fázisoknak tekintem. Adott textúra komponenshez tartozó különböző reflexiók spektrumait, a minta beállítását jellemző Euler tér különböző paraméterei jellemzik.

2) A diszlokáció sűrűség mértéke széles tartományban jellemzi a különböző textúrájú krisztallit sokaságokat. Ez az érték 0.5 és $23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ közötti sűrűséget jelent, mely függ a kialakult textúrától azaz, a különböző feltételektől a vékonyréteg növesztése során.

3) A mért profilok, diszlokációk okozta vonalprofil módosító hatásán keresztül, individuális kontraszt faktorok használatával végeztem el a mintákra vonatkozó Burgers vektor analízist. A mért illetve elméletileg meghatározott individuális kontraszt faktorok összehasonlításából nyertem a lehetséges diszlokációk közül azokat, melyek a leginkább igazodtak a mért jelleghez. Eredményként azt kaptam, miszerint az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúrájú mintákban nagymértékben a vékonyréteg felületével párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk helyezkednek el, míg a $\langle 211 \rangle$ textúra komponens esetén a Burgers vektor populáció véletlenszerűnek tekinthető.

4) A koherensen szóró tartomány mérete minden esetben nano-skálájú maradt. Ez az érték 20 és 160 nm közöttinek adódott, attól függően, hogy milyen textúra létrehozását kívántuk elérni a vékonyréteg növesztésekor. A kapott méretek jó egyezést mutatnak elektromikroszkópos felvételeken látható szemcsék méretével.

5) Az egyesített Taylor és Hall-Petch összefüggések segítségével igazolni tudtam, hogy a mintákon mért Vickers keménység-mérési adatok erős korrelációban vannak a röntgen diffrakciós mérések és az azt követő profil analízisből származó mikroszerkezeti paraméterekkel.

6) A minták mikroszerkezeti paraméterei illetve az előállítási paraméterek között korreláció mutatkozik. A növesztési paraméterek függvényében a diszlokáció sűrűség mértékére széles intervallumot tapasztaltam. Abban az esetben, ahol legmagasabb volt az additív koncentrációja illetve az alkalmazott egyenáram erőssége, a legmagasabb diszlokáció sűrűség alakult ki, s kapcsolódva az 5) ponthoz, a legmagasabb folyás-feszültség érték volt mérhető.

7) A legmagasabb diszlokáció sűrűséggel rendelkező vékonyrétegeket, $\rho=23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$, $400 \text{ }^\circ\text{C}$ -on, 30 percig, enyhe hőkezelésnek tettem ki. A hőkezelés hatására a mikroszerkezetet jellemző diszlokáció mértéke 2 nagyságrenddel csökkent le, ami éppen annak tanúbizonysága, miszerint a kiindulási állapotot valóban $\rho=23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ nagyságrendű hibasűrűség jellemzi.

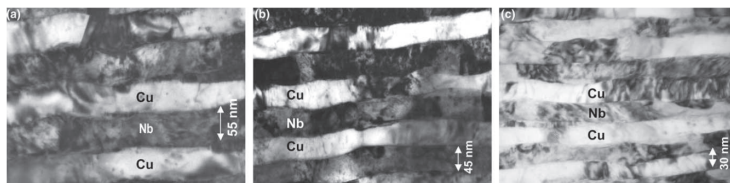
3.2. Éles textúrájú Cu-Nb multirétegek Burgers vektor analízise és diszlokáció szerkezetének karakterizációja

3.2.1. Irodalmi áttekintés

Az elmúlt évtizedek folyamán sikerült elérni, hogy a multirétegek rétegvastagsága a mesoskálájú tartományból nano-skálájú tartományba lépjen át, míg a vékonyrétegek rétegvastagsága megközelítette az 100-200 nm-es rétegvastagságot. Ilyen hosszúság-skálán felépített anyagainkat különböző fizikai próbáknak kitéve újabb és újabb, az ismert fizikai tulajdonságoktól eltérő illetve szignifikánsan különböző tulajdonságú anyagokra leltünk. A multirétegek területén a többfázisú, fémes struktúrák kapták a legnagyobb figyelmet, hiszen kiemelkedően nagymértékű alakítási keményedéssel rendelkeznek, illetve ionbesugárzás hatására rendkívül kis rácshiba-sűrűséget mutatnak az ismert tömbi anyagokkal ellentétben [Misra et al., 2010; Wang et al., 2011; Mastorakos et al., 2009; Abdolrahim et al., 2010; Overman et al., 2009; Anderson et al., 2010; Han et al., 2009; Li et al., 2010; Lewis et al., 2008; Zhu et al., 2010; Sun et al., 2010; Fang et al., 2007; Wang et al., 2006; Misra et al., 2004].

Mostanra körvonalazódott, miszerint a mikroszerkezet, több fázis jelenléte illetve a nanoskálájú karakterisztikus hossz elérésének következtében, nagymértékben képes a kialakított anyagok mechanikai tulajdonságaira hatást gyakorolni. A kialakult mikroszerkezetnek két alappillért ismerjük (a) azt a karakterisztikus hosszt, mely a plasztikus deformáció során megjelenő diszlokációk átlagos szabad úthosszára, illetve a diszlokációk között kialakuló átlagos távolságra utal, és (b) a szemcseméret, a szub-szemcse határok távolsága, az esetleges diszlokáció csúszási akadályok távolsága és kiterjedése által meghatározott karakterisztikus hosszt. Ennek a két jelenségnek az együttes hatása olyan mechanizmusokat generál, melyek a konvencionális szerkezeti anyagoknál tapasztalható mechanizmusoktól szignifikánsan eltérőek [Arzt, 1998; Gleiter, 2000]. A 11. ábrán bemutatott három, világos látóterű TEM felvétel éppen erre az eltérő mechanizmusra utal, ahol a rétegvastagságot (a) 27% (b) 40% (c) 60%-os mértékben redukálták hideghengerlés segítségével. A kezdeti 75nm/75nm rétegvastagság (a) 55nm/55nm (b) 45nm/45nm és (c) 30nm/30nm-es Cu/Nb végső vastagságot eredményezett. A szignifikánsan eltérő

mechanizmus a rétegek *uniform* redukciójában illetve a diszlokációk cella szerkezetének hiányában rejlik [Misra et al., 2004].



11.ábra

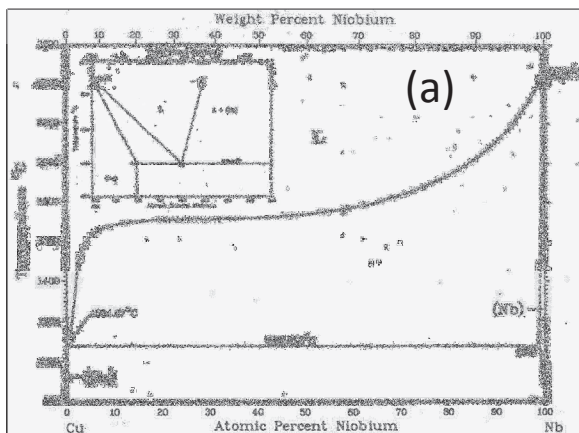
Világos látóterű TEM felvételek egy 75nm/75nm rétegvastagságú Cu-Nb multiréteg különböző mértékű hideghengerléséről. A hideghengerlés mértéke (a) 27% (b) 40% és (c) 60% redukciót eredményezett az egyes rétegek vastagságában. A rétegek *uniform* redukciója, illetve a diszlokációk cella-szerkezetének hiánya a szokásostól eltérő mechanizmusra utal. A hengerlés iránya horizontális helyzetű.

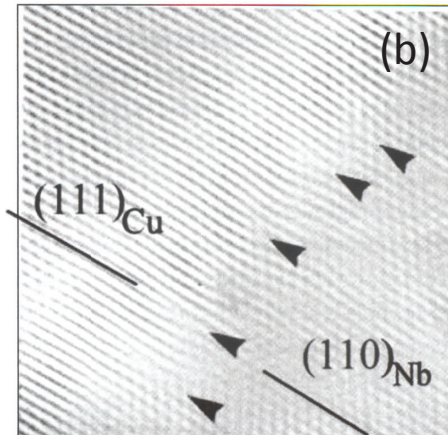
A hagyományos plasztikus deformáció tárgyalásakor a szemcséken belül nukleáldott és mozgó diszlokációkról szólnunk. Mikor ezek a szemcse határához érnek, feltorlódnak és egyre nagyobb feszültséget jelentenek a szomszédos szemcse szerkezetére. Először rugalmas deformáció formájában gyakorolnak hatást a szemcse mikroszerkezetére, majd a kritikus csúsztató feszültség elérésekor többszörös csúszást aktiválnak. Ebben a modellben nem engedjük meg a diszlokációk szemcsehatáron át történő mozgását. Pár nanométeres méretskálán a diszlokációk szemcsehatárokat keresztező mozgását tapasztaljuk, sőt egyes nanokristályos anyagoknál, a szemcsehatárokon felhalmozódott nagyszámú atom diffúziója illetve a határok csúszásának hatására, az anyag lágyulására leszünk figyelmesek (inverz Hall-Petch összefüggés) [Chokshi et al., 1989]. Több fázisú, lamelláris nanokristályos fémeknél, a két különböző fázist határoló határfelület jelenléte újabb mikroszerkezeti sajátosságokkal ruházta fel az illető anyagokat. Az határfelület mikroszerkezete nagymértékben befolyásolja a plasztikus deformáció során tapasztalt mechanizmusokat [Raabe et al., 2010]. Attól függően, hogy milyen atomok alkotják a vizsgált struktúrát, illetve, hogy milyen kristallografikus orientációval, textúra komponenssel rendelkezik az anyag, a mikroszerkezeten keresztül, az alakítási keményedés a szokásostól eltérő mechanizmust tükröz. Az határfelületek vagy

engedik az arra mozgó diszlokációk áthaladását vagy nyelőként működve megszüntetik a létezésüket, ezzel befolyásolva a plasztikus deformációnál tapasztalt hagyományos leírást [Nyilas et al., 2006].

Az elmúlt évtizedekben ezek az határfelületek egyre nagyobb mértékben bizonyultak a jövőt meghatározó szerkezeti anyagok deformációs és más fizikai tulajdonságot befolyásoló tényezőjének, így ennek a fizikai jelenségnek illetve az általa meghatározott mikroszerkezetnek a pontos ismerete megalapozhatja a jövő szerkezeti anyagainak, a nanokompozitoknak a megalkotását [Raabe et al., 2010; Demkovicz et al., 2010].

A két fázis találkozásánál létrejött határfelület, adott fázispár és hőmérséklet függvényében, részben vagy gyakorlatilag teljes mértékben, a két fázis elkülönült voltáról tanúskodik. A Cu és Nb fázisok esetén, szobahőmérsékleten, éppen ezt a jelenséget tapasztaljuk, amelyet mind a 12a.ábrán bemutatott fázis diagram, mind a 12b.ábrán illusztrált nagy-felbontású elektromikroszkópos (HREM) felvétel [Raabe et al., 2010] is alátámaszt.





12.ábra

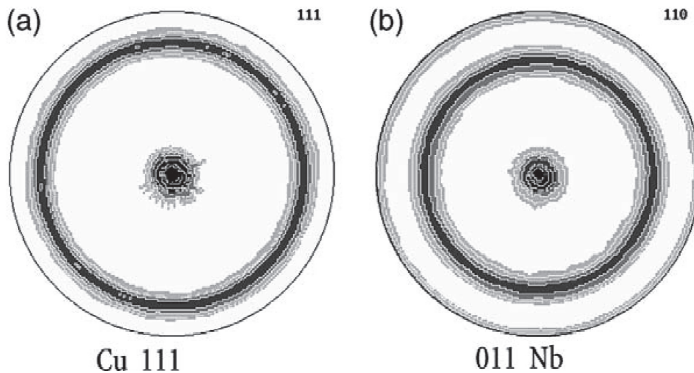
(a) Cu és Nb elemek fázisdiagramja a Nb koncentrációjának függvényében (atom%) és (b) nagyfelbontású elektromikroszkópos (HREM) felvétel Cu-Nb multiréteg határfelületéről. A felület szemi-koherens voltára következtethetünk, ahol a nyilak az *határfelület*-hez kötődő diszlokációkat mutatják. A fázisdiagram szerint 1100 °C alatt a két fázis elkülönült voltáról beszélhetünk.

Az elmúlt évtizedek során többen tettek kísérletet az ilyen jellegű határfelület mikroszerkezeti tulajdonságainak illetve az határfelület hatására kialakuló mikroszerkezet meghatározására, hiszen nagy valószínűséggel állítható, hogy nagy szerepe van a vizsgált anyagok fizikai tulajdonságainak kialakításában. TEM felvételek az határfelület és környezetük diszlokáció szerkezetének kvantitatív vizsgálatára nem adnak kielégítő választ, így pl.: egyre növekvő rétegvastagság függvényében sem tudjuk számszerűsíteni a diszlokáció sűrűség változást illetve az egyes diszlokáció populációk evolúcióját [Zhang et al., 2008]. Az RVPA módszer ezzel ellentétben olyan indirekt úton tudja górcső alá venni a mikroszerkezetet, amely ezekre a kérdésekre kielégítő választ adhat. Molekula-dinamikai szimulációk [Wang et al., 2008] eredményei például azt a képet tárják elénk, miszerint ezek az határfelületek nagymértékben vonzzák az határfelülethez közeli diszlokációkat, azaz a multiréteg struktúrákban az határfelületek tartalmazzák az összes diszlokációt. Az RVPA módszer a mikroszerkezeti paraméterek analizálásával ennek az elméleti eredménynek kísérleti igazolására is módot ad.

Az RVPA módszer segítségével ebben a fejezetben porlasztásos úton előállított Cu-Nb multirétegek teljes diszlokáció populációjának analízisét mutatom be mind a Cu, mind a Nb fázisra vonatkozóan (a) a rétegvastagság illetve (b) a teljes mintavastagság függvényében. Természetesen a diszlokáció szerkezet vizsgálat mellett a szubszemcse méret evolúciójával is foglalkozom.

3.2.2. Cu-Nb multirétegek előállítása

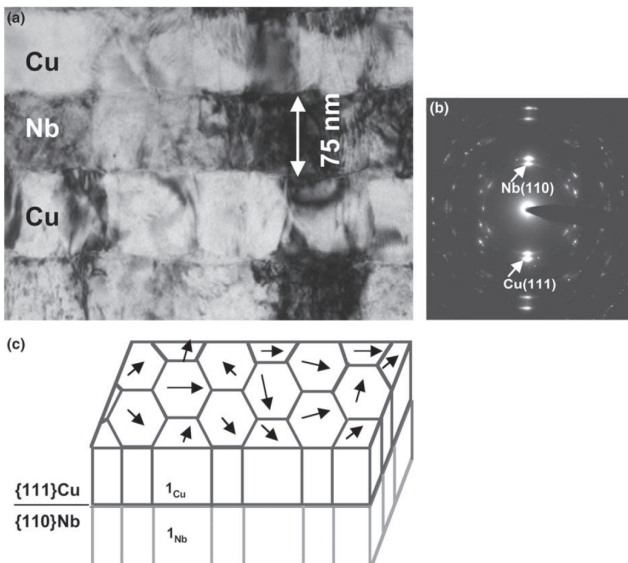
Az mikroszerkezeti paraméterek meghatározását a következő rétegvastagságokkal jellemezhető multirétegeken végeztem el: (a) 20 nm Cu- 20 nm Nb, (b) 50 nm Cu- 50 nm Nb és (c) 75 nm Cu- 75 nm Nb. A 20 nm Cu- 20 nm Nb rétegvastagságú multirétegek teljes mintavastagsága (a) 1 μm és (b) 7.8 μm volt. Az 50 nm Cu- 50 nm rétegvastagságú minták esetén a teljes mintavastagság (a) 1 μm és (b) 7.4 μm -nek adódott. Az utolsó, 75nm rétegvastagságú minta esetén csak egy 7.2 μm teljes mintavastagság volt elérhető. Minden vizsgált minta *DC-magnetron* porlasztás módszerével készült, szobahőmérsékleten. Az 1 μm teljes mintavastagság esetén *Si* egykristály hordozóra volt szükség, míg a vastagabb minták (> 7 μm) hordozó nélkül készültek. A porlasztás során kialakult szerkezet textúra jellegének vizsgálatára korábbi eredmények szolgálnak alapul, ahol mind a Cu, mind a Nb fázis textúra jellege meghatározásra került [Al-Fadhalah et al., 2005; Anderson et al., 2003]. A 13. ábrán egy tipikus pólus ábra [Anderson et al., 2003] illusztrálja a két fázisra vonatkozó kialakult rost-textúra irányát.



13.ábra

Cu és Nb fázisok röntgen diffrakciós mérései a textúra komponens meghatározására. Az ábrán jól kivethető a rost-textúra jelleg létezése.

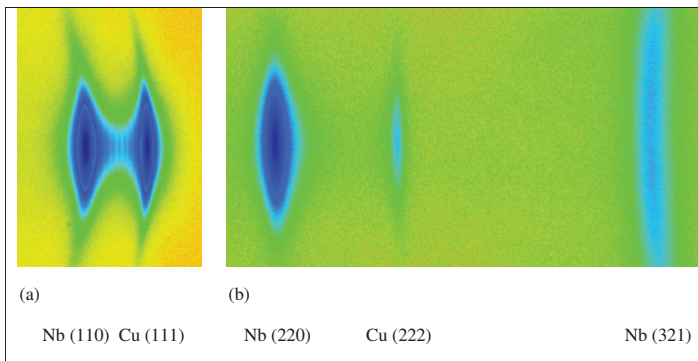
Mindkét fázist éles textúra jellemez, melyek a jól ismert Kurdjumov-Sachs orientációs szabály szerint illeszkednek egymáshoz [Kurdjumov et al., 1930], így a Cu esetén $\langle 111 \rangle$, míg Nb esetén $\langle 110 \rangle$ irányú textúra komponensről beszélhetünk. Ezek az irányok párhuzamosak a minta felületének normálisával. A minták oszlopos szerkezetben növekednek, az egyes oszlopok orientációja a növekedés irányában szigorúan követi az adott textúra irányát, ugyanakkor az oszlopok ezen irányok körül véletlenszerűen elfordulhatnak [Misra et al., 2004]. Ennek bemutatására a 14c. ábra sematikus ábrája szolgál [Misra et al., 2004].



14.ábra

75 nm Cu/75 nm Nb rétegvastagságú, *DC-magnetron* porlasztással készült multiréteg (a) világos-látóterű TEM felvétele, (b) röntgen diffraktogramja és (c) a kialakult textúra sematikus ábrája. A nyilak az $\{111\}\text{Cu}/\{110\}\text{Nb}$ síkon belüli Kurdjumov–Sachs irányok, $\langle 111 \rangle\text{Nb}/\langle 110 \rangle\text{Cu}$, elrendeződését jelzik az egyes szemcsékben.

Az éles textúra jelenléte röntgen diffrakciós méréseim során is detektálható volt. Ennek illusztrálására szolgálnak a 15. ábrán bemutatott 2D *imaging plate* felvételek, mely a 20 nm rétegvastagságú és 1 μm teljes mintavastagságú Cu-Nb multirétegről készült [Csizsár et al., 2011a]. A detektált elhajlási maximumok jellege konzisztensen jellemzik a Cu-Nb multirétegekre vonatkozó fent említett, korábbi ismereteinket.



15.ábra

2D *imaging plate* felvételek (a) Nb (110) és Cu (111) reflexiók, illetve (b) Nb (220) és (321) reflexiók esetén, ahol a diffrakcióban részt vevő kristallitok az $\{111\}\text{Cu}/\{110\}\text{Nb}$ textúra komponenshez tartoznak. A (b) jelű ábrán a Cu (222) reflexió is kivehető, mely annak következménye, hogy a Nb (220) és (321) reflexiók mérésénél alkalmazott, a minta goniométeren történő, beállítási paramétere közel esnek a kisebbségi kristallit sokaságot jellemző Cu (222) reflexió beállítási paraméter értékeihez. Az (a) ábrán látható szatellitok és a (b) ábrán látható Nb (220) és Nb (321) Debye-Scherrer gyűrű jelleg éppen az elvárt multiréteg struktúrát jelzik.

A Nb (220) és (321) reflexiók mérésénél tapasztalt Debye-Scherrer gyűrű-jelleg eltérése az $\{111\}\text{Cu}/\{110\}\text{Nb}$ textúra komponens irányára nézve hengersizmetrikus $\langle 111 \rangle \text{Nb} // \langle 110 \rangle \text{Cu}$ Kurdjumov–Sachs-féle, véletlenszerű irány-eloszlással magyarázható, míg az (a) ábrán detektált *szatellitok* a Cu és Nb rétegek szigorú ismétlődéséből következnek. A *szatellitok* jelenségét is magában foglaló intenzitás-eloszlást a [Schuller, 1980]:

$$I \propto \frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin\theta \sin 2\theta} \left\{ \left[\sum \exp \left[-W_{\text{Cu}} \left(\frac{\sin\theta}{\lambda_x} \right)^2 \right] f_{\text{Cu}}(\theta) \sigma_{\text{Cu}} \exp \left[i \frac{4\pi}{\lambda_x} x_j \sin\theta \right] + \sum \exp \left[-W_{\text{Nb}} \left(\frac{\sin\theta}{\lambda_x} \right)^2 \right] f_{\text{Nb}}(\theta) \sigma_{\text{Nb}} \exp \left[i \frac{4\pi}{\lambda_x} x_j \sin\theta \right] \right\}^2 \quad (45)$$

egyenlettel írhatjuk le. Az egyenlet „vegyes” tagja hordozza a szatellitiek intenzitás-eloszlásának leírását, mely éppen a *réteges* szerkezetet igazolja.

3.2.3. Röntgen diffrakciós mérések

A röntgen diffrakciós méréseket egy nagyfelbontású, két-kristályos röntgen diffraktométeren végeztem, ahol a primer nyaláb monokromatizálása Ge egykristály (220) síkjainak diffrakciós helyzetével érhető el. Ennek segítségével egy $0.1 \times 2 \text{ mm}^2$ keresztmetszetű Cu $K\alpha_1$ karakterisztikus sugárzás világította meg a mintát. A megvilágított felület nagysága más és más volt annak függvényében, hogy az adott textúra komponenshez tartozó elhajlási maximum mérésénél, milyen beállítási szög jellemezte a minta felületének normálisát. A minta felülete illetve a bejövő nyaláb között szigorúan meghatározott szögekben állhatott csak a minta ahhoz, hogy ugyanahhoz a textúra komponenshez tartozó kristallitok legyenek diffrakciós helyzetben, mikor a különböző reflexiók mérését végzem. Az adott fázisra és a reflexiók függvényében megadott szögeket, ω -t, a 6. táblázatban sorolom fel [Csiszár et al., 2011a].

"Tr" jelöléssel illetem azokat a méréseket, melyeket transzmissziós geometriában végeztem el és "S.B." jelöléssel azokat, ahol a beeső nyaláb súrló beeséssel érte a minta felületét. A mérések többnyire reflexiós geometriában történtek kivéve azokat, ahol csak a transzmissziós geometria volt kivitelezhető. A 6. táblázatban a jelöletlen szögek jelzik ezt a geometriát. Reflexiós geometriánál a beeső és a diffraktált nyaláb a minta vizsgált felületével megegyező, transzmissziós geometriában a diffraktált nyaláb a minta vizsgált felületének átellenes oldalán hagyja el a vizsgált térfogatot.

a)

Cu	111	200	220	311	222	400	331
ω	21.5	30 (Tr)	2 (S.B.)	15	47.5	3.5 (S.B.)	46

b)

Nb	110	200	211	220	310	222	321	400
ω	19.25	17.25 (Tr)	5	41.25*	20.95	18.6	41.6*	23.5

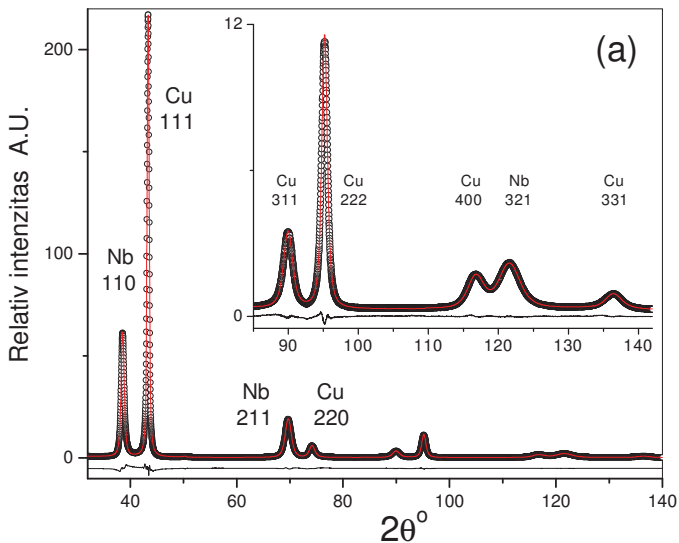
6.táblázat

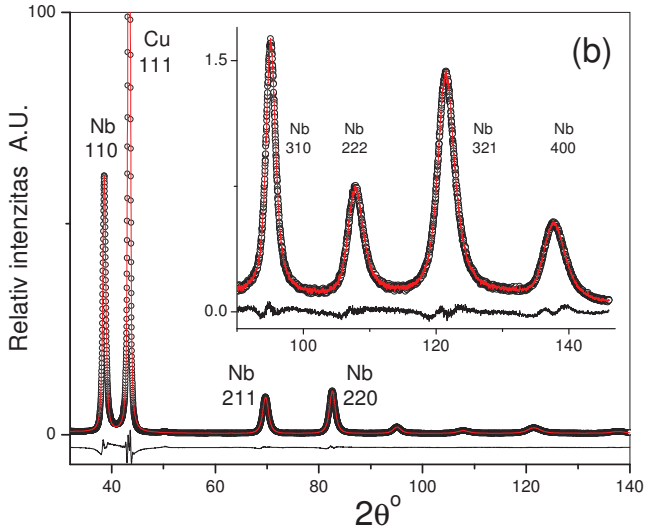
A bejövő nyaláb és a minta felülete közötti szögek, ω , Cu és Nb fázisokra. A szögek az elhajlási maximumok függvényében vannak megadva. "Tr" transzmissziós geometriát, "S.B." súrló beesést jelöl, míg a jelöletlen esetekben a mérési geometria reflexiók helyzetű volt. Ezekkel a szögekkel elérhető, hogy a diffraktált nyaláb minden reflexió esetén az adott textúra komponenshez tartozó kristallitokat, azok adott *hkl* síkjait jellemezze. Csillaggal jelöltem azokat a reflexiókat, ahol az ω szög beállítási hibájából (± 0.5) következően egyszerre voltak mérhetőek.

A diffraktált nyaláb detektálására 2D *imaging plate*-t szolgált, melyek 196 mm sugarú körív mentén voltak elhelyezve. A 15. ábrán látható két felvétel ilyen 2D *imaging plate* felvételek a 20 nm rétegvastagságú és 1 μm teljes vastagságú minta Nb(110), Cu(111), Nb(220) és Nb(321) reflexiók esetén. A 15. ábrán bemutatott mérési felvételeknél szimmetrikus (a) illetve aszimmetrikus (b) mérési elrendezés volt. Szimmetrikus mérési elrendezésnél a diffraktált nyaláb éppen ω szöget zár be a minta felületével, míg aszimmetrikus mérési elrendezéskor a diffraktált nyaláb, minta felületével bezárt szöge eltér ω -tól. A 15b. ábrán jól megfigyelhető, hogy a Nb (220) és (321) reflexiók együttes mérése hasonló mértékű intenzitás-eloszlást eredményezett, visszaigazolva a kiszámított ω szög helyességét. A Cu (222) reflexió a 6. táblázat alapján nem mérhető a Nb (220) és (321) reflexiók mérési beállítása mellett. Ennek a reflexiónak a detektálása olyan diffraktált nyalábból származik, melyek nem a textúra komponenshez tartozó szemcse-populációt jellemzi. Az éles textúra létezésének egy újabb igazolása, hogy a 15b. ábrán a textúra komponenshez tartozó Nb (310), Nb (222) és a Cu (400) reflexiók egyike sem volt detektálható, azonban a mérési tartomány ezeket a reflexiókat is magában foglalta. A mérések során jó statisztikájú vonalprofil csak a textúra komponenshez tartozó szemcse-populációk esetén volt tapasztalható, amit a 15a. és 15b. ábrákon a Nb (110) és Cu (111), illetve a Nb (220) mért reflexióinak intenzitásai jeleznek. A rost-textúra előző

fejezetben említett hengersizmetrikus jellege az aszimmetrikus mérési elrendezésnél tapasztalható „elnyúlt” jellegű Debye-Scherrer gyűrűkben mutatkozik meg, mint pl.: a 15b. ábrán megfigyelhető Nb (321) reflexió diffrakciós gyűrűje.

Az adott reflexió mérésekor az IP-ken kapott intenzitás-eloszlásokat a Debye-Scherrer gyűrű mentén integráltam, így kaptam meg a $I(2\theta)$ diffrakciós spektrumokat, vonalprofilokat. Mivel szinte minden reflexió külön mérésből származott, egy adott minta összes reflexiójának spektrumát, az egyes spektrumok egybeillesztésével értem el, ahol minden profil a textúra komponenshez tartozó szemcse-populációt jellemzi. Egy ilyen egybeillesztett teljes spektrumot mutatok be a 16. ábrán a 20 nm rétegvastagságú és 1 μm teljes vastagságú mintára vonatkozóan. A 16a. ábrán a Cu fázis reflexiói láthatóak, míg a 16b. ábrán a Nb reflexiót illesztettem össze [Csiszár et al., 2011a].





16.ábra

Az ábrákon fekete körökkel illusztrálom a mérési eredményt, míg a folytonos piros vonal a mért profilokra illesztett teljes elméleti profilfüggvényt jelenti. A mérés és kiértékelés a 20 nm rétegvastagságú és 1 μm teljes vastagságú mintára vonatkozik, ahol (a) a Cu {111} textúra komponenshez tartozó szemcse-populáció hkl reflexiói, illetve (b) a Nb {110} textúra komponenshez tartozó szemcse-populáció hkl reflexiói lettek kiértékelve. A nagyított rész azoknak a reflexióknak a vonalprofilját mutatják be, ahol a mért relatív intenzitás alacsony volt. A mért és az elméleti profilok közötti eltérés mértékét az ábrák alsó részében feltüntetett, pontról-pontra értelmezett fekete vonal jelzi.

A fekete körökkel illusztrált mérési pontokra a 2.2.2. fejezetben említett konvolúciós teljes profil-illesztés (eCMWP) módszerével illesztettem az elméleti profilfüggvényeket, ahol a deformációs profil-függvények meghatározásánál a 3.1.4. fejezetben részletezett individuális kontraszt faktorokat használtam a különböző reflexiók leírásakor. A 16a. ábra a Cu {111} textúra komponenshez tartozó szemcse-populáció összes mérhető hkl reflexióit mutatja, míg a

16b. ábrán a Nb {110} textúra komponenshez tartozó szemcse-populáció hkl reflexióit tekinthetjük meg. A mért és az elméleti profilok közötti eltérés mértékét az ábrák első részében feltüntetett, pontról-pontra értelmezett fekete vonal jelzi. Néhány esetben a Cu és Nb reflexiói nagymértékben átfedik egymást, hiszen voltak olyan mérési beállítások, ahol pl.: a Nb (211) és Cu (220) ugyanabban a elhajlási szögterületben közeli ω szögek alatt voltak mérhetőek. Az adott fázisra vonatkozó spektrum kiértékelését viszont nem zavarta a másik fázis jelenlévő reflexiója, mivel az eCMWP mind a véges méretből származó profil-függvényt, mind a diszlokációk okozta deformációs profil-függvényt függetlenül kezeli az illesztés során. Így a két fázisra jellemző fizikai paraméterek függetlenül nyerhetők, a különböző méret-profil függvények és individuális kontraszt faktorok használatán keresztül.

3.2.4. A diffrakciós spektrumok kiértékelése

A 2.2.2. fejezetben bemutatott eCMWP módszer segítségével értékeltem ki a két fázis teljes diffrakciós spektrumait. A módszer használata során a koherensen szóró tartományok méretének meghatározását illetve a diszlokáció szerkezet analízisét végeztem el. Az eCMWP módszer alapján a vizsgált spektrumokból meghatároztam a 2.1.1. fejezet (4) egyenletében megadott profil-függvényen keresztül, az m és σ paramétereket, így az (5) egyenlet $\langle x \rangle_{\text{area}}$ értékei meghatározásra kerülhettek. A mintákat jellemző $\langle x \rangle_{\text{area}}$ értékeket a 8. táblázatban sorolom fel [Csiszár et al., 2011a].

A diszlokációk okozta vonalprofil kiértékelésekor szükség van textúra-komponens létezése miatt kialakult speciális diszlokáció szerkezet individuális kontraszt faktorokon keresztül való kiértékelésére. Ha a megvilágított térfogatban véletlenszerű orientációval rendelkező krisztallitok lennének, vagy az összes lehetséges diszlokáció egyenlő valószínűséggel lenne megtalálható az anyagban, bátran használhatnánk a (8) egyenletben megadott átlagos kontraszt faktort. Így az elméleti profil illesztésekor a (7) egyenlet alapján, azonnal megkaphatnánk a diszlokáció sűrűségeket, diszlokáció jelleget, illetve a diszlokáció elrendeződési paraméterét is. Esetünkben az éles textúra, illetve az határfelületek jelenléte csak bizonyos diszlokációk jelenlétét engedik meg. Ebből kifolyólag a 3.1.4. fejezetben már részletezett individuális kontraszt faktorok, $C_{mq}^*(hkl)$ használata indokolt.

Mivel nem ismertek a mikroszerkezet kialakításában kulcsszerepet játszó diszlokációk halmaza, ezért a (7) egyenletben csak a ρC mennyiség határozható meg pontosan. A konvolúciós teljes profil illesztéskor (eCMWP) az átlagos kontraszt faktor, \bar{C} használata mellett lehetőség van az individuális kontraszt faktorok használatára is. Az utóbbi esetben lehetőség van szabadon megadni a diszlokáció sűrűség mértékét, melyhez igazodva kerülnek a $C_{ind}^*(hkl)$ individuális kontraszt faktorok is illesztésre. A jelölésnél használt * szimbólum arra vonatkozik, miszerint ezek a kontraszt faktorok nem a valódi értéket hordozzák, hanem a megadott ρ^* szerint skálázódnak. Ha egyszer a formális $C_{ind}^*(hkl)$ faktorok meghatározására kerültek, akkor a megfelelő elméleti kontraszt faktorok ismeretében, a (33) egyenletben definiált hkl -függő egyenletek felírása, a (34) egyenletrendszer megoldása és a kapott eredményekből, a (37) egyenlet alapján meghatározhatók a valódi diszlokáció sűrűségek, $\rho^{valódi}$, illetve a valódi individuális kontraszt faktorok, $C_{valódi}$, is. Az elméleti kontraszt faktorok meghatározását a következő fejezetben ismertetem. A kiértékelés során figyelembe veszem, hogy a textúra komponenshez tartozó hkl reflexiók és felharmonikusaik individuális kontraszt faktorai nem függetlenek egymástól. Így például a Nb fázisnál a $C_{ind}^*(110)$ és a $C_{ind}^*(220)$ értékeinek azonosnak kell lenniük. A kiértékelés során kapott diszlokáció sűrűségeket, mindkét fázisra vonatkozóan a 8. táblázatban ismertetem [Csiszár et al., 2011a].

3.2.5. Diszlokáció-szerkezet meghatározás

3.2.5.1. A diszlokációk individuális kontraszt faktorai

A mért individuális kontraszt faktorok az eCMWP módszerével mind megkaphatók. Ahhoz, hogy a diszlokáció szerkezetről megállapításokat tehessünk, a (33) egyenlet alapján, az elméleti kontraszt faktorokkal kell őket összehasonlítani. Mivel a $C_{ind}^*(hkl)$ mennyiségek hkl függőek, az elméleti kontraszt faktorokat is így kell megadni. Adott diszlokáció esetén az ANIZC program segítségével [Borbély et al., 2003], az adott fázisra jellemző rugalmas anizotropia figyelembevételével minden hkl -re megadható a megfelelő kontraszt érték. Cu(fcc) fázis {111} csúszósík és [110] típusú Burgers vektor esetén 12 él és 6 csavar, míg Nb(bcc) fázis {110} csúszósík és [111] típusú Burgers vektor esetén 12 él 4 csavar

diszlokációra kell a számításokat elvégezni. A számítások során figyelembe kell venni Cu esetén az {111}, Nb esetén az {110} textúra jelenlétét. A textúra komponens jelenléte meghatározza azokat az al-síkokat, amelyek hozzájárulnak az adott hkl reflexió kialakításához. A textúrát figyelembe vevő al-síkokat a 7. táblázatban adom meg [Csiszár et al., 2011a].

Cu	{111}	{200}	{220}	{311}	{222}	{331}	
al-reflexiók	(111)	(200)	(220)	(311)	(222)	(331)	
		(020)	(202)	(131)		(313)	
		(002)	(022)	(113)		(133)	
Nb	{110}	{200}	{211}	{220}	{310}	{222}	{321}
al-reflexiók	(110)	(200)	(211)	(220)	(310)	(222)	(321)
		(020)	(121)		(130)	(22 $\bar{2}$)	(231)
			(21 $\bar{1}$)				(32 $\bar{1}$)
			(12 $\bar{1}$)				(23 $\bar{1}$)

7. táblázat

Elméleti kontraszt faktorok számításánál figyelembe vehető al-reflexiók, amelyek az adott textúra komponens irányát figyelembe veszik. Így mindkét fázis, összes hkl reflexiójának kontraszt faktora kiszámítható és a megfelelő faktorok átlaga, $\bar{C}_{th}(hkl, \mathbf{b}_i)$ összehasonlíthatóvá válik a mért individuális kontraszt faktorok, $C_{ind}^*(hkl)$ értékével. A reflexiók és felharmonikusaik kontraszt faktorainak egyezősége miatt, a táblázatban csak a {200} reflexió van feltüntetve, viszont az ott szereplő al-reflexiók a {400} reflexióra is vonatkoznak.

3.2.5.2. Burgers vektor analízis, a két fázis diszlokáció szerkezetének karakterizációja

A sokaságra vonatkozó Burgers-vektor analízist a 2.4. fejezetben leírt módon, a mért, $C_{ina}^*(hkl)$, illetve a számolt, $\overline{C}_{th}(hkl, \mathbf{b}_i)$ individuális kontraszt faktorok összehasonlításával értem el. Mindkét módszer alkalmazása során a kapott diszlokáció sűrűségek, f_i , segítségével a (35), (36) és (37) egyenletek alapján a reflexiók valódi kontraszt faktorai már kiszámíthatóak, így a 2.2.1. fejezetben ismertetett, *módosított* WH ábrázolással meggyőződhetünk, hogy a kapott diszlokáció részalmaz valóban szerepet játszik-e a mikroszerkezet kialakításában. A Newton-féle numerikus illesztés során a diszlokáció sűrűségek kezdeti paraméter értékei, a diszlokációk nem-ismert kitüntetettsége folytán, azonos mértékű volt, illetve az abszolút értékük is olyan intervallumba esett, hogy a belőlük számolható individuális kontraszt faktorok nagyságrendje az esetleges valódi individuális kontraszt faktorok nagyságrendjébe essen. A 2.2.1. fejezet- és a 2.4. fejezetben részletezett lépések alapján tehát meghatároztam az anyagban előforduló (a) egyedi diszlokációkat és (b) valódi diszlokáció sűrűségeket. A kiértékelés eredményeként adódott valódi diszlokáció sűrűségeket a 8. táblázatban, az egyedi diszlokációkra vonatkozó értékeket pedig a 9. és 10. táblázatban adom meg [Csiszár et al., 2011a].

3.2.6. Eredmények

3.2.6.1 Kvantitatív eredmények

A 3.2.4. fejezetben illetve a 3.2.5.2. fejezetben ismertetett eljárás eredményeként a mért vonalprofilokból a (4) egyenletében megadott profil-függvényen keresztül, az m és σ paramétereket, illetve az (5) egyenlet $\langle x \rangle_{\text{area}}$ értékeit meghatároztam. A mintákat jellemző $\langle x \rangle_{\text{area}}$ értékeket és a log-normális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvények paramétereit a 8. táblázatban adom meg. A profilok kiértékelése során mindkét fázis diszlokáció sűrűségeit is feltüntettem, amelyeket az egyedi diszlokációk meghatározásakor kapott sűrűségek összege

ad meg. A diszlokáció sűrűségekhez szervesen kapcsolódó egyedi diszlokációkat a Cu fázisra a 9. táblázatban, míg az Nb fázisra a 10. táblázatban tüntettem fel.

a)

rétegvastagság/ teljesvastagság		m [nm]	σ	$\langle x \rangle_{\text{area}}$ [nm]	ρ [10^{16} m^{-2}]
20 nm/ 1 μm	Cu	20	0.2	22 (± 2)	1.7 (± 0.2)
	Nb	14.5	0.32	19 (± 2)	4.1 (± 0.3)
20 nm/ 7.8 μm	Cu	22	0.14	23 (± 2)	1.7 (± 0.2)
	Nb	13	0.32	17 (± 2)	3.8 (± 0.3)

b)

rétegvastagság/ teljesvastagság		m [nm]	σ	$\langle x \rangle_{\text{area}}$ [nm]	ρ [10^{16} m^{-2}]
50 nm/ 1 μm	Cu	35	0.2	40 (± 2)	1.5 (± 0.2)
	Nb	22.5	0.32	30 (± 2)	2.8 (± 0.3)
50 nm/ 7.4 μm	Cu	17	0.4	26 (± 2)	1.7 (± 0.2)
	Nb	16	0.41	23 (± 2)	3.6 (± 0.3)

c)

rétegvastagság/ teljesvastagság		m [nm]	σ	$\langle x \rangle_{area}$ [nm]	ρ [10^{16} m^{-2}]
75 nm/ 7.2 μm	Cu	54	0.14	56 (± 2)	1.7 (± 0.2)
	Nb	8.3	0.6	21 (± 2)	2.2 (± 0.3)

8. táblázat.

Mindenegy fázisra a réteg/teljes vastagság függvényében, a lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényének m és σ paraméterei, illetve az azokból kapható átlagos szemcseméret, $\langle x \rangle_{area}$ illetve a valódi diszlokáció sűrűségek, ρ . A eCMWP módszer alkalmazásakor sem ikerhatárok, sem más felületi hibák nullától különböző sűrűségét nem tapasztaltam.

A 3.2.5.2. fejezetben leírtak alapján arra az eredményre jutottam, miszerint a Cu rétegekben a diszlokáció sűrűség mértéke $\rho^{valódi} = 1.7 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$, függetlenül attól hogy a vizsgált minta milyen réteg- vagy teljes mintavastagsággal rendelkezik. A Nb fázisra ilyen kijelentés már nem tehető meg. A Nb rétegeit jellemző diszlokáció sűrűség mértéke *csökken*, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát $\rho^{valódi} = 4 (\pm 0.3) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ -től egészen $\rho^{valódi} = 2 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ mértékig, ámbár, *adott rétegvastagság* esetén *nem változik* a hiba sűrűsége a teljes mintavastagság függvényében.

A 8. táblázatban a koherensen szóró tartományok nagyságáról is szólók. Az itt megadott $\langle x \rangle_{area}$ értékek a 2.1.1. fejezetben leírtak, illetve az (5) egyenletben explicit módon megadott átlagos szubszemcse méretet jelentik, míg az átlagos szemcseméretre tartozó lognormális szemcseméret-eloszlást jellemző sűrűségfüggvény mediánja és variáciája is segíti a pontosabb mikroszerkezeti leírást. A két fázist jellemző diszlokáció szerkezet különbözősége mellé a koherensen szóró tartományok evolúciójának különbözősége is társul. A Cu rétegek esetén 20 nm rétegvastagságnál $\langle x \rangle_{area} = 20$ nm átlagos szubszemcse méretet tapasztaltam és növekvő rétegvastagság esetén a rétegvastagsággal szinte megegyező, azaz növekvő tendenciájú, de annál kisebb mértékű szubszemcse méret adódott. A Nb rétegeknél

viszont függetlenül a réteg- és teljes mintavastagságtól, közel $\langle x \rangle_{\text{area}} = 20 (\pm 2)$ nm szubszemcse méret jellemezte a vizsgált mikroszerkezetet.

a) A Cu réteg

			rétegvastagság		
			20 nm	50 nm	75 nm
	Burgers vektor	csúszó-sík	1 μm teljes- vastagság	1 μm teljes- vastagság	-
			<i>f</i>		
él	[01 $\bar{1}$], [10 $\bar{1}$], [1 $\bar{1}$ 0]	(111)	0.95 (± 0.1)	0.85 (± 0.1)	-
csavar	[01 $\bar{1}$], [10 $\bar{1}$], [1 $\bar{1}$ 0]	-	0.05	0.15	-
			7.8 μm teljes- vastagság	7.4 μm teljes- vastagság	7.2 μm teljes- vastagság
			<i>f</i>		
él	[01 $\bar{1}$], [10 $\bar{1}$], [1 $\bar{1}$ 0]	(111)	0.85 (± 0.1)	0.85 (± 0.1)	0.75 (± 0.1)
	az előzőektől eltérő Burgers vektor	$\bar{1}(111)$	0.10	-	-
csavar	[01 $\bar{1}$], [10 $\bar{1}$], [1 $\bar{1}$ 0]	-	0.05	0.15	0.25

9. táblázat

A Cu fázisra a mért és számolt individuális kontraszt faktorok összehasonlításából kapott diszlokációk Burgers vektora és csúszó-síkja a hozzájuk tartozó relatív súly-eloszlással, *f*. A kapott relatív hányadok hibáját a zárójelekben adtam meg.

b) A Nb réteg

			rétegvastagság		
			20 nm	50 nm	75 nm
	Burgers vektor	csúszó-sík	1 μm teljes- vastagság	1 μm teljes- vastagság	-
			<i>f</i>		
edge	$[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	(101), (01 $\bar{1}$)	0.35 (± 0.1)	0.4 (± 0.1)	-
	$[\bar{1}\bar{1}1]$	(011), (10 $\bar{1}$)	0.35 (± 0.1)	0.4 (± 0.1)	-
screw	[111], $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	-	0.3	0.2	-
			7.8 μm teljes- vastagság	7.4 μm teljes- vastagság	7.2 μm teljes- vastagság
			<i>f</i>		
edge	$[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	(101), (01 $\bar{1}$)	0.4 (± 0.1)	0.42 (± 0.1)	0.47 (± 0.1)
	$[\bar{1}\bar{1}1]$	(011), (10 $\bar{1}$)	0.4 (± 0.1)	0.42 (± 0.1)	0.47 (± 0.1)
screw	[111], $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	-	0.2	0.16	0.06

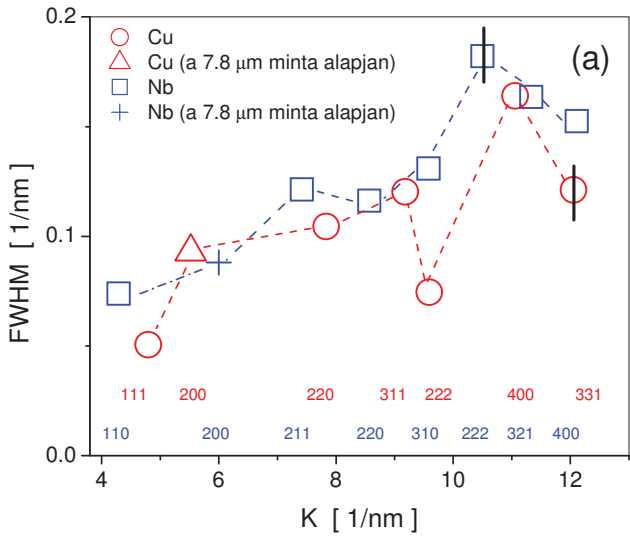
10. táblázat

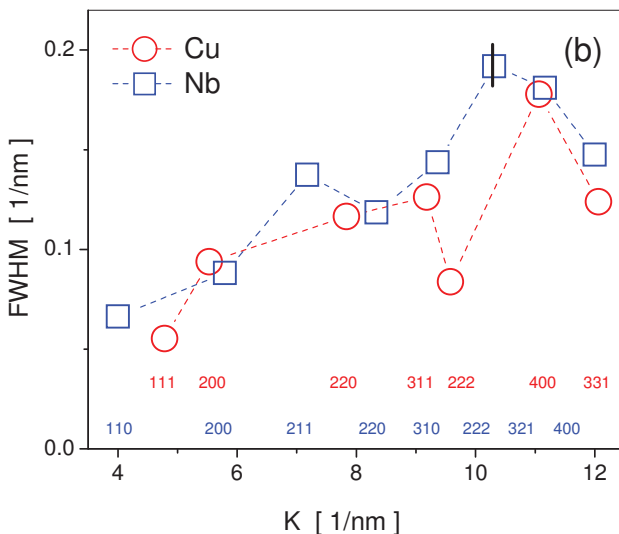
A Nb fázisra a mért és számolt individuális kontraszt faktorok összehasonlításából kapott diszlokációk Burgers vektora és csúszó-síkja a hozzájuk tartozó relatív súly-eloszlással, *f*. A kapott relatív hányadok hibáját a zárójelekben adtam meg.

A 9. és 10. táblázatokban felsorolt diszlokációk a következő mikroszerkezeti sajátosságokkal ruházzák fel a mintákat: **(1)** míg a Cu rétegeket 80-90%-ban, addig a Nb rétegeket csupán 70-80%-ban jellemzik a mikroszerkezetet az *él-jellegű* diszlokációk, **(2)** mindkét fázisnál a kapott él-diszlokációk többsége olyan Burgers vektorral rendelkezik, amely *párhuzamos* a határfelülettel, illetve a minta felületével (a kiértékelés során a határfelület illetve a minta felülete (111)Cu/(110)Nb kristallográfiai irányoknak lettek definiálva) **(3)** a Cu rétegekben a kapott diszlokációk csúszó-síkjai szigorúan a minta felületével párhuzamos *(111) síkok* **(4)** ezzel ellentétben a Nb rétegekben a megadott él-diszlokációkhoz tartozó csúszó-síkok minden esetben az (110) síktól *eltérő* síkok **(5)** a kialakult diszlokáció-szerkezetek a mintákat jellemző réteg- vagy teljes mintavastagságtól teljesen függetlennek adódott [Csiszár et al., 2011a].

3.2.6.2. Kvalitatív eredmények

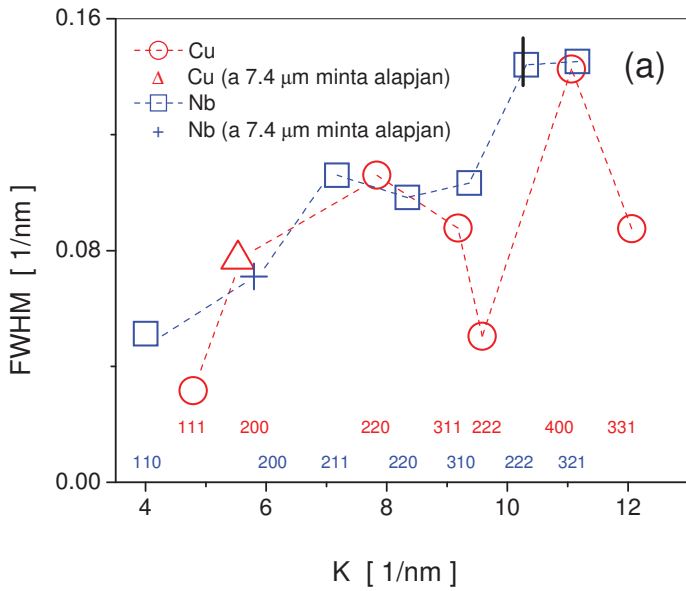
A mikroszerkezeti paraméterek kvalitatív ábrázolását a Cu-Nb multirétegek tekintetében is elvégeztem. A vonalprofilok szélesedésének kvalitatív ábrázolására a Williamson-Hall módszert alkalmaztam ahol a profilok $FWHM=(2\cos\theta/\lambda)\Delta\theta$ [1/nm] értékeit K [1/nm] függvényében ábrázolom. 17a-b, 18a-b és 19 ábrák szemléltetik a 20, 50 és 75 nm rétegvastagságú és különböző teljes vastagságú mintákra vonatkozó kvalitatív képeket [Csiszár et al., 2011a].

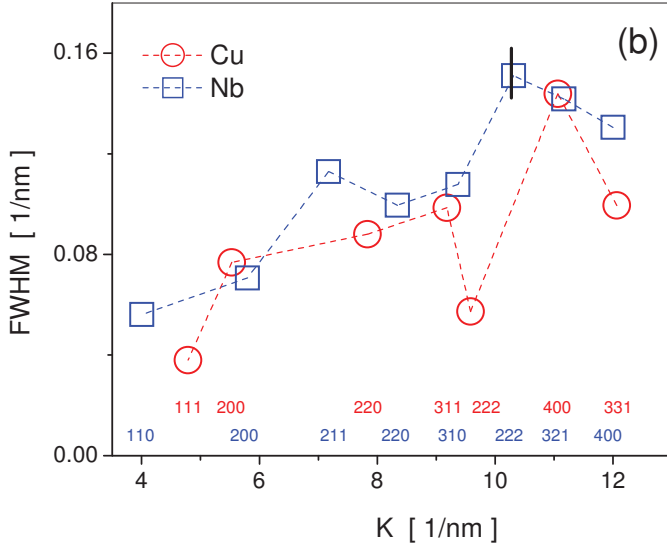




17. ábra

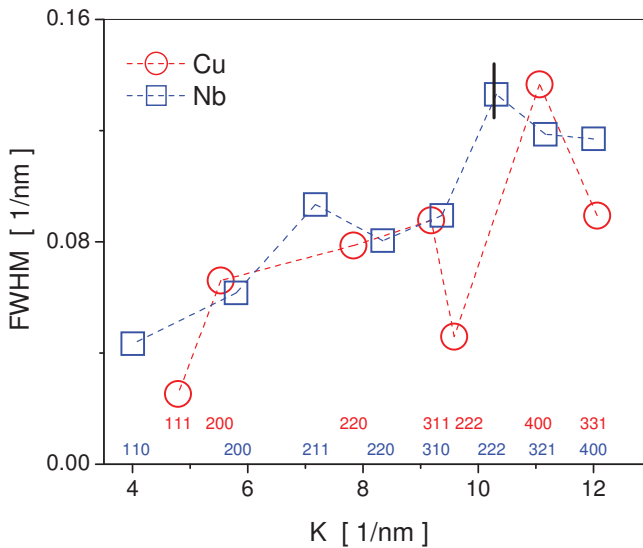
Williamson-Hall (WH) ábrák a 20 nm rétegvastagságú minta (a) 1 és (b) 7.8 μm teljes vastagság szerint. Különböző színek és szimbólumok vonatkoznak a Cu és Nb reflexiókról leolvasható FWHM értékekre. A 17a. ábrán a piros-háromszög és kék-kereszt szimbólumok nem mért értékek, hanem a 17b. ábrán mért félérték-szélességekből levonható következtetések. Ezek a reflexiók az adott textúra-komponens figyelembevételéből következően *csak* transzmissziós geometriában lehetnek volna mérhetőek, viszont a szubsztrátum vastagsága túlzott mértékűnek bizonyult. Az ábrákon található függőleges vonalak a leolvasható FWHM értékek hibáját jelentik.





18. ábra

Williamson-Hall (WH) ábrák a 50 nm rétegvastagságú minta (a) 1 és (b) 7.4 μm teljes vastagság szerint. Különböző színek és szimbólumok vonatkoznak a Cu és Nb reflexiókról leolvasható FWHM értékekre. A 18a. ábrán a piros-háromszög és kék-kereszt szimbólumok nem mért értékek, hanem a 18b. ábrán mért félérték-szélességekből levonható következtetések. Ezek a reflexiók az adott textúra-komponens figyelembevételéből következően *csak* transzmissziós geometriában lehetnek volna mérhetőek, viszont a szubsztrátum vastagsága túlzott mértékűnek bizonyult. Az ábrákon található függőleges vonalak a leolvasható FWHM értékek hibáját mutatják.



19. ábra

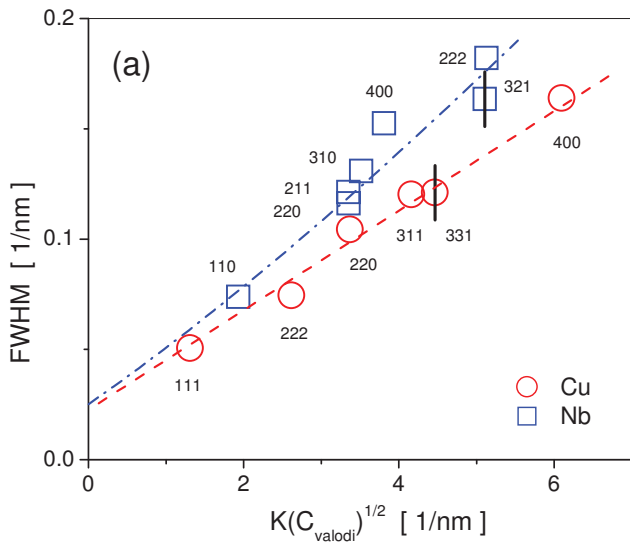
Williamson-Hall (WH) ábra a 75 nm rétegvastagság és 7.4 μm teljes vastagságú mintára vonatkozóan. Különböző színek és szimbólumok vonatkoznak a Cu és Nb reflexiókról leolvasható FWHM értékekre. Az ábrákon található függőleges vonal a leolvasható FWHM értékek hibáját hordozzák.

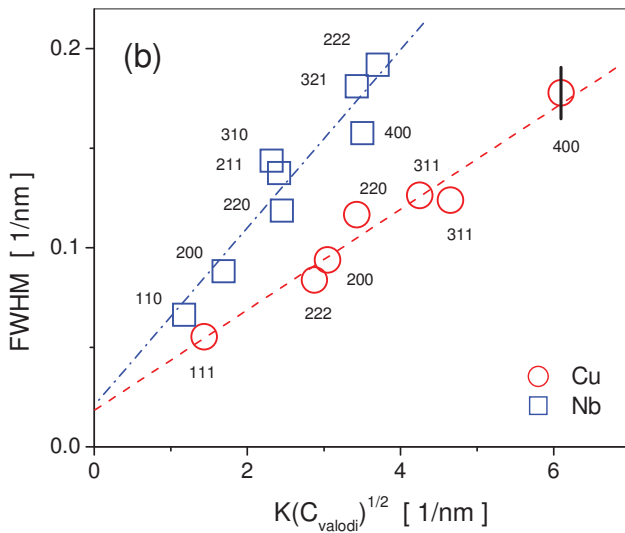
Mindenkét fázishoz tartozó WH ábrák, függetlenül a rétegvastagság vagy teljes mintavastagságtól, hasonló jegyekkel jellemezhetők. Az FWHM értékek kvalitatív hkl anizotrópia-függése minden esetben nagyon hasonló. A Cu fázisnál az 111, 222 és 331 reflexiók szélességei rendre kisebbek, mint bármelyik másik reflexióhoz tartozó FWHM értékek. Ha a 220 reflexióhoz tartozó félérték-szélességet vizsgáljuk, azt tapasztaljuk, hogy az csaknem azonos szélesséssel rendelkezik, mint a 311 reflexió. Ha minden lehetséges

diszlokáció jelen van a mikroszerkezet kialakításában akkor a réz 200, 220 és 222 reflexióihoz tartozó félérték-szélességek egy közel vízszintes vonal mentén kell, hogy elhelyezkedjenek [Ungár et al., 1996]. Ezt a jelenséget semelyik WH ábrán nem tapasztalom.

A nióbbium rugalmas anizotrópiáját jellemző Zener-állandó értéke $A_z^{Nb} = 0.513$, ahol $A_z = 2c_{44}/(c_{11}-c_{12})$ és c_{ij} a megfelelő rugalmas állandók [Steeds, 1973]. Ha A_z értéke egységnél kisebb, akkor a diszlokációk átlagos $\overline{C_{h00}}$ típusú kontraszt faktorai a legkisebb mértékűek. Ebből arra következtethetünk, hogyha minden lehetséges diszlokáció egyenlő valószínűséggel jelenik meg a vizsgált anyag mikroszerkezetének kialakításában, akkor a $h00$ típusú reflexiók félérték-szélességei lesznek a legkisebbek. A Nb fázisra vonatkozó összes WH ábrázolást vizsgálva azt tapasztaltam, hogy az 110 reflexióhoz tartozó szélesedés mindig kisebb, mint az azonos ábrán feltüntetett 200 reflexió szélesedése. A fent elmondottak alapján tehát kijelenthető, hogy mindkét fázis diszlokáció szerkezetét kialakító diszlokációk *valódi* részalmazával jellemezhető csak a vizsgált mikroszerkezet.

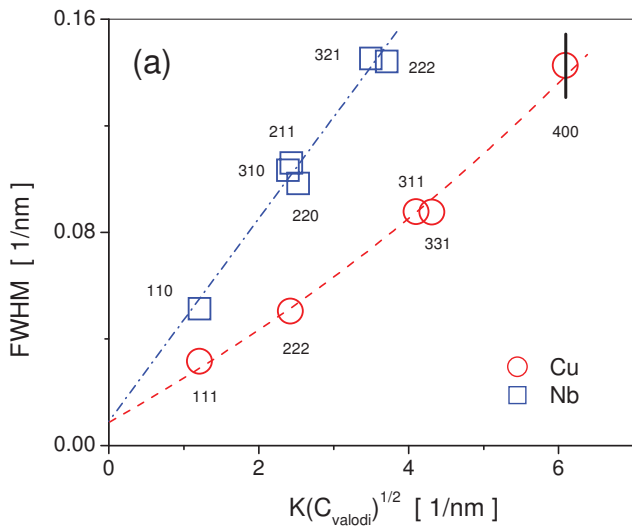
A mikroszerkezet kiegészítő kvalitatív leírását szolgálja a 2.2.1. fejezetben bemutatott *módosított* WH ábrázolás, melynek segítségével (a) megbizonyosodhatunk arról, hogy a kvantitatív eredményként kapott diszlokáció szerkezet valóban szerepet játszik-e a mikroszerkezet kialakításában (b) a relatív diszlokáció sűrűségek mértékéről és (c) a koherensen szóró tartományok relatív viszonyáról is meggyőződhetünk. A különböző reflexiókhoz tartozó FWHM értékeket $K\sqrt{C_{valódi}(hkl)}$ függvényében ábrázolom [Ungár et al., 1999], ahol $C_{valódi}(hkl)$ értékei a (37) egyenletből nyerhetőek. A 20, 50 és 75 nm rétegvastagságú és 1, 7.4 és 7.8 μ m teljes mintavastagságú minták *mWH* ábráit a 20a-b, 21a-b és 22. ábrákon mutatom be mind a réz, mind a nióbbium fázisokra [Csiszár et al., 2011a].

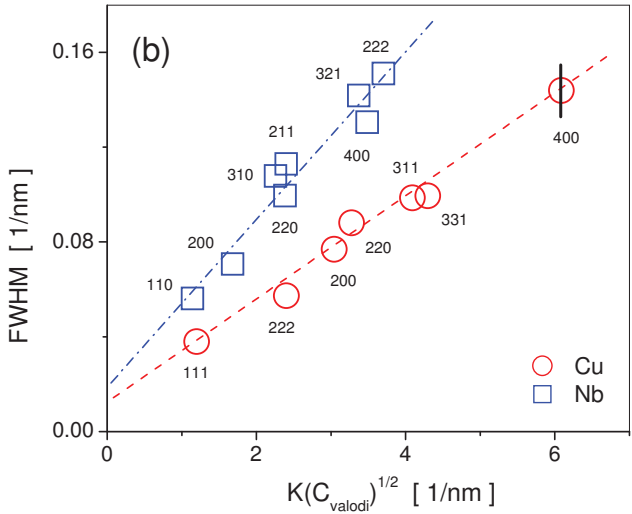




20. ábra

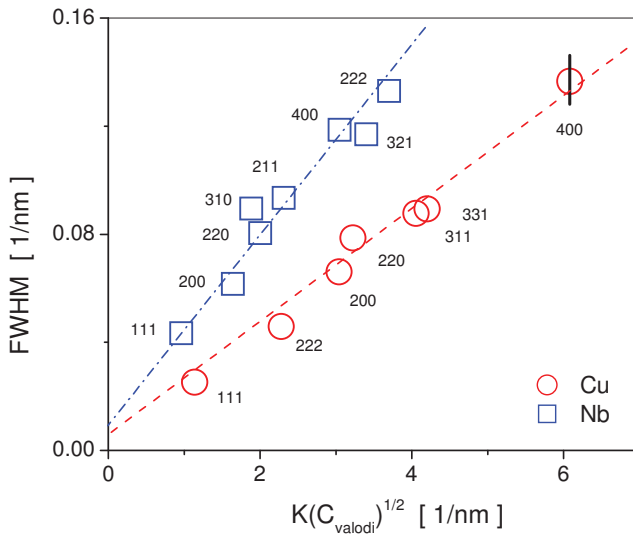
A 20 nm rétegvastagságú és (a) 1 és (b) 7.8 μm teljes mintavastagságú multirétegek módosított Williamson-Hall (mWH) ábrái. A $C_{valodi}(hkl)$ értékek, a (37) egyenleten keresztül, a 9. és 10. táblázatban kapott diszlokációk valódi részalmazával konzisztensen skálázták át a megfelelő félérték-szélességeket. Az ábrákon található függőleges vonalak a leolvasható FWHM értékek hibáját jelentik.





21. ábra

A 50 nm rétegvastagságú és (a) 1 és (b) 7.4 μm teljes mintavastagságú multirétegek módosított Williamson-Hall (mWH) ábrái. A $C_{valodi}(hkl)$ értékek, a (37) egyenleten keresztül, a 9. és 10. táblázatban kapott diszlokációk valódi részahalmazával konzisztensen skálázták át a megfelelő félérték-szélességeket. Az ábrákon található függőleges vonalak a leolvasható FWHM értékek hibáját jelentik.



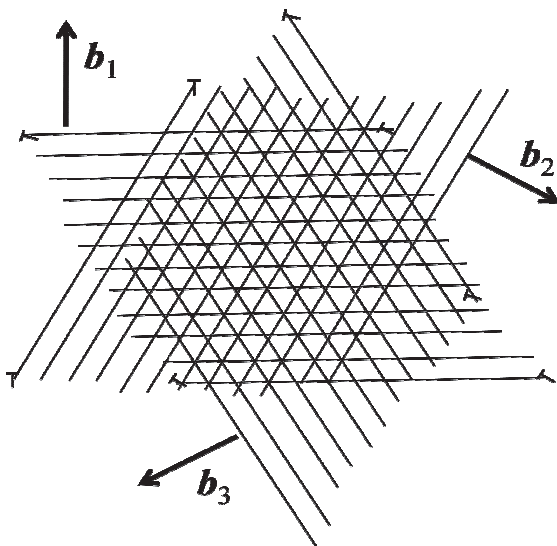
22. ábra

A 75 nm rétegvastagságú és 7.2 μm teljes mintavastagságú multiréteg *módosított* Williamson-Hall (mWH) ábrája. A $C_{valodi}(hkl)$ értékek, a (37) egyenleten keresztül, a 9. és 10. táblázatban kapott diszlokációk valódi részhalmozásával konzisztensen skálázták át a megfelelő félérték-szélességeket. Az ábrákon található függőleges vonal a leolvasható FWHM értékek hibáját jelenti.

A 20a-b, 21a-b és 22. ábrák, kiegészítve a kvantitatív eredményeket, megerősítik a 9. és 10. táblázatban bemutatott diszlokációk szerkezetet illetve a 17, 18 és 19. ábrákon bemutatott speciális feszültség anizotrópiát a diszlokációkhoz tartozó individuális kontraszt faktorokon keresztül. A 20a-b, 21a-b és 22. ábrák a kvantitatívan meghatározott diszlokáció sűrűségek és koherensen szóró tartományok relatív mértékével is összhangban állnak.

3.2.7. Diskusszió

A 3.2.6.1. fejezetben található kvantitatív eredmények leírásán felül további észrevételek tehetők. A 9. táblázatban szereplő diszlokáció populáció egy közel háromfogatú szimmetriával rendelkező diszlokáció szerkezetet testesít meg a Cu fázisra nézve, mely valószínűsíthetően az határfelület mikroszerkezetét hordozza. A diszlokáció szerkezetet illusztráló ábrát a 23. ábrán mutatom be [Csiszár et al., 2011a].



23. ábra

Sematikus ábra a Cu-Nb multiréteg Cu fázisát jellemző diszlokáció szerkezet illusztrálására. A diszlokáció-szerkezet hálózata egy közel háromfogatú szimmetriával rendelkező objektumot alkot.

Ha azt feltételezzük, hogy a diszlokációk nagy része az határfelületek mikroszerkezetének kialakításában vesz részt [Wang et al., 2009], akkor a diszlokáció sűrűségének meghatározására az alábbi összefüggés adható [Csiszár et al., 2011a]

$$\rho = \frac{1}{d \times D}, \quad (46)$$

ahol D a rétegek vastagságát, d pedig az határfelületben található diszlokációk átlagos távolságát jelentik. Mivel eredményeink azt sugallják, hogy ρ_{Cu} mennyisége állandó függetlenül a réteg illetve teljes mintavastagságtól és D változik, a (46) egyenlet alapján d is változik. Ilyen elgondolás alapján kiszámítható az összes minta esetén a d értéke, amelyet a 11. táblázatban adok meg kiegészítve az $\{111\}$ síkot jellemző atomközi távolság függvényében meghatározott dimenziótlan mennyiségekkel [Csiszár et al., 2011a].

Vastagság	ρ_{Cu} [10^{16} m^{-2}]	D [nm]	d [nm]	n (d/b)
20 nm (réteg) 1 μm (teljes)	1.7 (± 0.2)	20	2.9	11.5
20 nm (réteg) 7.8 μm (teljes)	1.7 (± 0.2)	20	2.9	11.5
50 nm (réteg) 1 μm (teljes)	1.5 (± 0.2)	50	1.33	5.2
50 nm (réteg) 7.4 μm (teljes)	1.7 (± 0.2)	50	1.18	4.6
75 nm (réteg) 7.2 μm (teljes)	1.7 (± 0.2)	75	0.78	3.1

11. táblázat

A Cu fázisra vonatkozó diszlokáció sűrűségek, ρ_{Cu} , a rétegek vastagsága, D , az határfelületben található diszlokációk (46) egyenlet alapján kapott átlagos távolsága, d illetve az átlagos távolság mértéke az $\{111\}$ síkot jellemző atomközi távolság függvényében, $n=d/b$.

A 11. táblázatban a növekvő rétegvastagsághoz d mértékének csökkenése társul, mely a határfelületet jellemző diszlokáció-szerkezet *fokozatos* evolúciójával magyarázható. Epitaxiális vékonyrétegek növesztésénél ugyanis [Jesser et al., 1967; Kurilo et al., 1999; Mitlin et al., 2004] adott kritikus rétegvastagságot meghaladva, az inkoherencia teljes mértékű megszüntetését elősegítő *misfit* típusú diszlokációk nem képesek azonnal kialakítani a számukra energetikailag kedvező egyensúlyi távolságot. A *misfit* típusú diszlokációk között lévő távolságok csak fokozatosan csökkennek, és csak aszimptotikusan érik el az egyensúlyi

távolságot miközben a vékonyrétegek rétegvastagságát növeljük. A 11. táblázatban ezt a jelenséget a d értékének körülbelül 3 nm-ről 1 nm-re való csökkenése jelzi miközben a rétegek vastagsága 20 nm-ről 75 nm-re növekszik.

A fenti jelenség magyarázata alapvetően azon feltételezésen alapszik, miszerint a diszlokációk nagy hányada a határfelület tartományára korlátozódik. Bár a diszlokációk nagy hányada a feltételezések alapján a határfelület síkjában található geometriailag szükséges diszlokációk, ennek ellenére TEM vizsgálatok kimutatták, hogy geometriailag *nem-szükséges*, *nem-misfit* típusú diszlokációk is alakítják a vékonyréteg mikroszerkezetét [Misra et al., 2004; Zhang et al., 2008]. Ezek a *nem-misfit* típusú diszlokációk a rétegek határfelülettől különböző, belső térfogati tartományában helyezkednek el. Korábbi ismeretek alapján tudjuk, hogy növekvő rétegvastagság esetén növekvő diszlokáció sűrűséget képviselnek, mivel a határfelületek vonzó jellegű kölcsönhatása következtében a határfelületek közötti, belső tartományok fokozatosan kiürülnek és ezzel csökkentik a diszlokációk tartományon belüli sűrűségét [Mitlin et al., 2004].

Ha minden diszlokáció térbeli elhelyezkedését a határfelület tartományára korlátozzuk, akkor pusztán geometriai megfontolások alapján, növekvő réteg vastagság esetén a *misfit* típusú diszlokációk csökkenését váránk, hiszen az anyagban található határfelület típusú tartományok relatív hányada csökken. Mivel ilyen változást nem tapasztaltam, a mikroszerkezetet leíró és az eddigi ismereteket figyelembe vevő faktorok a következők: (1) a határfelület tartományára korlátozódó *misfit*-típusú diszlokációk sűrűsége fokozatosan növekszik, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát és ezzel párhuzamosan (2) a geometriailag *nem-szükséges*, *nem-misfit* típusú diszlokációk sűrűsége csökken az egyre növekvő rétegvastagság függvényében [Csiszár et al., 2011a].

Az előző paragrafusban szereplő megállapítások a Cu fázis mikroszerkezeti leírását érintették, a Nb fázisra vonatkozó karakterizáció ettől eltérő jelleget hordoz. Itt ugyanis a mérések csökkenő diszlokáció sűrűséget mutatnak, miközben növeljük a rétegvastagságot. A Cu fázisának mikroszerkezeti leírásánál alkalmazott feltételezésekkel élve ez úgy lehetséges, hogy a rétegeken belül kialakuló geometriailag *nem-szükséges* diszlokációk a határfelület vonzó kölcsönhatásával szemben nagyobb ellenállást tanúsítanak. A geometriailag *nem-szükséges* diszlokációk minél közelebb vannak a határfelületekhez, annál inkább vonzódnak a határfelület lokálisan érezhető vonzó kölcsönhatása folytán, melyet MD szimulációk is alátámasztanak [Mitlin et al., 2004]. Viszont, mivel a mechanikai deformáció rugalmas

tartományában a Cu sokkal ellenállóbb, mint a Nb, ezért egyfajta képerő jelenlétének tulajdoníthatjuk azt a taszító erőt, amely nehezíti a Nb rétegeiben a diszlokációk határfelülethez való jutását. A határfelületek pár nanométeres tartományában a vonzásból eredő erő meghaladja a taszító jellegű képerő mértékét [Mitlin et al., 2004], míg egy adott távolságon túl, körülbelül 10 nm, a képerő jelenléte miatt semlegesítődik a vonzó jelleg, így a diszlokációk ebből a tartományból már nem képesek eljutni a számukra energetikailag kedvezőbb határfelülethez [Csiszár et al., 2011a].

3.2.8. Makroszkopikus tulajdonságok

A multirétegeket jellemző makroszkopikus tulajdonságok közül a folyás-feszültség mértékét vizsgáltam meg illetve, hogy mennyire korrelál a mikroszerkezeti paraméterek - a koherensen szóró tartományok mérete, a rétegvastagság és a diszlokáció sűrűség - értékeivel. A koherencia hossz figyelembevételénél szükség volt mind a koherensen szóró tartományok, mind a rétegvastagság által meghatározott véges méretre, mivel mérési hibán belül azonos mértéket képviseltek, így nem lehetett eldönteni, hogy melyik mennyiség képviseli jobban a makroszkopikus tulajdonságot. A mikroszerkezeti paramétereket az ismert Hall-Petch [Hall, 1951; Petch, 1953] és Taylor [Taylor, 1928, 1934] összefüggések segítségével alakítottam makroszkopikus mennyiségekké. A mért feszültség értékét korábbi, hasonlóan elkészített multirétegen történt mérésből származtatom. Nyújtási deformáció hatására 40 nm rétegvastagságú, Cu-Nb multiréteg feszültségére $\sigma = 1.55$ GPa adódik [Mara et al., 2008]. Mivel a multirétegeink a nyújtási deformáció irányával és a két fázis rétegeire vonatkozóan is [Mara et al., 2008] „párhuzamosan kapcsolt” deformációt hordoznak, így írhatjuk

$$\sigma = f_{Cu}\sigma_{Cu} + f_{Nb}\sigma_{Nb} , \quad (47)$$

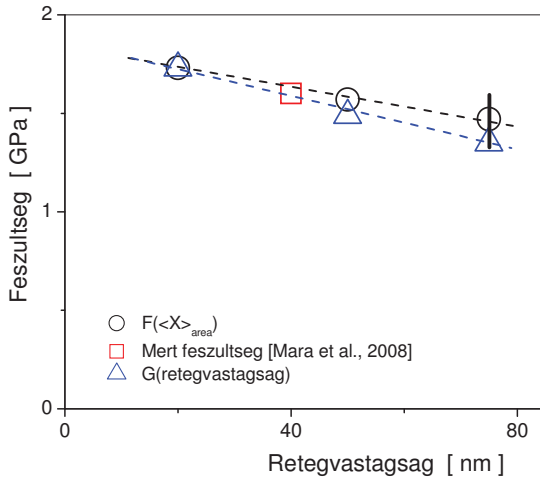
ahol f_{Cu} , f_{Nb} a két fázisra vonatkozó relatív térfogati hányadok illetve σ_{Nb} és σ_{Cu} a fázisokat jellemző feszültségek. Esetünkben $f_{Cu}=f_{Nb}$. Az egyesített Taylor és Hall-Petch egyenletek a diszlokáció sűrűség, ρ , illetve a rétegvastagság, $d_{réteg}$, vagy a koherensen szóró doméneken,

$\langle x \rangle_{\text{area}}$, keresztül határozzák meg a feszültség értékeket [Kamikawa et al., 2009; Tao et al., 2009]. Az egyesített Taylor és Hall-Petch egyenletek szerint a következő egyenletet írhatjuk

$$\sigma_i = \sigma_{0i} + \alpha \mu_i b_i M_T \sqrt{\rho_i} + \frac{K}{\sqrt{d_j}}, \quad (48)$$

ahol σ_i az szilárdság növekedés hatására kialakuló feszültség, σ_{0i} a diszlokáció mentes anyag rugalmassági határa, α egy 0 és 1 közötti konstans, μ_i a nyírási modulus, b_i a Burgers vektor hossza, i index jelöli Cu illetve Nb fázist, j index pedig arra szolgál, hogy a véges méretet vagy a rétegvastagság, vagy a koherensen szóró domén méret szerint vegyük figyelembe. A plasztikus deformáció során használt Taylor-faktor, $M_T \cong 2.7$ [Kamikawa et al., 2009]. A makroszkopikus jelleg mikroszerkezeti paraméterekkel való jellemzéséhez használt további mennyiségek a következők: Hall-Petch konstans $K=0.06 \text{ MPa m}^{1/2}$ [Anderoglu et al., 2008b], nyírási modulusok $\mu_{\text{Cu}}=48 \text{ GPa}$ és $\mu_{\text{Nb}}=38 \text{ GPa}$ [Anderoglu et al., 2008a], a diszlokáció mentes anyag rugalmassági határára $\sigma_{0\text{Cu}}=\sigma_{0\text{Nb}}\cong 0.19 \text{ GPa}$ [Anderoglu et al., 2008a], és $\alpha=0.22$.

Az 50 nm rétegvastagságú mintára a megfelelő mikroszerkezeti paraméterek függvényében 1.57 GPa illetve 1.49 GPa feszültséget kaptam attól függően, hogy d értékének $\langle x \rangle_{\text{area}}$ vagy $d_{\text{réteg}}$ mennyiséget választottam. A megfelelő mikroszerkezeti paraméterek függvényében a multiréteget jellemző makroszkopikus feszültség értékek megadhatók, melyeket a rétegvastagság függvényében a 24. ábrán mutatok be [Csizsár et al., 2011a]. Az ábrán mind a koherensen szóró domének, mind a rétegvastagság függvényében meghatározott feszültség értékeket feltüntettem. A mikro- és makroszkopikus jelleg közti korreláció fennállását az ábrán feltüntetett mért feszültségérték kívánja igazolni [Mara et al., 2008]. Az ábrán jól látható, hogy a multiréteg 20%-os szilárdság növekedése történik meg miközben a rétegvastagság 75 nm-ről 20 nm-re csökkent.



24. ábra

A mikroszerkezeti paraméterek alapján számolt feszültségértékek, ahol a diszlokáció sűrűség, az átlagos szubszemcse méret illetve a rétegvastagság, mint fizikai paraméterek határozzák meg a feszültségek mértékét. Növekvő véges-méret, csökkenő alakítási keményedéssel párosul.

3.2.9. Konklúzió

Különböző réteg- és teljes mintavastagságú Cu-Nb multirétegek vonalprofil analízisét végeztem el, ahol a mikroszerkezetet meghatározó mindkét fázis diszlokáció szerkezet leírására, illetve a koherensen szóró tartományok evolúciójára is megállapításokat fogalmaztam meg. A mikroszerkezeti sajátosságokon felül, makroszkopikus jellemzésre is sor került. Az alábbi pontokban foglalom össze a kapott eredményeket.

1) A Cu rétegekben a diszlokáció sűrűség mértéke $\rho^{\text{valódi}} = 1.7 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$, függetlenül attól hogy a vizsgált minta milyen réteg- vagy teljes mintavastagsággal rendelkezik.

2) A Nb rétegeit jellemző diszlokáció sűrűség mértéke *csökken*, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát $\rho^{\text{valódi}} = 4 (\pm 0.3) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ -tól egészen $\rho^{\text{valódi}} = 2 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ mértékig, bár a diszlokáció sűrűség változása nem lineáris a rétegvastagság változásának függvényében.

3) Függetlenül a réteg- vagy teljes mintavastagságtól, mindkét fázisra vonatkozóan a diszlokáció-szerkezetek, a Burgers vektor populációra vonatkozóan igen hasonlóan adódnak.

4) A diszlokáció-szerkezet, mindkét fázisra nézve, többnyire él-jellegű, a két fázis határát jellemző határfelület síkjával párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk halmazával jellemezhető. A Cu fázist jellemző diszlokáció-populáció egy közel háromfogású szimmetriával rendelkező diszlokáció-szerkezetet testesít meg.

5) Ha a diszlokációk többnyire a határfelületek térfogati tartományában helyezkednek el, akkor azonos teljes mintavastagság és növekvő rétegvastagság esetén csökkenő diszlokáció sűrűséget várunk. Az elemzés során nem ezt tapasztaltam, amit a következő módon oldok fel: (1) a határfelület tartományára korlátozódó *misfit*-típusú diszlokációk sűrűsége fokozatosan növekszik, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát és ezzel párhuzamosan (2) a geometriailag *nem-szükséges, nem-misfit* típusú diszlokációk sűrűsége csökken az egyre növekvő rétegvastagság függvényében. A mechanizmus hajtóereje a határfelületek által

képviselet vonzó potenciálban rejlik, mely a határfelületek közelében tartózkodó diszlokációkra hat.

6) Az inkoherencia teljes mértékű megszüntetését elősegítő *misfit* típusú diszlokációk nem képesek azonnal kialakítani a számukra energetikailag kedvező egyensúlyi távolságot. A diszlokációk között lévő távolságok csak fokozatosan csökkennek, aszimptotikusan érik el az egyensúlyi távolságot miközben a vékonyrétegek rétegvastagsága növekszik.

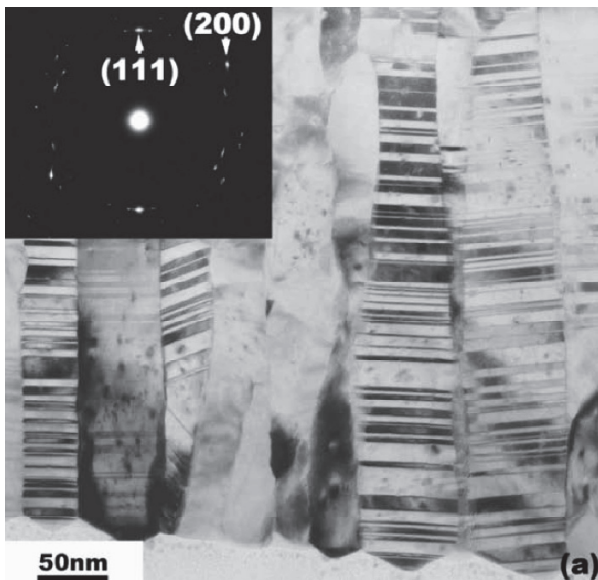
7) A Nb rétegeknél a vizsgált mikroszerkezetet függetlenül a réteg- és teljes mintavastagságtól közel $\langle x \rangle_{\text{area}} = 20 (\pm 2)$ nm szubszemcse méret jellemzi.

8) A makroszkopikus feszültség mértékét a Taylor és Hall-Petch összefüggéseken keresztül a mikroszerkezeti paraméterek jól jellemzik. A multiréteg 20%-os szilárdság növekedés történik meg miközben a rétegvastagság 75 nm-ről 20 nm-re csökken.

3.3. Ikerhatár struktúra változásának vizsgálata Cu vékonyrétegekben

3.3.1. Irodalmi áttekintés

Az ikresedés fizikai jelensége régóta jól ismert az anyagtudomány területén. A konvencionális megközelítésben az ikresedő kristályokban, az ikerhatárok átlagos távolsága a 10-15 nm-től a 100-1000 nm-es mértékig, elméletileg azonban bármennyig, terjedhet. Az elmúlt évtizedekben nagy hangsúlyt kaptak azok az *fcc* struktúrák, melyekben az ikerhatárok átlagos távolsága 2-3 nm-t éri el. Ezeket nevezzük nano-ikresedett struktúráknak. Az ilyen léptékű ikerhatárok eddigi vizsgálatai többnyire *fcc* fémek családjára vonatkoztak, melyeket elektro-depozíció [Lu et al., 2004] vagy porlasztásos úton állítanak elő [Zhang et al., 2004, 2006]. A nano-ikresedés jelenségét főképp lamelláris struktúrát képviselő anyagokban alakítottak ki, de emellett nano-drótok mikroszerkezetének vizsgálatainál is megfigyelték a rendhagyó szerkezetet [Wang et al., 2004]. A nano-ikresedett *fcc* fémek vagy ötvözeteik egyik ékes példája a porlasztásos úton előállított réz és ausztenites rozsdamentes acél ötvözet, ahol a ikerhatárok átlagos távolsága eléri a 2-4 nm-t, miközben az ikresedő kristály ikerhatárainak preferált {111} krisztallográfiai iránya egybeesik a vékonyréteg növesztési irányával [Zhang et al., 2004, 2006]. Ennek illusztrálására szolgál a 25. ábrán bemutatott TEM felvétel is [Anderoglu et al., 2010].



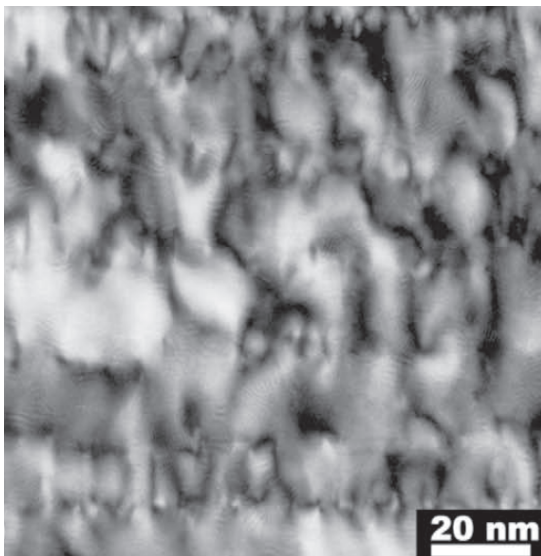
25.ábra

TEM felvétel egy porlasztásos módon előállított Cu nanokristályos vékonyrétegről. Az ábrán jól láthatóak a porlasztás során kialakult közeli ikerhatárok.

E vékonyrétegek növesztése során kialakult nano-ikresedett struktúrák tulajdonságai merőben eltérőek a tömbi anyagoknál tapasztalt jelleggel, de még a nanokristályos mikroszerkezettel rendelkező anyagokhoz képest is eltérő jelleget hordoznak. Az egy-tengelyű, nano-szemcsés, nagyszögű szemcsehatárokkal rendelkező fémes struktúrák tipikus jellemzői, hogy növekvő plasztikus deformáció során egyre kevésbé lesznek duktilisak, szobahőmérsékleten elvesztik termikus stabilitásukat és elektromos vezetőképességük is csökken. Ezzel ellentétben a Cu fázisú, nano-ikresedett vékonyrétegeknél nagyságrendben nagyobb mértékű húzási deformáció illetve fárasztásos alakítás hatására sem veszítik el duktilitásukat, jó termikus stabilitással és elektromos vezetőképességgel rendelkeznek [Lu et al., 2004; Zhang et al., 2006; Dao et al., 2006; Anderoglu et al., 2008a, 2008b; Shute et al., 2009].

Általában, porlasztásos úton előállított, nano-ikresedett Cu vékonyrétegek hideghengerlésekor, igen széles deformációs tartományban, nem tapasztaltak nyírási

instabilitást. Korábbi TEM felvételek azt mutatják, miszerint plasztikus deformáció során nagymértékű diszlokáció-felhalmozódás történik az ikerhatárok mentén, amely valószínűleg a nagymértékű alakíthatóságnak a legfőbb oka. Az ikerhatárok mentén tárolt diszlokációk jelenségén kívül az anyag plasztikus deformációjakor a diszlokációs cella-szerkezet teljes hiányáról is beszélhetünk [Lu et al., 2004; Anderoglu et al., 2010; Wang et al., 2010; Lu et al., 2009b]. Az ikerhatárok mentén tárolt diszlokációk jelenségét a 26. ábrán bemutatott felvételen láthatjuk [Anderoglu et al., 2010].



26.ábra

XTEM felvétel egy 69%-osan deformált Cu nano-ikresedett vékonyrétegről, ahol az ikerhatárok mentén felszaporodó diszlokációk jelensége látható.

Az ilyen mértékű, tárolt diszlokációk jelenlétét kvalitatívan a TEM felvételek kiválóan jellemzik, viszont kvantitatívan nem képesek az adott mikroszerkezet pontos leírására. Ezzel párhuzamosan bár lokálisan jellemezni tudják a kialakult ikerhatárok átlagos távolságát, a

lokális jelleg miatt, nagyobb térfogati tartományról nem képes számot adni. Ebben a fejezetben nagyfelbontású röntgen diffrakciós méréseken keresztül a 2.1. fejezetben bemutatott vonalprofil analízis módszerével adok mikroszerkezeti leírást a Cu fázisú vékonyrétegek ikerhatár-struktúrájának evolúciójára illetve a diszlokáció szerkezet változására. Ezekben a paramétereken kívül a koherensen szóró tartományokról is szólok.

A vékonyrétegek két deformációs állapotát vizsgálom: (1) közvetlenül a porlasztás utáni kiindulási állapotot illetve (2) hideghengerelt, deformált állapotot. Az analízis fókuszában, a mért vonalprofilokon keresztül, elsősorban a diszlokációk sűrűségének meghatározása illetve az ikerhatárok átlagos távolságának megállapításai állnak, illetve a mikroszerkezeti evolúciójára vonatkozó következtetések. A kapott eredmények makroszkopikus jelleget meghatározó vonatkozásait, azok korrelációjának meghatározását az ismert Hall-Petch [Hall, 1951; Petch, 1953] és Taylor [Taylor, 1928] összefüggéseken keresztül határozom meg. A fejezet végén látható, hogy az alakítási keményedésért nagyrészt a nano-ikerhatárok a felelősek, viszont a diszlokációk jelenléte sem hanyagolható el a pontos mikroszerkezeti leírás megadásához.

3.3.2. A minta előállítása és hideghengerlése

A vizsgált Cu vékonyrétegek DC-magnetron porlasztással készültek Si egykristály hordozóra. A porlasztás szobahőmérsékleten történt. A minta kezdeti teljes vastagsága megközelítőleg 40 μm volt. Az így elkészített mintát a hideghengerlés céljából a Si hordozóról eltávolították és $10 \times 25 \text{ mm}^2$ területű darabot készítettek belőle. A vékonyréteget ezután két rozsdamentes acéllap közé helyezték, melyek vastagsága 200 μm volt, majd elhengereltük az egymásra helyezett lapokat egy 38 mm átmérőjű dupla-henger segítségével. A hengerlés után, mivel a kivágott vékonyréteg lemez szélessége számottevően nem változott a vékonyréteg vastagságának redukciója a hosszmenti dimenzió változásából számítható. Megjegyzendő, hogy a hideghengerlés során csak az egyik hossz-dimenzió mentén történt deformáció, így az alakítás tisztán sík-feszültségű deformációval történt. Végeredményként a vékonyréteg 50%-os mértékben redukálódott.

A deformált állapot mikroszerkezeti karakterizációja, korábbi tanulmányok részeként, transzmissziós elektron mikroszkópos felvételeken nyomonkövethető, ahol az ikerhatárok átlagos távolságára, a kiindulási állapotban, 5 nm adódott. A TEM felvételeken jól látható, miszerint az ikerhatárok orientációja, azaz az ikerhatárok síkjai az $\{111\}$ krisztallográfiai síkokkal párhuzamosak. Az $\{111\}$ síkok normálisa párhuzamos a vékonyréteg növesztési

irányával, azaz az $\{111\}$ síkok párhuzamosak a minta felületével [Zhang et al., 2004, 2006].

3.3.3. Röntgen diffrakciós mérések

A méréseket nagyfelbontású, két-kristályos röntgen diffrakrométeren végeztem, ahol a karakterisztikus $\text{Cu K}\alpha_1$ biztosította a mintára eső nyalábot [Balogh et al., 2006]. A mérések során detektálható instrumentális szélesedés elhanyagolható a fizikai, profilt-szélesítő hatás mértékéhez képest, így annak figyelembe vételétől eltekintettem. A diffraktált nyalábot a mintától számított 196 mm sugarú körív mentén elhelyezett IP-ken detektáltam, melynek lineáris felbontása 50 μm . Az egymás mellé elhelyezett *imaging plate*-k $2\theta = 25^\circ$ és 145° közötti diffrakciós szögartományt biztosítottak.

A vizsgált Cu vékonyrétegek kiindulási állapotban éles $\langle 111 \rangle$ rost textúrával jellemezhetők, mely párhuzamos a minta felületének normálisával [Anderoglu et al., 2010]. Az $\langle 111 \rangle$ textúra komponensű oszlopos szerkezet másik jellemzője, hogy az $\langle 111 \rangle$ irányú tengely körül véletlenszerűen adódnak a további krisztallográfiai irányok, azaz a laterális irányban textúramentes szerkezettel találkozunk. Az ikerhatárok szigorúan az $\langle 111 \rangle$ szoros illeszkedésű síkok mentén helyezkednek el [Anderoglu et al., 2010]. Az ilyen adottságú vékonyrétegek mikroszerkezetének karakterizációja az említett kiindulási állapotot, és egy 50%-os mértékű, hengerlés utáni állapotot reprezentál. A két minta, két különböző transzmissziós geometriában lett mérve. A kiindulási állapotban a két egymásra merőleges transzmissziós geometria, a forgás-szimmetriából következően ekvivalensnek tekinthető, bár a mérések megkülönböztetése végett az alábbiak szerint jelölöm az irányokat: g_{tr1} és g_{tr2} . A hengerelt minta esetén a két irány már nem ekvivalens, így a két irány megkülönböztetése szükséges. A hengerlés irányával megegyező, illetve az arra merőleges irányt a következőképpen adom meg: g_{HD} és g_{TD} . A mérési geometriáknál megadott, a mintához rögzített vonazkoztatási rendszerben g_{tr1} a g_{HD} iránnyal, míg g_{tr2} a g_{TD} iránnyal párhuzamos helyzetűek.

3.3.4. Röntgen diffrakciós spektrumok kiértékelése

3.3.4.1. A mérethatás- és deformációs vonalprofilok kiértékelése

A mikroszerkezeti paraméterek számszerűsítését a 2.2.2. fejezetben bemutatott konvolúciós teljes profil-illesztéssel (eCMWP) végeztem. Az elméleti profilokat a mért intenzitás-eloszlásokkal összehasonlítva a „méret”, a „diszlokációk” és a „síkhibák” okozta vonalprofilok fizikai paramétereire kaphatók számszerű adatok. Így a következő fizikai paraméterekkel jellemzem a vékonyrétegek mikroszerkezetét: (a) 2.1.1. fejezetben leírt, lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényének m mediánja és σ varianciája, illetve az abból származtatott $\langle x \rangle_{\text{area}}$ (b) a 2.1.2. fejezetben ismertetett diszlokáció sűrűség (ρ), diszlokáció kontraszt faktor, (C) és diszlokációk elrendeződési paramétere (M), illetve (c) a 2.1.3.2. fejezetben ismertetett és a (27) és (28) egyenletek szerint meghatározható ikerhatárok (β) sűrűségével, amit a 3.3.4.2. fejezetben részletezek.

A koherensen szóró tartományok mérete, a transzmissziós geometria következtében, többnyire a mintát jellemző laterális irányú méretet tükrözik, az ikerhatárok sűrűségére adott, β , százalékos mérték, az ikresedő síkok mennyiségére vonatkozik az ikresedő síkra merőleges $\langle 111 \rangle$ irányban.

A kristályrács deformációját diszlokációk jelenlétével magyarázom. A diszlokációk okozta vonal-szélesedés nagymértékben hkl -függő mennyiség, mely mértékének részleteire a 2.1.2. fejezetben tértem ki. Ennek a deformációs anizotrópiának a figyelembevétele a hkl -függő diszlokáció kontraszt faktorokon keresztül történik. A mérési geometria során a diffrakciós spektrumok reflexiói az adott textúra komponens krisztallit sokaságát jellemzik. A transzmissziós geometria- és a hengerszimmetrikus oszlopos struktúra következtében a diszlokáció kontraszt faktorai a (8) egyenletben megadott formulával közelíthetőek. Ebben az esetben az individuális kontraszt faktorok átlagolása a hkl , Miller-indexek permutációira történik.

Reflexiók geometriában az $\langle 111 \rangle$ textúra komponenshez tartozó krisztallit sokaság megfelelő krisztallográfiai síkjainak diffrakciós helyzetei, nagy pontossággal, nehezen voltak elérhetőek, míg a transzmissziós geometria esetén, pl.: $g_{\text{tr}1}$ és $g_{\text{tr}2}$, vagy g_{HD} és g_{TD} diffrakciós vektorok megvalósítható mérési elrendezést biztosítottak. A kivitelezhetőség nagymértékben a vékonyréteg „fólia” jellegéhez köthető. Így a transzmissziós geometriában történt mérések kiértékelésekor a fent említett átlagos kontraszt faktorok, \bar{C} , használata tette lehetővé a

diffrakciós spektrumok kiértékelését. Az átlagos kontraszt faktorok ismeretében, a (7) egyenletben megadott $\langle e^2 \rangle$ mennyiségen keresztül, mind a diszlokáció sűrűség, mind a diszlokációk elrendeződési paramétere, (M), is meghatározható volt.

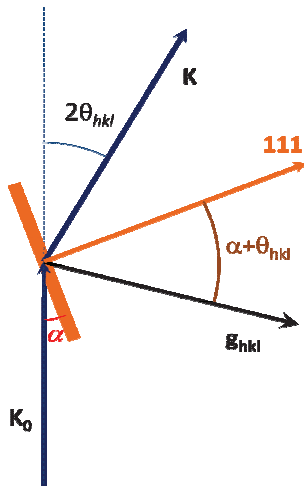
3.3.4.2. Ikerhatárok vonalprofiljainak kiértékelése

A ikerhatárok sűrűségének vizsgálata azon a felismerésen alapszik, miszerint a diffrakciós profilok szélesedése a (19), (20), (21) és (27) egyenleteken keresztül függ az ikresedő sík hkl indexétől illetve a vizsgált alreflexió Miller-indexétől. Az elmélet alapján látható, hogy az ikresedett kristály különböző diffrakciós profiljai több al-profilból tevődnek össze attól függően, hogy hány al-reflexió szerepel az adott reflexióban. Azokban az esetekben, ahol a kristály alreflexiói egybeesnek az ikerkristály alreflexióival, az ikresedés nem lesz hatással az alreflexióra, profilfüggvénye Dirac-delta jellegű függvénnyel jellemezhető. Ez éppen az az eset mikor $h + k + l = 3N$. A többi esetben a (19), (20), (21) egyenletek alapján megadható szimmetrikus és aszimmetrikus Lorentz-függvények összege adja a kívánt elméleti profilt. Így végül a mérhető hkl reflexiók teljes profilalakját úgy kapjuk, hogy súlyozottan adjuk össze az adott reflexióhoz tartozó összes alreflexió hatását, ahol a súlyozást az adott alreflexió-típus multiplicitása határozza meg. Ez a profil-függvény végül csak az ikerhatár sűrűségének lesz a függvénye. Az elméleti profilfüggvények (27) egyenletben meghatározott szélesítő hatását minden reflexió, összes al-reflexiójának figyelembevételével egy, az eCMWP programba beépített paraméter-mátrix segítségével vesszük figyelembe [<http://metal.elte.hu/~levente/stacking>]. A teljes elméleti profilfüggvényt végül a méret, a deformáció és az ikresedés hatását képviselő elméleti intenzitás-eloszlások konvolúciójaként kapjuk.

A paraméter-mátrix lehetőséget ad arra, hogy olyan esetekben, mikor csak bizonyos irányú ikresedő síkok vannak jelen, illetve csak bizonyos al-reflexiók hozhatók diffrakciós helyzetbe, a specifikáció végrehajtható legyen. A táblázat módosításának háttéréről a következő paragrafusban szövegek [Csiszár et al., 2011b].

Alapesetben a megadott táblázat olyan mikroszerkezeti leírást biztosít, ahol véletlenszerű orientációval rendelkező kristallit sokaság jellemzi az anyagot [Balogh et al., 2006]. Mivel esetünkben éles $\langle 111 \rangle$ textúrával rendelkezik a kiindulási struktúra illetve a hengerlés hatására bár gyengül, de jól karakterizálható marad a kiindulási textúra iránya, a mérési elrendezésből következően a különböző elméleti profilfüggvények relatív

súlyeloszlásának módosítására van szükség. A mérés során használt elrendezést a 27. ábrán mutatom be [Csiszár et al., 2011b].



27. ábra

A mérési elrendezés transzmissziós geometriája. Narancssárga téglalap szemlélteti a vizsálandó mintát, K_0 és K vektorok a beeső és reflektált nyalábot, α a minta és a beeső nyaláb közötti szöget jelenti, míg a $\langle 111 \rangle$ kristallográfiai irány a textúra komponens orientációját illetve g_{hkl} a diffrakciós vektor irányát jelölik. A textúra miatt az $\langle 111 \rangle$ irány mindig merőleges a minta felületére, ebből következően a g_{hkl} diffrakciós vektor és az $\langle 111 \rangle$ irány közötti szög $\alpha + \theta_{hkl}$.

A 27. ábrán látható elrendezésben K_0 és K vektorok a beeső és reflektált nyalábot, $2\theta_{hkl}$ az elhajlási maximumokhoz tartozó szöget, míg α a minta és a beeső nyaláb közötti szöget jelenti. A $\langle 111 \rangle$ kristallográfiai irány a textúra komponens orientációját illetve g_{hkl} a diffrakciós vektor irányát jelölik. A textúra miatt az $\langle 111 \rangle$ irány mindig merőleges a minta felületére, ebből következően a g_{hkl} diffrakciós vektor és az $\langle 111 \rangle$ irány közötti szög $\alpha + \theta_{hkl}$. A mintában található ikerhatárok többé-kevésbé párhuzamosak a minta felületével. A minta

mérés közben körülbelül +/- 8 fokos tartományban lengetve volt, hiszen ilyen mérési elrendezésben kapható a legtöbb diffraktáló al-sík.

A g_{hkl} diffrakciós vektor a laborrendszerben rögzített, csak a beeső nyaláb és a hkl indexek függvénye. Ahhoz, hogy egy adott (hkl) reflexió esetén detektálható diffraktált nyaláb legyen az szükséges, hogy létezzenek az anyagban olyan kristallitok, amiknek legalább egy hkl -jellegű síkserege merőleges a diffrakciós vektorra.

A minta textúrája miatt mindegyik kristallit úgy áll, hogy az $\langle 111 \rangle$ síkjának normálvektora egy adott irányba mutat a laborrendszerben. Azonban e vektor körül a kristallitok tetszőleges módon elfordulhatnak.

Legyen φ_{hkl} egy adott hkl előjeles indexű síksereg normálvektorának az $\langle 111 \rangle$ iránnyal bezárt szöge. A textúra miatt az anyagban csak olyan kristallitok vannak, amiknek a hkl síkseregének normálvektora φ_{hkl} szöveget zár be az $\langle 111 \rangle$ iránnyal és e normálvektorok az $\langle 111 \rangle$ körül egy kúpot írnak le. A hkl előjeles indexű síksereg csak akkor fog hozzájárulni a (hkl) diffrakciós reflexióhoz, ha a g_{hkl} diffrakciós vektornak az $\langle 111 \rangle$ iránnyal bezárt szöge egyenlő a φ_{hkl} szöggel. Vagyis egy adott hkl alreflexió akkor mérhető a fenti geometriában és az adott textúra esetén, ha $\varphi_{hkl} = \alpha + \theta_{hkl}$.

A lengetés hatását és a textúrának a nem matematikai egzaktóságát az $\alpha \in (20, 40)$ fokú intervallummal vettem figyelembe. Így annak feltétele, hogy egy adott hkl al-reflexió megjelenjen a diffrakció során, a következő feltételt teljesítenie kell:

$$20^\circ + \theta_{hkl} < \varphi_{hkl} < 40^\circ + \theta_{hkl} \quad (49)$$

A mért (hkl) reflexiók összes lehetséges hkl alreflexiójához tartozó φ_{hkl} szög kiszámolható, így azokat az al-reflexiókat vettem figyelembe a továbbiakban, amelyek teljesítették a (49) egyenlőtlenségeket. Így módon egy adott mért (hkl) reflexió esetén megváltoztak az al-reflexiókat képviselő al-profilok relatív súlyeloszlása.

Lapcentrált köbös struktúrák esetén egy pordiffrakciós profil egy delta- és három különböző Lorentz-függvény súlyozott összege. Az al-profilok jellege a (931) reflexió után, kiegészül egy negyedik Lorentz-típusú függvénnyel, azonban erre a mérési feltételeink mellett nem volt szükség. A relatív súlyeloszlás véletlenszerű orientációjú kristallit sokaság és az $\langle 111 \rangle$ irányú textúra esetén, a mérés elrendezést is figyelembe vevő változását a 12. táblázat tartalmazza [Csiszár et al., 2011b].

Reflexió	δ - függvény Rand/Text	Al-refl. #1 típus [L. Balogh et al., 2006] Rand/Text	Al-refl. #2 típus [L. Balogh et al., 2006] Rand/Text	Al-refl. #3 típus [L. Balogh et al., 2006] Rand/Text
(111)	0.25/0.3	0.75/0.7	0/0	0/0
(200)	0/0	1/1	0/0	0/0
(220)	0.5/0.5	0.5/0.5	0/0	0/0
(311)	0.5/0.666	0.25/0.333	0.25/0	0/0
(222)	0.25/0	0.75/1	0/0	0/0
(400)	0/1	1/0	0/0	0/0
(331)	0/0	0.25/0	0.5/1	0.25/0
(420)	0.5/0	0.5/1	0/0	0/0

12. táblázat

Relatív súlyeloszlás az ikresedett $\langle 111 \rangle$ síkok hatására kialakuló al-profilok között, melyek hozzájárulnak a teljes elméleti vonalprofil kialakításához. δ -jellegű profilfüggvény $h+k+l=3n$ ($n \in \mathbb{Z}$) esetén jelzi, hogy az adott reflexióra nincs hatással az ikresedés jelensége, míg a többi esetben, mikor $h+k+l \neq 3n$, a megfelelő Lorentz-típusú profilfüggvényekkel jellemzhető az ikresedés hatása. *Rand/Text* kívánja megkülönböztetni azt a két esetet, mikor textúra mentes, véletlenszerű orientációjú kristallit sokaság, illetve az $\langle 111 \rangle$ textúrával rendelkező struktúrát vizsgálom.

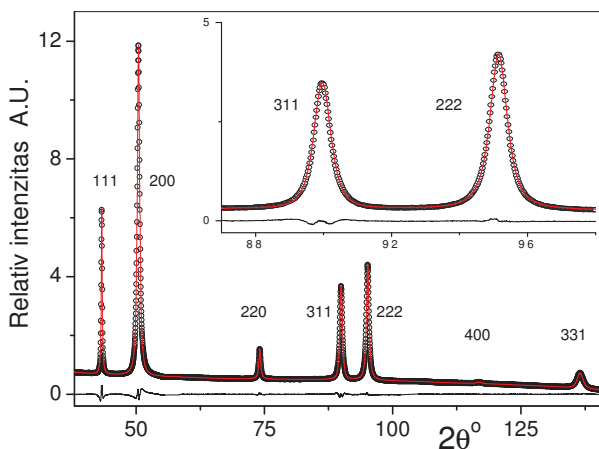
A 12. táblázatban az (111) és (420) reflexiók közötti összes *fcc* elhajlási maximumra feltüntettem az al-profilokat jellemző δ -jellegű profilfüggvény és Lorentz-típusú profilfüggvények relatív súlyeloszlását mind textúra mentes, mind az $\langle 111 \rangle$ textúra komponens esetén.

A mért profilok kiértékelésekor a kiindulási állapotot jellemző diffrakciós spektrum csak a módosított relatív súlyeloszlással volt karakterizálható, míg a deformált állapotú minta, mérési hibán belül, mind a módosított, mind a random orientációhoz tartozó relatív súlyeloszlással is kiértékelhető volt. Ez a jelenség azzal a ténnyel magyarázható, miszerint a kezdeti $\langle 111 \rangle$ éles textúra jelentősen gyengült, ahogy azt hasonló minták, korábbi kiértékelései is alátámasztják [Anderoglu et al., 2010].

3.3.5. Eredmények

3.3.5.1. Kvalitatív eredmények

A mért diffrakciós spektrumok tipikus példáját láthatjuk a 28. ábrán, ahol fekete kör-alakú szimbólumok jelzik a mért intenzitás-eloszlást, míg a piros, folytonos vonallal mutatom be az elméleti profilfüggvények illesztésének jóságát. Az ábrán található kinagyított rész jól mutatja az illesztett, számolt elméleti profilok helyességét [Csiszár et al., 2011b].

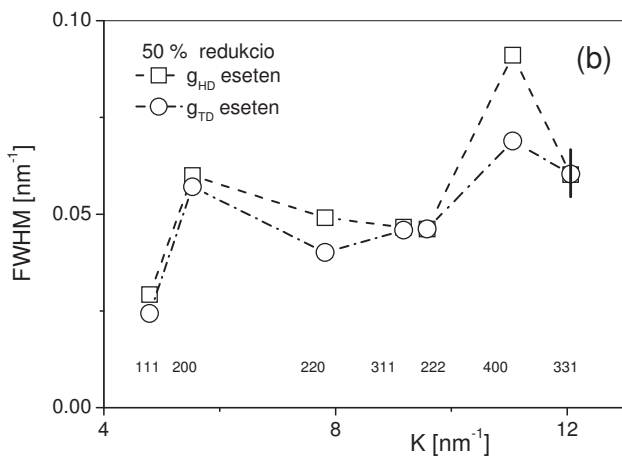
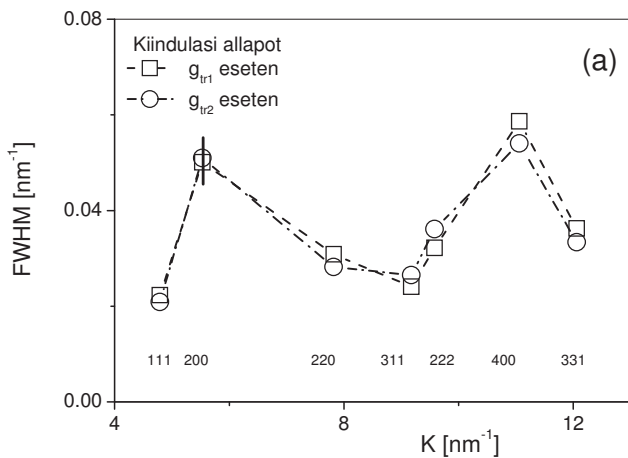


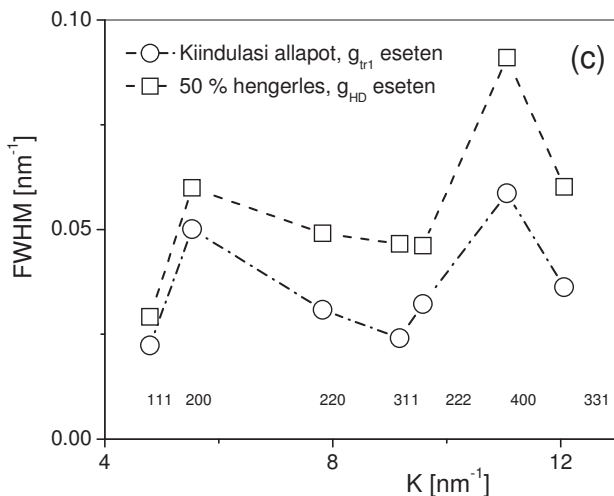
28. ábra

Mért diffrakciós spektrum a hideghengerléssel deformált Cu vékonyréteg esetén. Fekete kör-alakú szimbólumok jelzik a mért intenzitás-eloszlást, míg a piros, folytonos vonal az illesztett elméleti teljes profilfüggvényt illusztrálja. A diffrakciós spektrum a hengerlés irányával megegyező transzmissziós geometriában detektált elhajlási maximumokat reprezentálják. Az ábra alsó részében a mért és az illesztett intenzitás-eloszlás különbségét láthatjuk.

A mért vonalprofilok kvalitatív mikroszerkezeti jellegét a jól ismert Williamson-Hall (WH) ábrákon keresztül szemléltethetjük legjobban. A mérések során meghatározható reflexiók félérték-szélességeit (FWHM), minden egyes mérési geometria tekintetében a 29a-c. ábrán

mutatom be, ahol az FWHM értékek $K=2\sin\theta/\lambda$ függvényében ábrázolom [Csiszár et al., 2011b].





29. ábra

Williamson-Hall ábrák a diffrakciós profilok kvalitatív jellemzésére mindkét transzmissziós geometriában (a) a kiindulási állapot illetve (b) a hengerelt állapot karakterizációjához. (c) ábrán a kiindulási és a deformált állapotra vonatkozó, „*trI*” jelöléssel illetett transzmissziós geometriában mért spektrumok profiljait hasonlítom össze. Az (a) és (b) ábrákon feltüntetett függőleges szakaszok a mérésből eredő hiba mértékét jelzik.

A 29a. ábrán bemutatott félérték-szélességeket $K=2\sin\theta/\lambda$ függvényében ábrázoltam, ahol a mért eredmények a kiindulási állapotot jellemzik, 2θ elhajlási maximumok és λ karakterisztikus hullámhossz szerint. Az ábrán jelentős deformációs anizotrópia mutatkozik, azonban az anizotrópia jellege eltér a szokványos, diszlokációkat tartalmazó réz mikroszerkezetét jellemző képtől [Ungár et al., 1996]. Diszlokációk jelenlétében ugyanis a 311 reflexió szélesedése, ikresedés nélkül, nagyobb mértékű, mint a 220 vagy 222 reflexióknál tapasztalható mérték. Esetünkben éppen ennek az ellenkezőjét tapasztaltam, mely az ikresedő kristályok vonalszélesítő hatásáról árulkodik. A szélesedés mértéke a 12. táblázatban megadott módosított értékekkel egyező tendenciát mutat. Ugyanis a 311 reflexió

esetén, ikresedett kristályok jelenlétében, a δ -jellegű- és az #1 típusú profilfüggvények hozzájárulása növekszik, míg a #2 típusú profilfüggvény hozzájárulása kinullázódik. A változás mértékét az is befolyásolja, hogy az #1 típusú profilfüggvény szélesítő hatása kisebb mértékű, mint #2 típusú profilfüggvény hozzájárulása a félérték-szélesség kialakításában.

Másrészt a 222 reflexióhoz tartozó FWHM érték, kis mértékben, de nagyobb az 111 reflexióhoz tartozó értékhez képest, melyből arra következtethetünk, hogy a mintát jellemző diszlokáció sűrűség nem túl nagy mértékű. Mind az ikerhatárok nullától különböző mértékére, mind a diszlokáció sűrűség kvalitatíven jellemezhető voltára vonatkozóan hasonló jellegű mértéket határoztam meg mikor a mintát jellemző fizikai paraméterek számszerűsítését végeztem. Erről részletesebben a 3.3.5.2. fejezetben szólok.

A 29b. ábrán bemutatott kvalitatív jelleg, a szobahőmérsékleten hengerelt minta mikroszerkezetét jellemzi. Az ábrán látható félérték-szélességek mindkét transzmissziós geometriát jellemzik. A deformált állapotot jellemző szélességek $K=2\sin\theta/\lambda$ függvényében nagyobb mértékű növekedést mutatnak, mint a kiindulási állapotban. A 311 reflexió szélesedése nagyobb mértékű, mint a kiindulási állapotban tapasztalt, míg a 222 reflexiónál mérhető félérték-szélesség jóval nagyobb mértékű, mint az 111 reflexióhoz tartozó FWHM érték. Ez a kvalitatív jelleg két okra vezethető vissza: (a) az ikerhatárok gyakorisága kismértékben, de csökkent, míg (b) a diszlokáció sűrűség jelentősen megnőtt a deformáció hatására. A kvalitatív különbséget a deformált- és a deformálatlan állapotok között a 29c. ábrán illusztrálom.

3.3.5.2. Kvantitatív eredmények

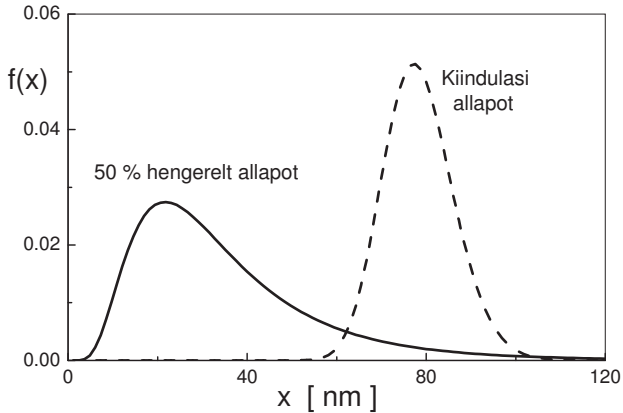
A minta deformálatlan és hideghengerlés hatására kialakult deformált állapotát jellemző fizikai paramétereket a 13. táblázatban adom meg [Csizsár et al., 2011b]. A kvantitatív jellemzés értékeit a konvolúciós teljes profil-illesztés módszerével kaptam. A 13. táblázatban felsorolt fizikai paraméterek: m és σ_{ig} a lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényének paraméterei, $\langle x \rangle_{area}$, m és σ_{ig} értékeiből kapható, felülettel súlyozott szemcseátmérők átlaga, ρ a diszlokáció sűrűség, M a diszlokáció elrendeződési paraméter, β az ikerhatárok sűrűsége és d_{iker} az ikerhatárok átlagos távolsága.

Minta	m [nm]	σ_{lg}	$\langle x \rangle_{area}$ [nm]	ρ [$10^{14} m^{-2}$]	M	β [%]	d_{iker} [nm]
kiindulási állapot g_{tr1}	66	0.18	72 (± 10)	3.8 (± 0.6)	4.4 (± 0.5)	3.6 (± 0.5)	6 (± 0.6)
kiindulási állapot g_{tr2}	78	0.1	80 (± 10)	5.1 (± 0.6)	4.4 (± 0.5)	4.1 (± 0.5)	5 (± 0.5)
hengerelt állapot g_{HD}	21	0.57	47 (± 8)	28 (± 2)	1.7 (± 0.3)	2.9 (± 0.5)	7 (± 0.7)
hengerelt állapot g_{TD}	30	0.57	68 (± 8)	26 (± 2)	1.7 (± 0.3)	3.3 (± 0.5)	6 (± 0.6)

13. táblázat

Deformálatlan és deformált állapotok mikroszerkezetét jellemző fizikai paramétereket. m és σ_{lg} a lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényének paraméterei, $\langle x \rangle_{area}$, m és σ_{lg} értékeiből kapható, felülettel súlyozott szemcseátmérők átlaga, ρ a diszlokáció sűrűség, M a diszlokáció elrendeződési paramétere, β az ikerhatárok sűrűsége és d_{iker} az ikerhatárok átlagos távolsága. g_{tr1} és g_{tr2} illetve g_{HD} és g_{TD} jelölik az egymásra merőleges helyzetű, transzmissziós mérési geometriát. A zárójelben megadott értékek a mennyiségekhez tartozó hibahatárt képviselik.

A deformálatlan állapot mikroszerkezetét nem túl magas diszlokáció sűrűség jellemzi, míg az ikerhatárok sűrűsége számottevő. Hideghengerlés hatására a diszlokáció sűrűség 5-7-szeresére növekszik, míg az ikerhatárok gyakorisága körülbelül 20-25%-kal csökken. A szub-szemcse méretét jellemző lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvénye a két állapotban jelentősen különbözik egymástól. A sűrűségfüggvény mediánja csökken miközben a variációjára a deformáció következtében növekszik ezzel azt sugallva, hogy a szemcseméret-eloszlás szélesebb sűrűségfüggvénnyel jellemezhető csak. A két állapotot jellemző $f(x)$, lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvényét a 30. ábrán illusztrálom [Csizsar et al., 2011b].



30. ábra

A koherensen szóró tartományokat jellemző $f(x)$, lognormális szemcseméret-eloszlás sűrűségfüggvénye mind a deformálatlan állapotban (szaggatott vonal), mind a hengerlés következtében kialakult mikroszerkezet jellemzésére (folytonos vonal).

Korábbi munkák TEM felvételei [Anderoglu et al., 2010] azt mutatják, hogy a hideghengerlés hatására az oszlopos szerkezetet meghatározó oszlopok szélessége, azaz a laterális átmérők, 3-szorosára növekednek. A 13. táblázatból kiolvasható koherensen szóró tartományok, $\langle x \rangle_{\text{area}}$, tendenciája ezzel ellentétben a tartományok átlagos méretének csökkenéséről szólnak. A szubszemcsék átlagos mérete 30%-kal csökken a hengerlés következtében. Eközben a hengerlés hatására a diszlokáció sűrűség 5-7-szeresére növekszik. A korábbi TEM felvételeken tapasztalható oszlop-szélesedés és a vonalprofil analízis folytán kapott szub-szemcse méret csökkenés, a diszlokáció sűrűség párhuzamos növekedésével ön-konzisztens képet tükröz a hideghengerlés hatására bekövetkezett mikroszerkezeti evolúcióra vonatkozóan. Ugyanis a deformáció során felszaporodott diszlokációk a növekvő oszlopszélesség mellett, csak kisebb szubszemcsékben, illetve a szemcsék határain tudnak, ilyen mértékben, felhalmozódni.

A deformálatlan állapotot jellemző diszlokáció sűrűségek a ρ_{tr1} és ρ_{tr2} diffrakciós feltételek mellett rendre $3.8 (\pm 0.6)$ és $5.1 (\pm 0.6) [10^{14} \text{ m}^{-2}]$. A két érték mérési hibahatáron túl különbözik egymástól, annak ellenére, hogy a kiindulási állapotban a két mérési geometria, az oszlopos struktúra és hengerszimmetria miatt jelentősen nem térhetne el egymástól. A két mérési geometria ennek ellenére más és más diszlokáció szerkezetet mutat, melynek egy lehetsége oka, hogy a mérés során a megvilágított térfogatok egzaktul nem egyeztek meg. Ebből következően egy kisebb mértékű fluktuáció akár a Burgers vektor populációban illetve a diszlokáció sűrűségben okozhatja a kapott eltérést (a nyaláb keresztmetszete a minta felületén $0.2 \times 2 \text{ mm}^2$) [Csiszár et al., 2012a]. Ennek mértékét nem tartalmazza a diszlokáció sűrűség mérési hibája, az adott hibataromány a fizikai paraméter mérési pontosságát jelöli. Az esetleges fluktuációk hatására szélesebb hibakorlát definiálható, így ha a hiba mértékét kb. $\pm 1 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ -re változtatjuk, akkor a két mérési geometria már hibahatáron belül, azonos mértékűnek tekinthető.

3.3.6. Diskusszió

Nano-ikresedett Cu vékonyrétegek mikrokeménységének vizsgálatai hasonló körülmények között előállított Cu fóliákon már történtek, ahol a vékonyréteg Vickers mikrokeménység mérésével találkozhatunk [Anderoglu et al., 2010]. Az nano-ikresedés jelenségével, a minta felületére merőleges, mélységi irányban készült TEM felvételeken keresztül más korábbi tanulmányok is foglalkoztak [Zhang et al., 2006; Anderoglu et al., 2008a, 2008b]. Síkmetszeti- illetve keresztmetszeti TEM felvételek [Anderoglu et al., 2008b] arról tesznek tanubizonyosságot, miszerint (a) az oszlopos szerkezetű szemcsék jelentősen deformáltak illetve (b) az ikresedő lammellák átlagos távolsága pár nm-től a pár tíz nm-es határig terjednek. Az ilyen jellegű mikroszerkezet alakítási keményedésének legfőbb mechanizmusát az ismert Hall-Petch összefüggés alapján határozták meg, ahol az ikerhatároknak tulajdonítják a diszlokációk szabad mozgásának legfőbb akadályait [Anderoglu et al., 2008b].

Ebben a korábbi tanulmányban [Anderoglu et al., 2008b] a Vickers mikrokeménység mérési pontjaira illesztett lineáris egyenes paramétereiből meghatározható a nano-ikresedett Cu vékonyréteg Hall-Petch állandója, $K = 0.063 \text{ MPa m}^{1/2}$, mely korábbi, mások által vizsgált ikresedett Cu fázis alakítási keményedésével, annak kísérleti eredményeivel is megegyezik [Shen et al., 2005].

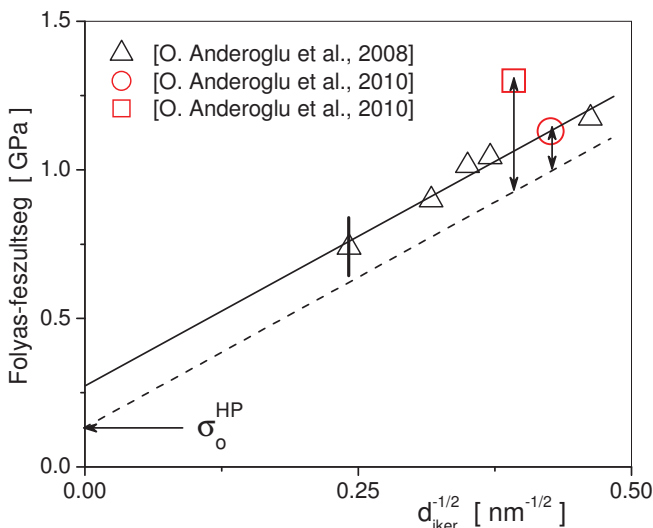
Hengerlés hatására a nano-ikresedett Cu vékonyréteg keményedik annak ellenére, hogy az ikerhatárok átlagos távolsága növekszik [Anderoglu et al., 2010]. Ez a jelenség arra enged következtetni, hogy az eddig feltételezett, egyetlen Hall-Petch összefüggés nem magyarázza kellő pontossággal az alakítási keményedés lehetséges teljes mechanizmusát. A vonalprofil analízis segítségével, a kapott mikroszerkezeti paramétereken keresztül, éppen annak igazolását próbálom megadni, miszerint a teljes mechanizmus más összefüggés alapján is karakterizálható [Csiszár et al., 2011b].

Ha az eddigi alkalmazott Hall-Petch mechanizmust kiegészítjük az ismert Taylor összefüggés alapján adható mechanizmussal, a folyás-feszültségre a következők írhatjuk [Csiszár et al., 2011b; Kamikawa et al., 2009; Tao et al., 2009]:

$$\sigma = \sigma_0 + \alpha\mu M_T b \sqrt{\rho} + \frac{K}{\sqrt{d_{iker}}}, \quad (50)$$

ahol σ a folyás-feszültség, σ_0 a rugalmas tartomány határa, α egy 0 és 1 közötti konstans, μ a nyírási modulus, b a Burgers vektor és M_T a textúrát figyelembe vevő Taylor faktor. Ez az összetett mechanizmus arra a feltételezésre épül, miszerint az alakítási keményedésért mind az ikerhatárok, mind a diszlokációk felelősek [Csiszár et al., 2011b].

A fejezet első paragrafusában említett tanulmányból megadható a deformálatlan és a hengerelt állapotra vonatkozó $\sigma_{kiind} = 1.13 (\pm 0.03)$ GPa és $\sigma_{RT,heng} = 1.3 (\pm 0.05)$ GPa értékek [Anderoglu et al., 2010]. Korábbi tanulmányok és a jelen tanulmány alapján [Anderoglu et al., 2008b, 2010; Csiszár et al., 2011b] így mind az ikerhatárok mikrokeménységre tett hatása, mind a diszlokációk jelenléte, mind a hengerlés mikroszerkezetet befolyásoló tényezője együtt ábrázolható az ikerhatárok sűrűségének függvényében, melyet a 31. ábrán mutatok be [Csiszár et al., 2011b].



31. ábra

A nano-ikresedett Cu vékonyréteg folyás-feszültség értékei $d_{iker}^{-1/2}$ függvényében, ahol d_{iker} az ikerhatárok átlagos távolsága. A fekete háromszög szimbólumok korábbi tanulmányok eredményei [Anderoglu et al., 2008b]. Az adatokra illesztett lineáris egyenes paraméteréből nyerhető a Hall-Petch konstans értéke. A piros kör és négyszög szimbólumokkal jelölt folyás-feszültség értékek is korábbi tanulmányok eredményeit tükrözik [Anderoglu et al., 2010]. Ehhez a két feszültség értékhez tartozó d_{iker} átlagos ikerhatár távolságok a jelen karakterizáció eredményei. Dupla-nyilakkal a diszlokációk okozta keményedés mértéke. A szaggatott vonal, a pár nanométeres távolságban elhelyezkedő ikerhatárok következtében kialakult keményedést illusztrálja. A szaggatott vonal $(d_{iker})^{-1/2} = 0$ helyen kimetszett σ_0^{HP} értéke a valódi rugalmas tartomány határát jelenti.

A fekete háromszög szimbólumok korábbi tanulmányok eredményeit tükrözik [Anderoglu et al., 2008b]. Az adatokra illeszthető lineáris egyenes paraméteréből nyerhető a $K = 0.063 \text{ MPa m}^{1/2}$ Hall-Petch konstans értéke. A piros kör és négyszög szimbólumokkal jelölt folyás-feszültség értékek is korábbi tanulmányok eredményeit tükrözik [Anderoglu et al., 2010], míg

az ezekhez tartozó d_{iker} átlagos ikerhatár távolságok már a jelen karakterizáció eredményei. Jól látható, miszerint a $\sigma_{kiind} = 1.13 (\pm 0.03)$ GPa érték tökéletesen beleillik a korábban kapott eredmények trendjébe [Anderoglu et al., 2010]. A piros négyszög szimbólummal jelölt folyásfeszültség érték, $\sigma_{RT,heng}$, viszont jelentősen eltér a kiindulási mértéktől.

A 13. táblázat szerint, az alkalmazott vonalprofil analízis alapján, a minta deformálatlan állapotában a diszlokáció sűrűség $\rho = 4.5 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ mértéket, míg az ikerhatárok átlagos távolsága $d_{iker} = 5.5$ nm-t mutat. Hengerlés hatására a diszlokáció sűrűség kb. 5-7 szeresére, $\rho = 27 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$, növekszik, míg d_{iker} mértéke 20 %-os növekedést mutat, $d_{iker} = 6.5$ nm-es értékkel. A megnövekedett feszültség érték, az ikerhatár-távolságok növekedése mellett arra utal, miszerint a diszlokációk döntő szerepet játszanak a mikroszerkezet kialakításában. A vonalprofil analízis emellett arra is választ ad, hogy a kiindulási állapotot *nem* nulla-mértékű diszlokáció sűrűség jellemez. Ennek mértékét a 31. ábra piros, kör-alakú szimbólumánál található dupla-nyíl jelképez. Ebből arra következtethetünk, hogy az alakítási keményedésért nem csupán az ikresedés jelensége a felelős. A feszültség teljes mértékét az ikresedés és a diszlokációk *együttes* jelenléte alakítja ki [Csiszár et al., 2011b]. Ha azzal a feltételezéssel élünk, miszerint a különböző iker-lammella távolsággal rendelkező, kiindulási mikroszerkezetet közel azonos mértékű diszlokáció sűrűség jellemez, akkor pusztán az ikresedés által okozott alakítási keményedés trendjét a 31. ábrán feltüntetett szaggatott vonallal adhatjuk meg. A szaggatott vonal $(d_{iker})^{-1/2} = 0$ helyen kimetszett σ_0^{HP} értéke a valódi rugalmas tartomány határát jelenti.

Az (50) egyenlet és a vonalprofil analízis által kapott fizikai paraméterek közreműködésével kiszámolható, adott α érték mellett, mind a kiindulási feszültségérték, $\sigma_{kiind}^{számolt}$, mind a hengerelt állapotot jellemző mérték is, $\sigma_{heng}^{számolt}$. A kiindulási állapotot éles $\langle 111 \rangle$ irányú textúra jellemez, melynek erőssége 3.76 m.r.d. (multiple of random distribution) [Anderoglu et al., 2010]. A hengerlés hatására a textúra élessége tompul, melynek élessége 1.89 m.r.d. körül alakul [Anderoglu et al., 2010]. A textúra komponens erősségét figyelembe vevő önkonzisztens kristály-plaszticitás modell [Clausen et al., 1998] alapján kiszámíthatóak a mikroszerkezeti állapotot jellemző Taylor faktorok, így kapjuk $M_{T-kiindulási} = 3.5$ és $M_{T-hengerelt} = 3.2$.

Tehát $\sigma_0 = 0.14 (\pm 0.02)$ GPa ($= \sigma_0^{HP}$), $M_{T-kiindulási} = 3.5$ és $M_{T-hengerelt} = 3.2$ Taylor faktorok textúra-függő értékei mellett, $\mu = 48$ GPa, $b = 0.255$ nm és $\alpha = 0.13$ választásakor a számolt feszültségértékek a következők: $\sigma_{kiind}^{számolt} = 1.14$ GPa és $\sigma_{heng}^{számolt} = 1.28$ GPa [Csiszár

et al., 2011b], melyek szinte egyezést mutatnak a korábbi $\sigma_{kiind} = 1.13 (\pm 0.03)$ GPa és $\sigma_{RT,heng} = 1.3 (\pm 0.05)$ GPa mért értékekkel [Anderoglu et al., 2010].

A számolt feszültségértékek alacsony, $\alpha = 0.13$ érték mellett biztosítják a mért és számolt feszültségértékek közelségét. Ez az alacsony α érték a diszlokációk speciális térbeli elrendeződését karakterizálja. A mikroszerkezetet a diszlokációk szoros dipól-jellegű konfigurációja jellemzi [Taylor, 1934]. A megnövekedett dipól-jelleg jelensége, a vonalprofil analízisen keresztül is karakterizálható. A 13. táblázatban szereplő diszlokáció elrendeződési paraméter, $M=R_c\sqrt{\rho}$, értékei hordozzák a dipól-jelleg mértékének leírását. A kiindulási állapot $M_{kiind} = 4.4 (\pm 0.5)$, míg a hengerelt állapot $M_{heng} = 1.7 (\pm 0.3)$ értékkel jellemezhető. Az M értékének ilyen mértékű csökkenése arra utal, hogy a diszlokációk effektív, külső levágási sugara jóval gyorsabban csökken, mint ahogy azt egy véletlenszerű diszlokáció elrendeződés és hasonló mértékű diszlokáció sűrűség esetén várnánk. M értékének csökkenésével a diszlokációk deformációs terének kölcsönös leárményeköltsége erősödik [Wilkens, 1970b]. A kölcsönös leárményeköltség mértéke, növekvő diszlokáció sűrűség mellett, a dipól-jelleg növekedésével egyre jelentősebb. Ez a jelenség az ikerhatároknál felhalmozódott, nagyszámú diszlokációk jelenségével megegyező képet indikál, míg az erősödő dipól-karakter okozza a nano-ikresedett Cu vékonyrétegek viszonylagosan alacsony mértékű alakítási keményedését [Anderoglu et al., 2010; Csiszár et al., 2011b].

3.3.7. Konklúzió

Magnetron-porlasztással előállított, erősen texturált, nano-ikresedett Cu vékonyrétegek kiindulási- és hideghengerelt mikroszerkezetét vizsgáltam röntgen vonalprofil analízis módszerével. Az alkalmazott mérési geometria transzmissziós diffrakciós feltételnek tett eleget. A vonalprofil analízis során alapvetően a ikerhatár struktúra evolúciójára illetve a diszlokáció-szerkezet változásának leírására törekedtem. Az eddig ismert mikroszerkezeti leírást kiegészítettem a mikroszerkezeti paraméterek illetve azok változásának figyelembevételével. A diszlokáció sűrűség és ikerhatár struktúra változásának függvényében a vékonyréteg alakítási keményedését leíró mechanizmusával is foglalkoztam. A mikroszerkezetre vonatkozó fizikai képet a következő pontokban részletezem:

1) Hideghengerlés során, csak az egyik hossz-dimenzió mentén történik plasztikus deformáció, így az alakítás tisztán sík-feszültségű deformációval történik.

2) Az ikerhatárok gyakorisága kismértékben csökken, míg a diszlokáció sűrűség jelentősen megnő a deformáció hatására.

3) A plasztikus deformáció során az ikerhatárok gyakorisága 20-25%-os csökkenést mutat, mely a kiindulási állapotot jellemző 2-4 nm-es átlagos ikerhatár távolságot 5-6 nm-re növeli. A kiindulási ikerhatárok átlagos távolsága jó egyezést mutat korábbi TEM felvételeken tapasztalható iker-lamella vastagságokkal.

4) A hideghengerlés a diszlokáció sűrűség mértékét $\rho \cong 4.4 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ -ről $\rho \cong 3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ -re változtatja meg.

5) Eddigi ismereteink szerint a vékonyréteg alakítási keményedésének legfőbb mechanizmusát az ismert Hall-Petch összefüggés alapján határozták meg, ahol az ikerhatároknak tulajdonítják a diszlokációk szabad mozgásának legfőbb akadályait. A hengerlés hatására megnövekedett feszültség érték, és az ikerhatár-távolságok megnövekedése arra utal, hogy a diszlokációk döntő szerepet játszanak a mikroszerkezet kialakításában. Már a kiindulási állapotot *sem* nulla-mértékű diszlokáció sűrűség jellemez. A folyás-feszültség teljes mértékét az ikresedés és a diszlokációk *együttes* jelenléte alakítja ki.

6) A diszlokáció sűrűség és ikerhatárok gyakoriságának mértékei jó egyezést mutatnak a Hall-Petch és Taylor összefüggéseken keresztül leírható makroszkopikus feszültségekkel. A hideghengerlés során kialakult ikerhatár-struktúra a nano-ikresedés jelenségéből származó Hall-Petch típusú tagot csökkenti, míg a diszlokációk jelenségét magába foglaló Taylor tag növekedése az előbbi csökkenés mértékét meghaladja.

7) A Taylor összefüggésben található α konstans értékére $\alpha=0.13$ adódott. Ez az alacsony α érték a diszlokációk speciális térbeli elrendeződését jelzi. A mikroszerkezetet a diszlokációk szoros, *dipól-jellegű* konfigurációja jellemzi. A diszlokációk effektív, külső levágási sugara jóval gyorsabban csökken, mint ahogy azt egy véletlenszerű diszlokáció elrendeződés és hasonló mértékű diszlokáció sűrűség esetén várnánk. Ezzel az eredménnyel konzisztens kép, miszerint diszlokációs cella-struktúrák nem alakulnak ki hideghengerlés hatására, így a nagymértékű diszlokációk térbeli elhelyezkedése az ikerhatárok mentén alakul ki, melyek a diszlokációk szabad mozgásának legfőbb akadályai. A diszlokációk dipól-karakterének egyre erősödő jelenlétével magyarázható a nano-ikresedett Cu vékonyrétegek viszonylagosan *alacsony* mértékű alakítási keményedése.

Új tudományos eredmények

A jelen disszertáció kapcsán 3 különböző vékonyréteg struktúra mikroszerkezeti karakterizációjával foglalkoztam. A mikroszerkezeti leírás egyedi vonásaiból származó új tudományos eredményeket az alábbiakban foglalom össze.

I.

Ni fázisú, nanokristályos vékonyrétegek mikroszerkezeti karakterizációját végeztem el diszlokáció sűrűség, Burgers vektor analízis, koherensen szóró tartomány és ikerhatárok sűrűségének tekintetében. Különböző koncentrációjú additív hozzáadása és alkalmazott áramerősség segítségével $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ és $\langle 211 \rangle$ fő-textúra komponenssel rendelkező struktúrákat vizsgáltam. A kiértékelés a teljes konvolúciós profil illesztés módszerének (eCMWP) továbbfejlesztett változatával végeztem, ami lehetőséget adott a fő-textúrával, illetve az anyagban található mellék-textúra komponens kristallitjainak párhuzamos kiértékelésére.

1) Megmutattam, hogy a diszlokáció sűrűség mértéke széles tartományban jellemzi a különböző textúrájú kristallit sokaságokat. Ez az érték 0.5 és $23 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ közötti sűrűséget jelent, mely függ a kialakult textúra komponensről. A legmagasabb értéket az $\langle 111 \rangle$ fő-textúrájú és $\langle 511 \rangle$ mellék-textúrájú vékonyréteg növesztése során kaptam.

2) Megmutattam a mért profilok, diszlokációk okozta vonalprofil módosító hatásán keresztül, az individuális kontraszt faktorok használatával, hogy a vizsgált minták eltérő diszlokáció szerkezettel rendelkeznek. A mért illetve elméletileg meghatározott individuális kontraszt faktorok összehasonlításából nyertem a lehetséges diszlokációk közül azokat, melyek a leginkább igazodtak a mért jelleghez. Eredményként azt kaptam, miszerint az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúrájú mintákban nagymértékben a vékonyréteg felületével párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk helyezkednek el, míg a $\langle 211 \rangle$ textúra komponens esetén a Burgers vektor populáció véletlenszerűnek tekinthető.

3) Az egyesített Taylor és Hall-Petch összefüggések segítségével igazolni tudtam, hogy a mintákon mért Vickers keménység-mérési adatok erős korrelációban vannak a röntgen diffrakciós mérések és az azt követő vonalprofil analízisből származó mikroszerkezeti paraméterekkel. Mind a nano-skálájú szubszemcse populáció, mind az egyedi diszlokáció szerkezet és sűrűség befolyásolja a mikroszerkezet alakulását.

4) Megállapítottam, hogy a minták mikroszerkezeti paraméterei illetve az előállítási paraméterek között erős korreláció mutatkozik. A növesztési paraméterek függvényében a diszlokáció sűrűség mértékére széles intervallumot állapítottam meg. Abban az esetben, ahol a vékonyréteg növesztésekor a legmagasabb volt a hozzáadott additív koncentrációja illetve az alkalmazott egyenáram erőssége, a legmagasabb diszlokáció sűrűség alakult ki, s kapcsolódva a 3) ponthoz, a legmagasabb folyás-feszültség érték is itt volt mérhető.

II.

Különböző réteg- és teljes mintavastagságú Cu-Nb multirétegek vonalprofil analízisét végeztem el, ahol a mikroszerkezetet meghatározó mindkét fázis diszlokáció szerkezet leírására, illetve a koherensen szóró tartományok evolúciójára is megállapításokat fogalmaztam meg. A mikroszerkezeti sajátosságokon felül, makroszkopikus jellemzésre is sor került.

1) Megállapítottam, hogy a Cu rétegekben a diszlokáció sűrűség mértéke $\rho^{\text{valódi}} = 1.7 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$, függetlenül attól hogy a vizsgált minta milyen réteg- vagy teljes mintavastagsággal rendelkezik.

2) Megállapítottam, hogy a Nb rétegeit jellemző diszlokáció sűrűség mértéke *csökken*, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát $\rho^{\text{valódi}} = 4 (\pm 0.3) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ -től egészen $\rho^{\text{valódi}} = 2 (\pm 0.2) 10^{16} \text{ m}^{-2}$ mértékig, bár a diszlokáció sűrűség változása nem lineáris a rétegvastagság változásának függvényében.

3) Megállapítottam, hogy függetlenül a réteg- vagy teljes mintavastagságtól, mindkét fázisra vonatkozóan a diszlokáció-szerkezetek, a Burgers vektor populációra vonatkozóan igen hasonlóan adódnak.

4) Megállapítottam, hogy a diszlokáció-szerkezet, mindkét fázisra nézve, többnyire él-jellegű, a két fázis határát jellemző határfelület síkjával párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk halmazával jellemezhető. A Cu fázist jellemző diszlokáció-populáció egy közel háromfogsú szimmetriával rendelkező diszlokáció-szerkezetet testesít meg.

5) Ha a diszlokációk többnyire a határfelületek térfogati tartományában helyezkednek el, akkor azonos teljes mintavastagság és növekvő rétegvastagság esetén csökkenő diszlokáció sűrűséget várunk. Az elemzés során nem ezt tapasztaltam, így a következőket állapítottam meg: (1) a határfelület tartományára korlátozódó *misfit*-típusú diszlokációk sűrűsége fokozatosan növekszik, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát és ezzel párhuzamosan (2) a geometriailag *nem-szükséges*, *nem-misfit* típusú diszlokációk sűrűsége csökken az egyre növekvő rétegvastagság függvényében. A mechanizmus hajtóereje a határfelületek által képviselt vonzó potenciálban rejlik, mely a határfelületek közelében tartózkodó diszlokációkra hat.

6) Megállapítottam, hogy az inkoherenca teljes mértékű megszüntetését elősegítő *misfit* típusú diszlokációk nem képesek azonnal kialakítani a számukra energetikailag kedvező egyensúlyi távolságot. A diszlokációk között lévő távolságok csak fokozatosan csökkennek, aszimptotikusan érik el az egyensúlyi távolságot miközben a vékonyrétegek rétegvastagsága növekszik.

7) Megállapítottam, hogy a makroszkopikus feszültség mértékét a Taylor és Hall-Petch összefüggéseken keresztül a mikroszerkezeti paraméterek jól jellemzik. A multiréteg 20%-os szilárdságnövekedése történik meg miközben a rétegvastagság 75 nm-ről 20 nm-re csökken.

III.

Magnetron-porlasztással előállított, erősen texturált, nano-ikresedett Cu vékonyrétegek kiindulási- és hideghengerelt mikroszerkezetét vizsgáltam röntgen vonalprofil analízis módszerével. A vonalprofil analízis során alapvetően a ikerhatár struktúra evolúciójára illetve a diszlokáció-szerkezet változásának leírására törekedtem. Az eddig ismert mikroszerkezeti leírást kiegészítettem a mikroszerkezeti paraméterek illetve azok változásának figyelembevételével. A diszlokáció sűrűség és ikerhatár struktúra változásának függvényében a vékonyréteg alakítási keményedését leíró mechanizmusával is foglalkoztam.

1) Megállapítottam, hogy a hideghengerlés során, csak az egyik hossz-dimenzió mentén történik plasztikus deformáció, így az alakítás tisztán sík-feszültségű deformációval történik.

2) Megállapítottam, hogy az ikerhatárok gyakorisága kismértékben csökken, míg a diszlokáció sűrűség jelentősen megnő a deformáció hatására.

3) Számszerűsítettem, hogy a plasztikus deformáció során az ikerhatárok gyakorisága 20-25%-os csökkenést mutat, mely a kiindulási állapotot jellemző 2-4 nm-es átlagos ikerhatár távolságot 5-6 nm-re növeli.

4) Megállapítottam, hogy a hideghengerlés a diszlokáció sűrűség mértékét $\rho \cong 4.4 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ -ről $\rho \cong 3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ -re változtatja meg.

5) Megállapítottam, hogy a folyás-feszültség teljes mértékét az ikresedés és a diszlokációk *együttes* jelenléte alakítja ki. Eddigi ismereteink szerint ugyanis a vékonyréteg alakítási keményedésének legfőbb mechanizmusát az ismert Hall-Petch összefüggés alapján határozták meg, ahol az ikerhatároknak tulajdonítják a diszlokációk szabad mozgásának legfőbb akadályait. A hengerlés hatására megnövekedett feszültség érték, és az ikerhatártávolságok megnövekedése arra utal, hogy a diszlokációk döntő szerepet játszanak a mikroszerkezet kialakításában. A kiindulási állapotot *sem* nulla-mértékű diszlokáció sűrűség jellemez.

6) Megállapítottam, hogy a diszlokáció sűrűség és ikerhatárok gyakoriságának mértékei jó egyezést mutatnak a Hall-Petch és Taylor összefüggéseken keresztül leírható makroszkopikus feszültségekkel. A hideghengerlés során kialakult ikerhatár-struktúra a nano-ikresedés jelenségéből származó Hall-Petch típusú tagot csökkenti, míg a diszlokációk jelenségét magába foglaló Taylor-tag növekedése az előbbi csökkenés mértékét meghaladja.

7) Számszerűsítettem, hogy a Taylor összefüggésben található α konstans értékére $\alpha=0.13$ körüli értéket hordoz. Ez az alacsony α érték a diszlokációk speciális térbeli elrendeződését jelzi. Megállapítottam, hogy a mikroszerkezetet a diszlokációk szoros, *dipól-jellelű* konfigurációja jellemzi. A diszlokációk effektív, külső levágási sugara jóval gyorsabban csökken, mint ahogy azt egy véletlenszerű diszlokáció elrendeződés és hasonló mértékű diszlokáció sűrűség esetén várnánk. Megállapítottam, hogy az eredmények konzisztens képet tükröznek azzal, hogy a diszlokációs cella-struktúrák nem alakulnak ki hideghengerlés hatására, így a nagymértékű diszlokációk térbeli elhelyezkedése az

ikerhatárok mentén alakul ki, melyek a diszlokációk szabad mozgásának legfőbb akadályai. Megállapítottam, hogy a diszlokációk dipól-karakterének egyre erősödő jelenlétével magyarázható a nano-ikresedett Cu vékonyrétegek viszonylagosan *alacsony* mértékű alakítási keményedése.

Irodalomjegyzék

Saját publikációk

Chen, Y.Z., Csiszár, G., Cizek, J., Borchers, C., Ungár, T., Goto, S., Kirchheim, R., (2011), *Scripta Materialia*, **64**, 390–393.

Csiszár, G., Misra, A., Ungár, T., (2011a), *Materials Science and Engineering A*, **528**, 6887–6895.

Csiszár, G., Balogh, L., Misra, A., Zhang, X., Ungár, T., (2011b), *Journal of Applied Physics*, **110**, 043502.

Csiszár, G., Pantleon, K., Alimadadi, H., Ribárik, G., Ungár, T., *J. Appl. Cryst.*, (2012a), **45**, 61–70.

Csiszár, G., Fábíán, E.R., Ungár, T., Dévényi, L., *Int. J. Mat. Res.*, **103** (2012b) 6, 673-679.

Huang, E. W., Csiszár, G., Lo, Y., Clausen, B., Huang, Y., Lee, W., Ungár, T., Liaw, P. K., (2012), *Advanced Engineering Materials*, DOI 10.1002/201200057.

Qiao, J. W., Huang, E. W., Jiang, F., Ungár, T., Csiszár, G., Li, L., Ren, Y., Liaw, P. K., Zhang, Y., (2010), *Applied Physics Letters*, **97**, 171910.

Csiszár, G., Járó, M., Ungár, T., (2012), Correlation between the substructure parameters and the manufacturing technologies of metal threads in historical textiles using X-ray profile analysis, *Applied Physics A*, **elbírálás alatt**.

Chen, Y.Z., Csiszár, G., Cizek, J., Borchers, C., Ungár, T., Goto, S., Kirchheim, R., (2012), Defects in carbon rich α -ferrite of cold-drawn pearlitic steel wires, *Metallurgical and Materials Transactions A*, E-TP-11-660-ARRRR, **elbírálás alatt**.

Jóni, B., Al-Samman, T., Chowdhury, S.G., Csiszár, G., Ungár, T., Dislocation densities and prevailing slip-systems in a textured AZ31 magnesium alloy deformed at different temperatures determined by X-ray line profile analysis, *J. Appl. Cryst.*, **elbírálás alatt**.

Csiszár, G., Misra, A., Brown, D.W., Ungár, T., Characterization of highly textured, He-implanted materials, namely Cu-Nb multilayers, with respect to the Burgers vector population and their Bragg-like diffuse scattering property, **előkészületben**.

Csiszár, G., Zilahi, Gy., Li, X., Balogh, L., Ungár, T., Characterization of twinning and dislocation densities in highly textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ high T_c thin mono-layers by X-Ray Diffraction, *Applied Physics Letters*, **beküldés alatt**.

További hivatkozások

Abdolrahim, N., Mastorakos, I.N., Zbib, H.M., (2010), *Phys. Rev. B.*, **81**, 054117.

Akasheh, F., Zbib, H. M., Hirth, J. P., Hoagland, R. G., Misra, A., (2007), *J. Appl. Phys.*, **101**, 084314.

Al-Fadhalah, K., Tomeacuta, C. N., Beaudoin, A. J., Robertson, I. M., Hirth, J. P., Misra, A., (2005), *Phil. Mag.*, **85**, 1419-1440.

Alimadadi, H., Bastos S., A., Pantleon, K., (2011), *in preparation*.

Anderoglu, O., Misra, A. Wang, J., Hoagland, R.G., Hirth, J. P., Zhang, X., (2010), *I. J. Plast.*, **26**, 875-886.

Anderoglu, O., Misra, A., Wang, H., Ronning, F., Hundley, M. F., Zhang, X., (2008a), *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 083108.

Anderoglu, O., Misra, A., Wang, H., Zhang, X., (2008b), *J. Appl. Phys.*, **103**, 094322.

Anderson, P.M., Bingert, J. F., Misra, A., Hirth, J.P., (2003), *Acta Mater.*, **51**, 6059.

Anderson, P.M., Carpenter, J.S., (2010), *Scripta Mater.*, **62**, 325-328.

Andricacos, P.C., Uzoh, C., Dukovic, J.O., Horkans, J., Deligianni, H., (1998), *IBM J. Res. Develop.*, **42**, 567-573.

Arzt, E., (1998), *Acta Mater.*, **46**, 5611.

Balogh, L., Ribárik, G., Ungár, T., (2006), *J. Appl. Phys.*, **100**, 023512.

Balogh, L., Tichy, G., Ungár, T., (2009), *J. Appl. Cryst.*, **42**, 580-591.

Bertaut, E. F., (1950), *Acta Cryst.*, **3**, 14-18.

BES Workshop on Basic Research Needs for Materials under Extreme Environments Report, (11–13 June 2007); www.sc.doe.gov/bes/reports/abstracts.html#MUEE.

Borbély, A., Dragomir, J., Ribárik, G., Ungár, T., (2003), *J. Appl. Cryst.*, **36**, 160-162.

Borbély, A., Driver, J. H., Ungár, T., (2000), *Acta Mater.*, **48**, 2005-2016.

Bouaziz, O., Bréchet, Y., Embury, J.D., (2008), *Adv. Eng. Mater.*, **1–2**, 10.

Cheary, R. W., Dooryhee, E., Lynch, P., Armstrong N., Dligatch S., (2000), *J. Appl. Cryst.*, **33**, 1271-1283.

Chokshi, A.H., Rosen, A., Karch, J., Gleiter, H., (1989), *Scripta Mater.*, **23**, 1679.

Chun, Y. B., Yu, S. H., Semiatin, S. L., Hwang, S. K., (2005), *Mat. Sci. Eng. A*, **398**, 209-219.

Clausen, B., Lorentzen, T., Leffers, T., (1998), *Acta Mater.*, **46**, 3087-3098.

Dao, M., Lu L., Shen, Y.F., Suresh, S., (2006), *Acta Mater.*, **54**, 5421.

Demkowicz, M. J., Hoagland, R. G., (2008), *J. Nuclear Mater.*, **372**, 45-52.

Demkowicz, M.J., Bellon, P., Wirth, B.D., (2010), *MRS BULLETIN*, **35**, www.mrs.org/bulletin.

Dragomir, I. C., Borbély, A., Ungár, T., (2004), *Materials Science Forum*, **95**, 443-444.

Dragomir, I. C., Ungár, T., (2002a), *J. Appl. Cryst.*, **35**, 556-564.

Dragomir, I. C., Ungár, T., (2002b), *Powder Diffraction Journal*, **17**, 104-111.

Erb, U., (2010), *Key Engineering Materials*, **444**, 163-188.

Fang, L., Friedman, L.H., (2007), *Acta Mater.*, **55**, 1505-1514.

- Gaál, I., (1975), *J. Appl. Cryst.*, **8**, 127.
- Gleiter, H., (2000), *Acta Mater.*, **48**, 1.
- Groma, I., (1998), *Phys. Rev. B*, **57**, 7535-7542.
- Groma, I., Ungár, T., Wilkens, M., (1988), *J. appl. Cryst.*, **21**, 47.
- Guinier, A., (1963), *X-ray Diffraction*, San Francisco, Freeman.
- Hall, E. O., (1951), *Proc. Phys. Soc.*, **64b**, 747.
- Han, S.M., Phillips, M.A., Nix, W.D., (2009), *Acta Mater.*, **57**, 4473-4490.
- Hansen, K., Pantleon, K., (2008), *Scripta Materialia*, **58**, 96-98.
- Hansen, N., (2004), *Scripta Materialia*, **51**, 801-806.
- Hinds, W.C., (1982), *Aerosol Technology: Properties, Behaviour and Measurement of Airborne Particles*, Wiley, New York.
- Jesser, W.A., Kuhlmann-Wilsdorf, D., (1967), *Phys. Stat. Sol.*, **19**, 95.
- Kamikawa, N., Huang, X., Tsuji, N., Hansen, N., (2009), *Acta Mater.*, **57**, 4198.
- Kovács, I., Zsoldos, L., (1965), *Diszlokációk és képlékeny alakváltozás*, Műszaki könyvkiadó, Budapest.
- Krivoglaz, M. A., Ryaboshapka, K. P., (1963), *Fiz. Met. Metalloved.*, **15**, 18.
- Krivoglaz, M. A., *Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by Real Crystals*, (1969), New York, Plenum Press.
- Kurdjumov, G., Sachs, G., (1930), *Zeitschrift für Physik*, **64**, 325.

- Kurilo, I.V., Rudyi, I.O., Vlasenko, O.I., (1999), *J. Cryst. Growth*, **204**, 447-452.
- Kuzel, R. Jr., Klimanek, P., (1988), *J. Appl. Cryst.*, **21**, 363-368.
- Kuzel, R. Jr., Klimanek, P., (1989), *J. Appl. Cryst.*, **22**, 299-307.
- Levay, A., Möbus, G., Vitek, V., Rühle, M., Tichy, G., (1999), *Acta Mater.*, **47**, 4143-4152.
- Lewis, A.C., Eberl, C., Hemker, K.J., Weihs, T.P., (2008), *J. Mater. Res.*, **23**, 376-382.
- Li, Y.P., Zhang, G.P., (2010), *Acta Mater.*, **58**, 3877-3887.
- Lu, K., Lu, L., Suresh, S., (2009b), *Science*, **324**, 349-352.
- Lu, L., Chen, X., Huang, X., Lu, K., (2009a), *Science*, **30**, 607-610.
- Lu, L., Shen, Y., Chen, X., Qian, L., Lu, K., (2004), *Science*, **304**, 422.
- Madden, J.D., (2007), *Science*, **318**, 1094.
- Mara, N.A., Bhattacharyya, D., Hoagland, R.G., Misra, A., (2008), *Scripta Mater.*, **58**, 874-877.
- Mastorakos, I.N., Zbib, H.M., Bahr, D.F., (2009), *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 173114.
- Misra, A., Hirth, J.P., Hoagland, R.G., Embury, J.D., Kung, H., (2004), *Acta Mat.*, **52**, 2387-2394.
- Misra, A., Thilly, L., (2010), *MRS Bull.*, **35**, 965.
- Mitlin, D., Misra, A., Radmilovic, V., Nastasi, M., Hoagland, R.G., Embury, J.D., Hirth, J. P., Mitchell, T. E., (2004), *Philos. Mag.*, **84**, 719-736.
- Moffat, T.P., Jossell, D., (2010), *Isr. J. Chem.*, **50**, 312-320.

- Natter, H., Hempelmann, R., (2008), *Z. Phys. Chem.*, **222**, 319-354.
- Nyilas, K., Dupas, C., Kruml, T., Zsoldos, L., Ungár, T., Martin, J.L., (2004), *Materials Science and Engineering A*, **387-389**, 25-28.
- Nyilas, K., Misra, A., Ungar, T., (2006), *Acta Materialia*, **54**, 751-755.
- Overman, N.R., Overman, C.T., Zbib, H.M., Bahr, D.F., (2009), *J. Eng. Mater. Tech.*, **131**, 041203.
- Pantleon, K., Somers, M.A.J., (2006), *J. Appl. Phys.*, **100**, 114319.
- Pantleon, K., Somers, M.A.J., (2010), *Mater. Sci. Engin. A*, **528**, 65-71.
- Petch, N. J., (1953), *J. Iron Steel Inst.*, **173**, 25.
- Raabe, D., Choi, P., Li, Y., Kostka, A., Sauvage, X., Lecouturier, F., Hono, K., Kirchheim, R., Pippan, R., Embury, D., (2010), *MRS BULLETIN*, **35**, www.mrs.org/bulletin.
- Ribárik, G., Gubicza, J., Ungár, T., (2004), *Mat. Sci. Eng. A*, **387-389**, 343-347.
- Ribárik, G., Ungár, T., Gubicza, J., (2001), *J. Appl. Cryst.*, **34**, 669-676.
- Scardi, P., Leoni, M., (1999), *J. Appl. Cryst.*, **32**, 671-682.
- Schuller, I. K., (1980), *Physical Review Letters*, **44**, 1597-1600.
- Shen, Y.F., Lu, L., Lu, Q.H., Jin, Z.H., Lu, K., (2005), *Scripta Mater.*, **52**, 989-994.
- Shute, C.J., Myers, B.D., Xie, S., Barbee, T.W., Hodge, Jr. A.M., Weertman, J.R., (2009), *Scripta Mater.*, **60**, 1073-1077.
- Steeds, J. W., (1973), *Introduction to anisotropic elasticity theory of dislocations*, Clarendon Press, Oxford.

Süli, E., Mayers, D., (2003), *An Introduction to Numerical Analysis*, Cambridge University Press.

Sun, P.L., Chu, J.P., Lin, T.Y., Shen, Y.L., Chawla, N., (2010), *Mater. Sci. Eng. A*, **527**, 2985-2992.

Tao, N. R., Lu, K., (2009), *Scripta Mater.*, **60**, 1039.

Taylor, G. I., (1928), *J. Inst. Metals*, **62**, 307.

Taylor, G. I., (1934), *Proc. Roy. Soc. A*, **145**, 362.

Ungár, T., (2008), *J. Powder Diffr.*, **23**, 125-132.

Ungár, T., Borbély, A., (1996), *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 3173.

Ungár, T., Groma, I., Wilkens, M., (1989), *J. appl. Cryst.*, **22**, 26.

Ungár, T., Gubicza, J., Ribárik, G., Borbély A., (2001), *J. Appl. Cryst.*, **34**, 298.

Ungár, T., Leoni, M., Scardi, P., (1999a), *J. Appl. Cryst.*, **32**, 290-295.

Ungár, T., Ott, S., Sanders, P. G., Borbély, A., Weertman, J. R., (1998), *Acta Materialia*, **10**, 3693.

Ungár, T., Schafner, E., Hanák, P., Bernstorff, S., Zehetbauer, M., (2007), *Mater. Sci. Eng. A*, **462**, 398–401.

Ungár, T., Tichy, G., (1999b), *Phys. Stat. Sol. (a)*, **147**, 425-434.

Ungár, T., Tichy, G., Gubicza, J., Hellmig, R. J., (2005), *J. Powder Diffraction*, **20**, 366-375.

Velterop, L., Delhez, R., de Keijsers, Th. H., Mittemeijer, E. J., Reefman, D. J., (2000), *Appl. Cryst.*, **33**, 296-306.

- Wagner, F. J., Seeger, A., (1969), *Phys. Lett. A*, **30**, 274-275.
- Wang, J., Hoagland, R.G., Misra, A., (2008), *Acta Mat.*, **56**, 5685.
- Wang, J., Hoagland, R.G., Misra, A., (2009), *Scripta Materialia*, **60**, 1067–1072.
- Wang, J., Li, N., Anderoglu, O., Zhang, X., Misra, A., Huang, J.Y., Hirth, J.P., (2010), *Acta Mater.*, **58**, 2262-2270.
- Wang, J., Misra, A., (2011), *Current Opinions in Solid State and Materials Science*, **15**, 20-28.
- Wang, J.G., Tian, M.L., Mallouk, T.E., Chan, M.H.W., (2004), *J. Phys. Chem. B*, **108**, 841.
- Wang, Y.C., Misra, A., Hoagland, R.G., (2006), *Scripta Mater.*, **54**, 1593-1598.
- Warren, B.E., (1959), *Progr. Met. Phys.*, **8**, 147.
- Warren, B.E., (1969), *X-ray diffraction*, Dover Publications, New York.
- Warren, B.E., Averbach, B.L., (1950), *J. Appl. Phys.*, **21**, 595.
- Weil, R., (1989), *Annu. Rev. Mater. Sci.*, **19**, 165-182.
- Wilkens, M., (1970a), In: *Simmons, S.A., de Wit, R., Bullough, R., Fundamental Aspects of Dislocation Theory*, editors. Vol.II.Nat.Bur.Stand. (U.S.) Spec.Publ.No.317, Washington DC, USA, 1195.
- Wilkens, M., (1970b), *Phys. Status Solidi A*, **2**, 359-370.
- Williamson, G. K., Hall, W. H., (1953), *Acta metall.*, **1**, 22.
- Wilson, A. J. C., (1962), *X-ray Optics*, London, Methuen.

Wu, E., Mac, A., Gray, E., Kisi, E. H., (1998), *J. Appl. Cryst.*, **31**, 356-362.

Zhang, K.Y., Embury, J.D., Han, K., Misra, A., (2008), *Philos. Mag.*, **88**, 2559.

Zhang, X., Misra, A., Wang, H., Nastasi, M., Embury, J. D., Mitchell, T. E., Hoagland, R. G., Hirth, J. P., (2004), *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 1096-1099.

Zhang, X., Wang, H., Chen, X.H., Lu, L., Lu, K., Hoagland, R.G., Misra, A., (2006), *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 173116.

Zhu, X.Y., Liu, X.J., Zeng, F., Pan, F., (2010), *Mater. Lett.*, **64**, 53-56.

Köszönetnyilvánítás

Dr. Ungár Tamás témavezetőmnek tartozom mindenekelőtt köszönettel, a doktori éveim alatt nyújtott folyamatos szakmai támogatásáért, segítőkészségéért és a magasszintű kutatási lehetőségek megvalósításáért.

Köszönettel tartozom Dr. Lendvai Jánosnak a kutatási feltételek biztosításáért és szakmai támogatásáért.

Köszönettel tartozom Dr. Groma Istvánnak, az Anyagfizikai Tanszék jelenlegi tanszékvezetőjének mindenkor kritikus hozzáállásáért és magasszintű szakmai tanácsaiért.

Köszönöm Dr. Tichy Gézának a doktori munkám alatt nyújtott segítségét és a szakmai diskurzusokat.

Köszönettel tartozom Dr. Amit Misra-nak a Cu-Nb illetve Cu vékonyrétegek témakörében nyújtott magasszintű együttműködéséért.

Köszönettel tartozom Dr. Karen Panthleon-nak a Ni vékonyrétegek témakörében nyújtott magasszintű hozzászólásaiért.

Köszönettel tartozom Dr. Gubicza Jenőnek a segítőkészségéért és a kutatási témámhoz kapcsolódó labormunkák kivitelezéséért.

Köszönettel tartozom Dr. Balogh Leventének a segítőkészségéért és a kutatási témámhoz kapcsolódó labortevékenységek kivitelezéséért, illetve elméleti vonatkozású beszélgetéseikért.

Köszönettel tartozom Radnóczi Györgynek, a Természettudományi Kutatóközpont, Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézetének kutatójának készséges hozzáállásáért és a Ni vékonyrétegeken végzett TEM felvételek elkészítéséért.

Köszönöm Ö. Kovács Alajosnak a minták méréshez való előkészítésében nyújtott segítségét.

Köszönettel tartozom feleségemnek, Orsolyának, aki hittel és reménnyel támogatta utamat, gyermekeimnek, Barnabásnak, Bertalannak és Virágnak, akik türelemmel viselték édesapjuk sokszori nélkülözését, szüleinknek, akik kitartóan és fáradhatatlanul támogattak és barátainknak, akik mögöttem álltak a tanulmányaim és kutatási éveim során.

Összefoglalás

A jelen disszertációban 3 különböző vékonyréteg-struktúra diszlokáció-szerkezetének és ikerhatárainak mikroszerkezeti karakterizációjával foglalkoztam a röntgen vonalprofil analízis módszerével. A 3 vékonyréteg-struktúra a következő: (a) Különböző koncentrációjú additív hozzáadása és alkalmazott áramerősség segítségével kialakított $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ és $\langle 211 \rangle$ fő-textúra komponensű, Ni fázisú, nanokristályos vékonyrétegek (b) különböző réteg- és teljes mintavastagságú Cu-Nb multirétegek és (c) nano-ikresedett Cu vékonyrétegek kiindulási- és hideghengerelt mikroszerkezeti leírását foglalom össze.

(a) **Ni vékonyrétegek.** A diszlokáció sűrűség mértéke széles tartományban jellemzi a különböző textúrájú kristallit sokaságokat. A legmagasabb értéket az $\langle 111 \rangle$ fő-textúrájú és $\langle 511 \rangle$ mellék-textúrájú vékonyréteg növesztése során kaptam. Az $\langle 100 \rangle$ és $\langle 111 \rangle$ textúrájú mintákban nagymértékben a vékonyréteg felületével párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk helyezkednek el, míg a $\langle 211 \rangle$ textúra komponens esetén a Burgers vektor populáció véletlenszerűnek tekinthető. A minták diszlokáció sűrűsége és az előállítási paraméterek között erős korreláció mutatkozik. Az $\langle 111 \rangle$ fő-textúra és $\langle 511 \rangle$ mellék-textúrával rendelkező vékonyréteg növesztésekor a legmagasabb hozzáadott additív koncentrációja és alkalmazott egyenáram erőssége, a legmagasabb diszlokáció sűrűségét generálta a vizsgált struktúrák között.

(b) **Cu/Nb multirétegek.** A Cu rétegekben a diszlokáció sűrűség azonos függetlenül attól hogy a vizsgált minta milyen réteg- vagy teljes mintavastagsággal rendelkezik. A Nb rétegeit jellemző diszlokáció sűrűség mértéke nem-lineárisan *csökken*, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát. Függetlenül a réteg- vagy teljes mintavastagságtól, mindkét fázisra vonatkozóan a diszlokáció-szerkezetek igen hasonlóan adódnak. A diszlokáció-szerkezet, mindkét fázisra nézve, többnyire él-jellegű, a két fázis határát jellemző határfelület síkjával párhuzamos Burgers vektorú diszlokációk halmazával jellemezhető. A Cu fázist jellemző diszlokáció-populáció egy közel háromfogatú szimmetriával rendelkező diszlokáció-szerkezetet testesít meg. A határfelület tartományára korlátozódozó *misfit*-típusú diszlokációk sűrűsége fokozatosan növekszik, ahogy növeljük az egyedi rétegek vastagságát és ezzel párhuzamosan a geometriailag *nem-szükséges*, *nem-misfit* típusú diszlokációk sűrűsége csökken az egyre növekvő rétegvastagság függvényében. A *misfit*-típusú diszlokációk között lévő távolságok csak fokozatosan csökkennek, aszimptotikusan érik el az egyensúlyi távolságot miközben a vékonyrétegek rétegvastagsága növekszik. A multiréteg 20%-os alakítási keményedése történik meg miközben a rétegvastagság 75 nm-ről 20 nm-re csökken.

(c) **Nano-ikresedett Cu vékonyrétegek.** Az ikerhatárok gyakorisága 20-25%-kal csökken, míg a diszlokáció sűrűség 5-7-szeresére megnő a deformáció hatására. A plasztikus deformáció során az ikerhatárok átlagos távolsága 5-6 nm-re növekszik. A feszültség teljes mértékét az ikresedés és a diszlokációk *együttes* jelenléte alakítja ki. A mikroszerkezetet a diszlokációk szoros, *dipól-jellegű* konfigurációja jellemzi. A nagymértékű diszlokációk térbeli elhelyezkedése az ikerhatárok mentén alakul ki. A diszlokációk dipól-karakterének egyre erősödő jelenlétével magyarázható a Cu vékonyrétegek viszonylagosan *alacsony* mértékű alakítási keményedése.

Abstract

My doctoral dissertation consist of three different microstructural investigations where the major experimental method is X-ray line profile analysis. In the focus are three different thin films, namely (i) nanocrystalline Ni thin films produced under different conditions in order to obtain $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ and $\langle 211 \rangle$ major fiber textures, (ii) highly-textured, sputter-deposited Cu-Nb multilayers with different layer- and total thickness and (iii) as-sputtered and RT-rolled, *de-twinned* Cu foils. The main results of my research are summarized briefly as follows.

(i) The dislocation density is found to vary in a wide range versus both the different textures and the deposition conditions of the thin Ni films. In the $\langle 100 \rangle$ and $\langle 111 \rangle$ textured films a considerable fraction of the Burgers vectors are parallel to the plane of the films. In the $\langle 211 \rangle$ textured films, however, the Burgers vectors are populated randomly. It is found that the largest current density and the largest amount of additives produce the highest dislocation density and the largest strength value related to the sample with $\langle 111 \rangle$ major texture and $\langle 511 \rangle$ minor texture components.

(ii) In the Cu layers, dislocation densities are irrespective of the layer thickness or the total thickness of the foils. The dislocation density in the Nb layers increases slightly when the layer thickness decreases, but does not scale linearly. The structure of the Burgers vector population does not depend on the layer thickness, or on the total thickness of the foils. In both, the Cu and the Nb layers the overwhelming majority of the Burgers vectors are edge dislocations which are parallel to the foil planes. The dislocation character and the Burgers vector populations in the Cu layers suggest a network of the interface dislocations with a threefold symmetry. Linear variation of dislocation density with layer thickness is not observed could be due to a combination of two factors: (i) the density of misfit dislocations in the interface plane gradually increases with layer thickness, and (ii) the density of dislocations within the layers decreases with increasing layer thickness. The misfit dislocation spacing gradually decreases and asymptotically approaches the equilibrium value with increasing film thickness. The strength of the foils decreases by about 20 % from 20 to 75 nm layer thickness, mainly because the layer-thickness increases.

(iii) The whole peak profile analysis shows that the twin boundary density decreases by about 20 to 25 % after rolling while dislocation density 5 to 7 times larger compare to the as-sputtered state. The average distance of the twin lamellae in the initial state changes to 5-6 nm during rolling. Twinning alone cannot be considered as the only reason of strengthening. The total value of flow stress is produced by the concomitant effect of twinning and dislocations. The Hall-Petch type weakening caused by *de-twinning* is overcompensated by the Taylor type work hardening during rolling. This relatively small value of α in the Taylor relation indicates, on the one hand, that the dislocations are in narrow dipole configurations, and on the other hand, it explains the good ductility despite the large strength of the foils. This features correlate well to the fact that dislocation cell structures do not form in *de-twinned* metals, a high density of dislocations can be stored at the twin boundaries.