

Використання методу Резерфордівського оберненого розсіяння для дослідження процесів дифузії та фазоутворення в тонкоплівковій системі Sn – Cu

С. М. Волошко, доктор фізико-математичних наук, професор
І. Є. Котенко, кандидат технічних наук
А. І. Олешкевич

Національний технічний університет України «КПІ», Київ

Досліджено особливості фазоутворення у тонкоплівковій системі Sn – Cu за умов короткотривалої низькотемпературної дифузії. Для аналізу концентраційного розподілу компонентів та визначення фазового складу за товщиною шарів доцільно застосовувати метод Резерфордівського оберненого розсіяння. Для встановлення механізму дифузії компонентів додатково використано рентгенофазовий аналіз, для аналізу топографії поверхні – атомно-силову мікроскопію.

В даній роботі досліджено тонкоплівкову полікристалічну систему Sn (60 нм) – Cu (130 нм) – ситал, отриману послідовним термічним осадженням металевих шарів нанометрової товщини з вольфрамового випаровувача в одному вакуумному циклі з навісок фіксованої маси на ситалову підкладку на приладі ВУП-5М у вакуумі 10^{-4} Па. Відстань між випаровувачем та підкладкою – 70 мм. Температура підкладки 25 °С до початку конденсації. Зразки відпалювалися у вакуумі 10^{-4} Па за температури 100 °С впродовж 5 та 10 хв.

Для отримання концентраційного розподілу елементів за глибиною зразків застосовано метод Резерфордівського оберненого розсіяння (РОР) із використанням іонів ${}^4\text{He}^{+3}$ з енергією 2 МеВ. Кут реєстрації променів становив 170° у напрямку променя. Калібрування енергії на детекторі виконано за допомогою стандартного еталонного зразка золота. Аналіз даних РОР проведено шляхом моделювання спектрів із використанням спеціалізованого програмного забезпечення SIMNRA. Тонкоплівкову систему умовно розбивали на n шарів визначеної товщини. Комп'ютерним «підбором» значень концентрацій основних елементів (олово, мідь) в межах кожного шару та співвідношення товщини шарів досягався найкращий збіг розрахункової та експериментальної кривих. Кількість шарів змінювали в залежності від неоднорідності зразка: у вихідному стані вона дорівнювала 7, після відпалу зменшувалась до 5 у зв'язку із поступовим вирівнюванням концентраційного розподілу компонентів за глибиною. Аналогічну методику використано нами в роботі [1].

Фазовий аналіз проведено за допомогою рентгенівської дифракції за умов ковзаючого падіння променя на дифрактометрі Siemens D5000 у $\text{Cu}_{\text{K}\alpha}$ випромінненні (геометрія паралельного променя з рентгенівським дзеркалом) у режимі сканування 2Θ , кут падаючого променя становив 3° .

Для дослідження динаміки змін топографії поверхні за різних режимів відпалу зразків та оцінки шорсткості поверхні використано атомно-силову мікроскопію. Сканування проведено в контактному режимі на приладі Nanosurf MobileS.

Результати рентгенофазового аналізу для зразка у вихідному стані і після відпалу за температури 100°C впродовж 10 хвилин представлені на рис. 1. Формування інтерметалевої сполуки Cu_6Sn_5 відбувається вже в процесі конденсації (рис. 1 а), що узгоджується із даними [2 – 5]. У вихідному стані також фіксуються рефлекси від чистої міді, однак рефлекси від чистого олова відсутні. Це свідчить про те, що олово знаходиться у зв'язаному стані у складі інтерметалевої сполуки.

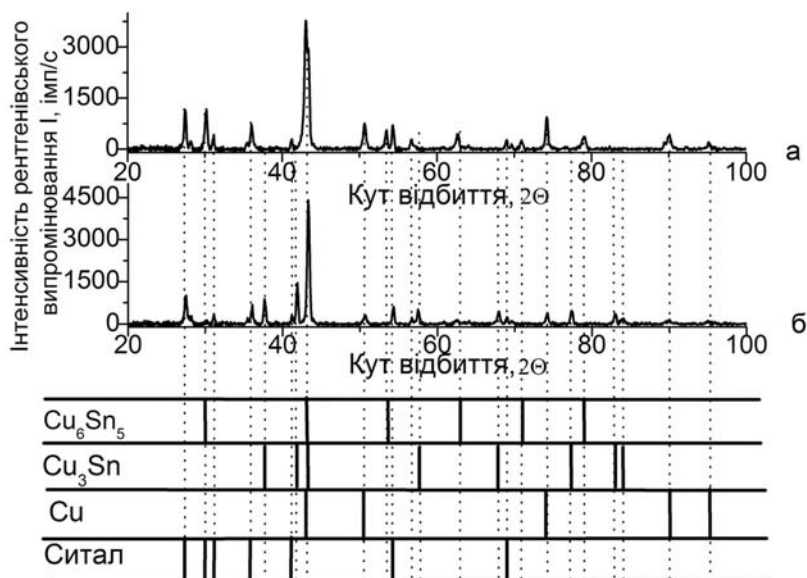


Рис. 1. Дані рентгенофазового аналізу для тонкоплівкової системи Sn – Cu у вихідному стані (а) та після відпалу за температури 100°C впродовж 5 та 10 хвилин (б).

Дифракційна картина після відпалу за температури 100°C впродовж 5 та 10 хв (рис. 1 б) однакова та ілюструє зникнення рефлексів від фази Cu_6Sn_5 та появу рефлексів від фази Cu_3Sn . У той же час інтенсивність рефлексів від чистої міді зменшується, що вказує на зменшення кількості чистої міді, обумовлене утворенням фази із більшим її вмістом.

Спектри Резерфордівського оберненого розсіяння представлені на рис. 2. Проведені розрахунки свідчать про формування інтерметалевої фази Cu_6Sn_5 у вихідному стані, оскільки фіксується наявність шару товщиною 38 нм, в якому концентрація олова сягає 45 ат. %, що відповідає концентрації олова у фазі Cu_6Sn_5 .

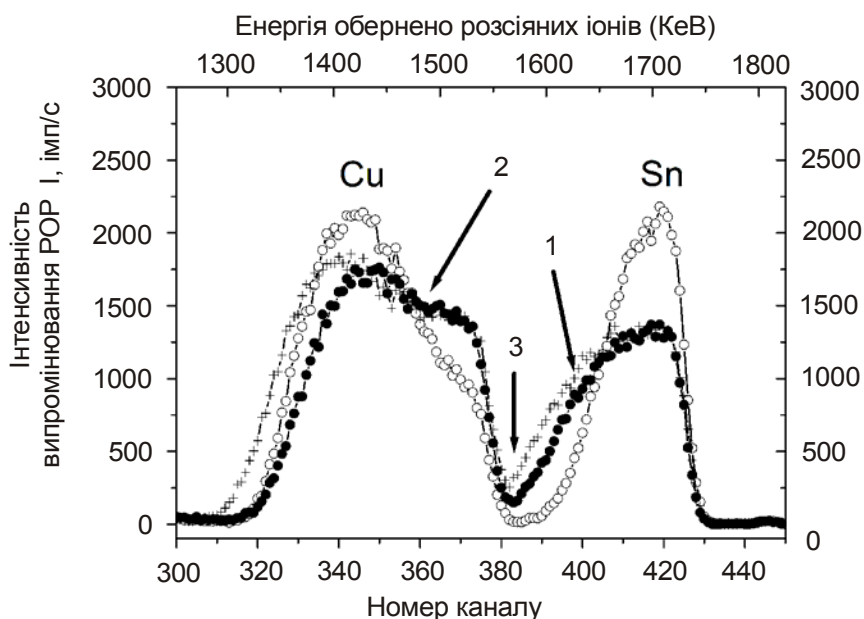


Рис. 2. Спектри Резерфордівського оберненого розсіяння для тонкоплівкової системи Sn – Cu у вихідному стані (o) та після відпалів за температури 100 °C впродовж 5 (●) та 10 хвилин (+). Номер каналу пропорційний енергії обернено розсіяних іонів.

Дані РОР для відпалених зразків також добре узгоджуються з даними рентгенофазового аналізу. Аналіз спектрів підтверджує існування шару з вмістом олова 25 ат. % (що відповідає фазі Cu_3Sn). Товщина цього шару становить 70 нм і є майже вдвічі більшою за товщину шару фази Cu_6Sn_5 . Зсув спектрів олова та міді (позначки 1 та 2 на рис. 2) та збільшення області їх перекриття (позначка 3 на рис. 2) свідчать про інтенсивну взаємну дифузію компонентів. Для зразка, відпаленого протягом 10 хвилин, спостерігається подальший розвиток дифузійних процесів, товщина шару фази Cu_3Sn зростає до 80 нм.

Детальний аналіз даних РОР дозволив визначити глибину залягання фаз та концентраційний розподіл компонентів за товщиною, а також проаналізувати кінетику фазових перетворень у тонкоплівковій системі Sn – Cu під дією термічного впливу (рис. 3).

Згідно до запропонованої моделі, представленої на рис. 3, фаза Cu_6Sn_5 формується у шарі олова за рахунок конденсаційно-стимульованої дифузії, одночасно із цим відбувається інтенсивна дифузія олова вглиб півки міді. Таким чином у вихідному стані навіть біля підкладки фіксується незначна кількість олова ~ 0,1 ат. % (рис. 3 а). Дифузійні процеси у досліджуваній системі розвиваються досить швидко і вже після відпалу за порівняно низької температури 100 °C впродовж 5 хвилин відбувається повне перетворення фази Cu_6Sn_5 на фазу Cu_3Sn в області товщиною 70 нм (рис. 3 б). У вихідному стані концентрація олова в цій області варіюється у межах від ~ 45 ат. % до ~ 30 ат. %. Олово, яке залишається у вільному стані після фазового перетворення, продовжує дифундувати в напрямку до підкладки. Збільшення часу відпалу

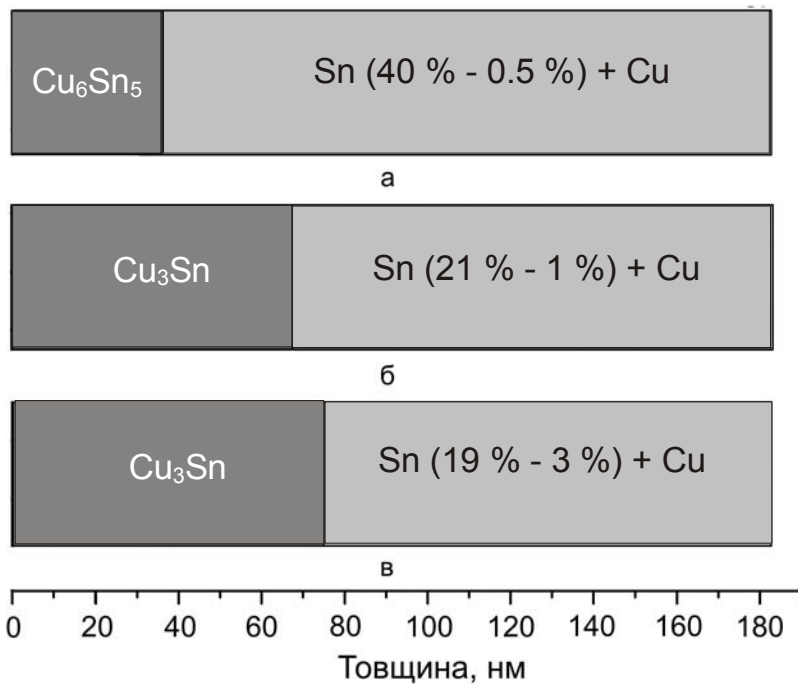


Рис. 3. Модель фазових перетворень у тонкоплівковій системі Sn – Cu. а – вихідний стан, б, в – відпал за температури 100 °С впродовж 5 та 10 хв, відповідно.

ще на 5 хвилин призводить до зростання товщини шару фази Cu_3Sn на 10 нм і збільшення концентрації олова біля підкладки до ~ 3 ат. % (рис. 3 в).

Відсутність зміщення піка міді за даними рентгенофазового аналізу після відпалів свідчить на користь зернограничного механізму дифузії олова у шар міді, тобто відбувається одночасний перебіг двох процесів – утворення інтерметалевої фази та дифузії атомів олова у шар міді границями зерен. Під час перетворення фази Cu_6Sn_5 на фазу Cu_3Sn домінуючим є механізм реакційної дифузії і на початкових стадіях шар нової фази росте досить швидко, а при подальшому збільшенні тривалості відпалу швидкість росту фази Cu_3Sn зменшується.

Результати атомно-силової мікроскопії представлено на рис. 4. Топографія поверхні практично не змінюється після відпалу із чого можна зробити висновок, що фаза Cu_3Sn повністю успадковує топографію фази Cu_6Sn_5 , якій притаманна висока шорсткість, значення якої за проведеними оцінками становить ~ 12 нм.

Отже, в даній роботі на прикладі системи Sn – Cu показано можливості використання неруйнівного методу Резерфордівського оберненого розсіяння для дослідження дифузійних процесів та аналізу різних стадій фазових перетворень в тонких металевих плівках.

Використана методика аналізу спектрів дозволила одержати інформацію щодо глибини залягання та товщини прошарку кожної фази, а також концентраційного розподілу компонентів. В результаті побудовано наочну

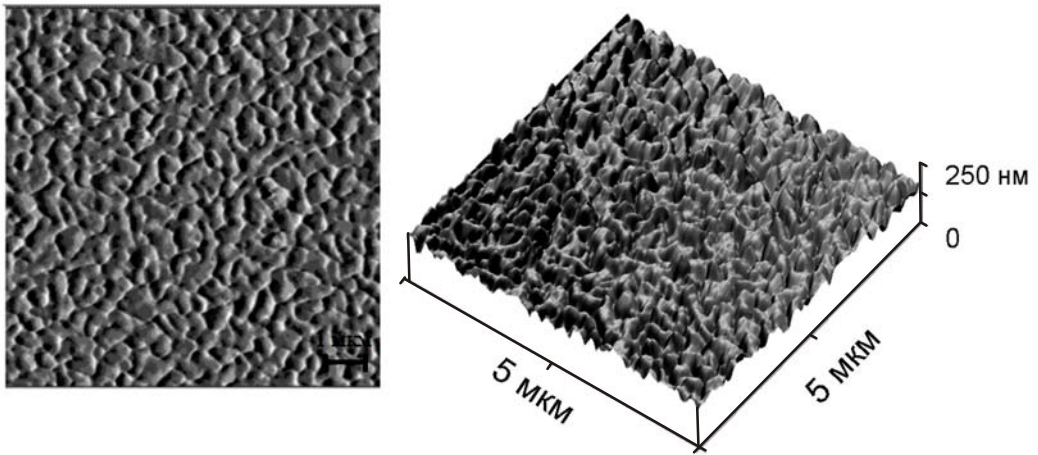


Рис. 4. Топографічне зображення поверхні у дво- та тривимірній проекціях, отримане методом атомно-силової мікроскопії.

модель процесів фазоутворення у тонкоплівковій системі Sn (60 нм) – Cu (130 нм), нанесеній на підкладку з ситалу, під дією термічного впливу. Завдяки додатковому застосуванню рентгенофазового аналізу встановлено, що одночасно із формуванням інтерметалевих фаз відбувається дифузія атомів олова в шар міді за зернограничним механізмом.

Література

1. Oleshkevych A., Zamani A., Kotenko I. Thermally driven redistribution of phases and components in Cu – Sn thin films. // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2012. – 535. – С. 108 – 113.
2. Kaganovskii Yu., Paritskaya L.N., Bogdanov V.V. Lateral diffusion spreading of two competitive intermetallic phases along free surface (system Cu – Sn). // *Diffusion Fundamentals*. – 2007. – 6. – С. 43 – 44.
3. Kaganovskii Yu., Paritskaya L.N., Bogdanov V.V. Lateral propagation of intermetallic phases in coarse- and nano-grained Cu – Sn diffusion couples. // *Powder Metallurgy and Metal Ceramics*. – 2008. – 47. – С. 652 – 659.
4. Liao C.N., Wei C.T. An isochronal kinetic study of intermetallic compound growth in Sn – Cu thin film couples. // *Thin Solid Films*. – 2006. – 515. – С. 2781 – 2785.
5. Rennie A., Sidorenko S., Kotenko I. Diffusion phase formation in the Cu – Sn nanofilms system. // *Defect and Diffusion Forum*. – 2011. – 167. – С. 309 – 310.

Одержано 05.12.12

С. М. Волошко, И. Е. Котенко, А. И. Олешкевич

Применение метода Резерфордского обратного рассеяния для исследования процессов диффузии и фазообразования в тонкопленочной системе Sn – Cu

Резюме

Исследованы особенности фазообразования в тонкопленочной системе Sn – Cu в условиях кратковременной низкотемпературной диффузии. Для анализа концентрационного распределения компонентов и определения фазового состава по толщине слоев целесообразно применять метод Резерфордского обратного рассеяния. Для определения механизма диффузии компонентов дополнительно использован рентгенофазовый анализ, для анализа топографии поверхности – атомно-силовая микроскопия.

S. M. Voloshko, I. Y. Kotenko, A. I. Oleshkevych

Application of Rutherford backscattering method for diffusion and phase formation studies in thin films of Sn – Cu system

Summary

Phase formation regularities in Sn – Cu thin films system in conditions of short time low-temperature diffusion have been studied. Applicability of Rutherford backscattering technique for concentration distribution of elements and determination of phase composition through layers thickness has been shown. X-Ray diffraction analysis and atomic-force microscopy have been additionally applied to define mechanism of components diffusion and surface topography analysis, accordingly.

Шановні колеги!

Триває передплата на науково-технічний журнал «Металознавство та обробка металів» на 2013 р.

Для регулярного одержання журналу потрібно перерахувати вартість заказаних номерів на розрахунковий рахунок Фізико-технологічного інституту металів та сплавів НАН України. Вартість одного номера журналу – 30 грн., передплата на рік – 120 грн.

Ціна архівних номерів 1995 – 2012 рр. – 10 грн.

Розрахунковий рахунок для передплатників, спонсорів і рекламодавців:

банк ГУДКСУ в м. Києві, р/р 31252272210215, код банку 820019.

Отримувач – ФТІМС НАН України, ЗКПО 05417153,

з посиланням на журнал "ММ".

Копію документа передплати та відомості про передплатника

просимо надсилати до редакції,

вказавши номер і дату платіжного документа.