

## ПОГРАНИЧНОЕ ГАЗОВЫДЕЛЕНИЕ В ТОНКОПЛЕНОЧНОЙ СИСТЕМЕ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ПРОТОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ И ВОЗМОЖНОСТИ ЕГО ПРИМЕНЕНИЯ

**Ю.Н. Борисенко, В.М. Береснев, С.В. Литовченко, А.Б. Шевцов**

*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина*

*Украина*

Поступила в редакцию 23.12.2010

Исследовано влияние облучения протонами на газовыделение в тонкопленочной системе. Установлено, что протонное облучение инициирует образование на границе раздела плёнка-подложка мелких сферических образований, размеры которых возрастают с ростом дозы. Это объясняется выходом на границу раздела внедрённого в подложку водорода. В ходе статистической обработки микроинтерферограмм поверхности плёнки проведен расчёт силовой и энергетической характеристик адгезии плёнок к подложкам, а также получено уравнение кинетики роста пузыря на границе раздела и проделана оценка газокинетических характеристик. **Ключевые слова:** газовыделение, тонкие пленки, протонное облучение адгезия.

Досліджено вплив опромінення протонами на газовиділення в тонкоплівковій системі. З'ясовано, що протонне опромінення ініціює утворення на границі розподілу плівка-підкладинка дрібних сферичних утворень, розміри яких зростають зі зростанням дози. Це пояснюється виходом на границю розподілу водню, прониклого в підкладинку. Статистична обробка мікроінтерферограм поверхні плівки дозволила розрахувати силову та енергетичну характеристики адгезії плівок до підкладинок, а також отримати рівняння кінетики росту бульбашки на границі розподілу та зробити оцінку газокінетичних характеристик.

**Ключові слова:** газовиділення, тонкі плівки, протонне опромінення, адгезія.

The processes of the stimulated gas release and gas blister growth are investigated at an interface of thin-film systems. The relationship of these processes to the adhesion of a system is established. A method to determine the adhesion and to compute the adhesion characteristics in the film-substrate system is described. Using the results of this study carried out a series of practical approaches is proposed to measure the adhesion of thin films to substrates with the method of stimulated gas release.

**Keywords:** gas release, thin film, proton irradiation, adhesion.

Установлено, что тонкопленочные устройства изменяют свои характеристики при эксплуатации в зоне протонного излучения. В частности, повышение шероховатости внешней поверхности является причиной ухудшения зеркальности устройств, а деформирование компонентов тонкопленочной системы (ТПС) приводит к изменению их адгезионных характеристик [1], что в свою очередь влияет на долговечность и надежность работы тонкопленочных устройств. Эти изменения могут быть связаны с ионно-стимулированным газовыделением на поверхности раздела, что делает необходимым изучение влияния протонного излучения на свойства ТПС.

В работе исследовали процесс пограничного газовыделения в тонкопленочной системе Ag-SiO<sub>2</sub> под действием облучения иона-

ми водорода энергией 1 МэВ флюенсом  $1 \cdot 10^{13} - 1 \cdot 10^{15}$  ион·см<sup>-2</sup>. Пленки серебра толщиной ~100 нм наносили на стеклянные подложки методом вакуумного испарения. Наблюдения за образовавшимися на поверхности раздела газовыми пузырями и определение их параметров производили на микроинтерферометре Линника. Адгезию ТПС измеряли методом нормального отрыва.

В ходе проведенных исследований установлено, что протонное облучение инициирует образование на границе раздела пленка-подложка мелких сферических образований (рис. 1), размеры которых возрастают с увеличением дозы облучения. Обнаруженный эффект объясняется тем, что водород, внедренный в подложку в процессе бомбардировки (пробег протонов в ТПС составляет ~10 мкм), с увеличением дозы начинает мигри-

ровать в подложке с последующим выходом в окружающую среду через различные стоки. При этом часть водорода перемещается к поверхности раздела пленка-подложка, являющейся одним из таких стоков.

Миграция водорода приводит к скоплению газа вблизи поверхности подложки и последующему выходу на границу раздела, когда давление с его стороны позволяет преодолеть силы сцепления пленки с подложкой. Очевидно, что дозы облучения, при которых на поверхности раздела появляются сферические образования, должны быть тем больше, чем выше исходная адгезия, что и наблюдается в эксперименте [2]. Этот факт, а также значительное (на 3 порядка) превышение диаметров пузырей над толщиной пленки свидетельствует об образовании газовых пузырей преимущественно в межфазном пространстве.

Одним из возможных источников образования пузырей на границе раздела являются газовые включения в стекле. Для выявления природы газа в пузырях пленки облучались ионами как водорода, так и гелия, незначительно отличающимися по механизму воздействия на газовые включения в стеклянной подложке. При облучении ионами гелия флюенсом  $1 \cdot 10^{16}$  ион·см<sup>-2</sup> газовые пузыри на границе раздела отсутствовали, в то время как при облучении протонами они появлялись уже при флюенсах  $2 \cdot 10^{13}$  ион·см<sup>-2</sup>. Этот факт объясняется известным различием в поведении внедренных в подложку водорода и гелия [3]. При протонном облучении внедренный газ стремится выйти из подложки, в результате чего через некоторое время после начала облучения устанавливается стационарный

поток выходящего из подложки водорода, направленный навстречу падающему пучку. В то же время внедренный гелий удерживается в подложке, что приводит к образованию в имплантированном слое газонаполненных пузырьков, размер которых растет с повышением дозы облучения [4]. Таким образом, результаты экспериментов свидетельствуют о выходе на границу раздела водорода при протонном облучении. Газовые включения в подложке не участвуют в процессе пузыреобразования на границе раздела.

Анализ облученных ТПС подтверждает гомогенное зарождение газовых пузырей, которые растут при повышении дозы. При этом происходит образование более крупных пузырей за счет мелких соседей. Восстановление сферичности пузырей достигается вследствие минимизации площади их поверхности. С повышением дозы продолжается рост пузырей благодаря диффузионному потоку выходящего из подложки водорода и поглощению мелких соседей. Одновременно некоторые соседние пузыри близких размеров могут коалесцировать с появлением “гантельных” образований. При достижении размера 0,2 – 0,3 мм в диаметре пузыри лопаются.

В результате статистической обработки микроинтерферограмм различных участков поверхности облученной пленки (рис. 2) установлено, что повышение флюенса с  $1 \cdot 10^{14}$  до  $1 \cdot 10^{15}$  ион·см<sup>-2</sup> вызывает увеличение диаметра пузырей с 5 – 30 до 60 – 100 мкм, соответственно.

О преимущественной сферичности пузырей свидетельствует прямолинейный характер зависимости квадратов диаметров интер-

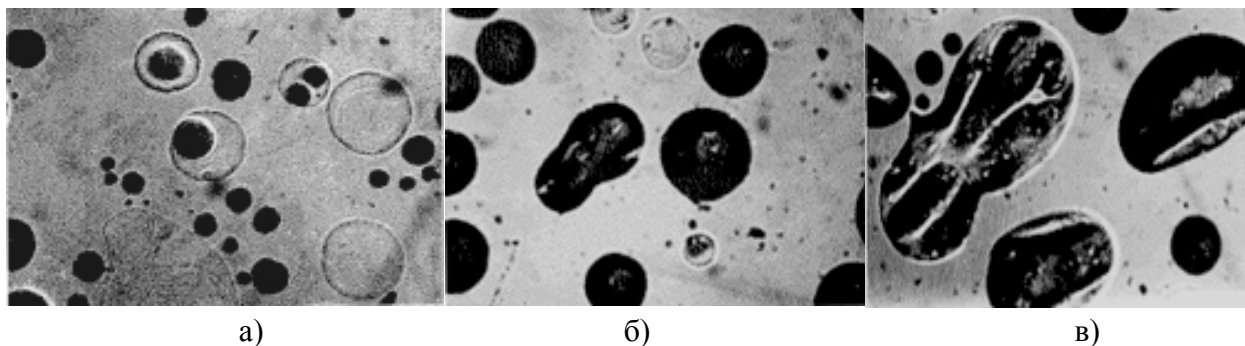


Рис. 1. Микрофотографии плёнок с начальной адгезией  $1 \cdot 10^5$  Па после облучения протонами флюенсом:  $2 \cdot 10^{13}$  ион·см<sup>-2</sup> – а),  $2 \cdot 10^{14}$  ион·см<sup>-2</sup> – б),  $1 \cdot 10^{15}$  ион·см<sup>-2</sup> – в);  $\times 200$ .

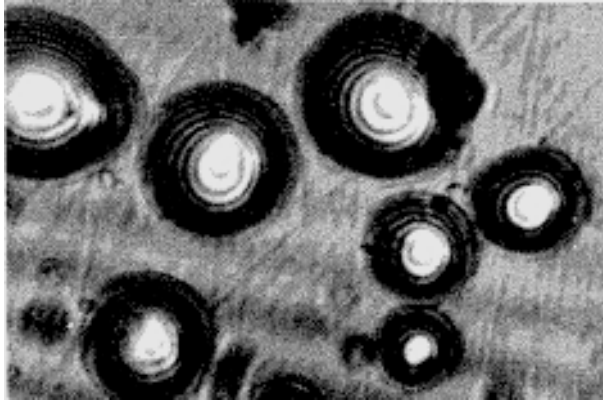


Рис. 2. Интерферограмма участка поверхности плёнки после облучения протонами флюенсом  $1 \cdot 10^{15}$  ион·см<sup>-2</sup> × 1000.

ференционных колец от их номеров. Отношение радиуса пузыря  $r$  к радиусу его кривизны  $R_k$  (рис. 3) есть величина постоянная для всех пузырей и равная  $r/R_k = \psi = 0,10 \pm 0,01$ .  $R_k$  определяется соотношением

$$R_k = \frac{R_m^2 - R_n^2}{\lambda(m - n)}, \quad (1)$$

где  $R_m$  и  $R_n$  – радиусы колец Ньютона,  $m$  и  $n$  – номера колец;  $\lambda$  – длина волны падающего света.

Из сферичности пузырей и постоянства  $\psi$  следует однородность структуры пленка-подложка по поверхности раздела, а малость относительных растяжений ( $\Delta r/r \sim 10^{-3}$ ) свидетельствует об упругом характере деформации пленки [5].

Малая скорость процесса газовой выделению дает возможность использовать статическое приближение для расчета баланса сил на границе раздела, а также предполагает термодинамическую стабильность данного процесса.

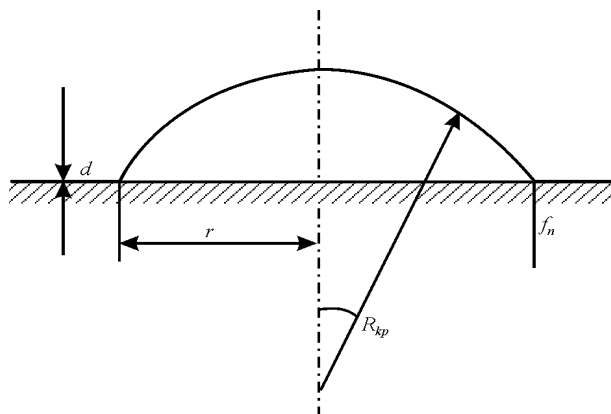


Рис. 3. Схема газового пузыря, образовавшегося на границе раздела пленка-подложка в результате протонного облучения:  $r$  – радиус пузыря;  $R_{кр}$  – радиус кривизны пузыря (радиус сферы).

Эти соображения позволяют провести расчет силовой и энергетической характеристик адгезии пленки к подложке, а также получить уравнение кинетики роста пузыря на границе раздела и сделать оценку газокинетических характеристик [6]. При этом используется известное выражение [7], связывающее давление  $P$  газа в пузыре с упругими характеристиками пленки:

$$P = \frac{4dH_n}{r_n^2} \left( \tau_0 + \frac{2}{3} \cdot \frac{E}{1-\mu} \cdot \frac{H_n^2}{r_n^2} \right), \quad (2)$$

где  $d$  – толщина пленки,  $H_n$  – высота пузыря,  $\tau_0$  – внутреннее растягивающее напряжение в пленке,  $E$  – модуль Юнга материала пленки,  $\mu$  – коэффициент Пуассона.

Теоретическим путем ранее было показано [8], что адгезионные характеристики определяются соотношениями:

$$f_n = d\psi \left( \tau_0 + \frac{2}{3} \cdot \frac{E}{1-\mu} \cdot \frac{\psi^2}{4} \right); \quad (3)$$

$$W = \frac{f_n \psi}{4}, \quad (4)$$

где  $f_n$  – сила отрыва на единицу длины окружности пузыря,  $W$  – энергия адгезии.

Зная численные значения упругих констант  $E = 8,3 \cdot 10^{10}$  Па,  $\mu = 0,37$  и  $\tau_0 = 4 \cdot 10^7$  Па (определено с помощью методики рентгеновской тензометрии), по формулам (3) и (4) находим  $f_n = 0,2$  Н·м<sup>-1</sup> и  $W = 0,05$  Дж·м<sup>-2</sup>.

Полученные результаты позволяют оценить характер взаимодействия на границе пленка-подложка. Численные значения энергии и силы отрыва, рассчитанные в эксперименте, по порядку величины соответствуют электростатическому взаимодействию между двумя плоскими поверхностями пленка-подложка, что подтверждает высказанные ранее предположения об электростатическом характере адгезионного взаимодействия в рассмотренной системе.

Результаты исследований позволяют предложить ряд способов измерения адгезии пленок к подложкам методом стимулированного газовой выделению.

а) Способ определения адгезии тонкопленочных систем при радиационном воздействии методом ионностимулированного газо-

выделения основан на описанной выше последовательности операций и расчетов и заключается в облучении ионами водорода тонкопленочной системы после ее изготовления с последующим анализом и расчетом параметров газовых пузырей. Уникальность предлагаемого способа состоит в том, что благодаря одновременности протекания процессов облучения и пузыреобразования определяется адгезия в тонкопленочной системе, находящейся непосредственно в зоне облучения.

б) Способ определения адгезии тонкопленочных систем методом термостимулированного газовыделения заключается в предварительном насыщении подложки газом любым из известных методов, например, вбиванием газовых ионов в подложку или путем термической сорбции, последующем нанесении на нее тонкой пленки и прогреве тонкопленочной системы до образования на границе раздела газовых пузырей. В этом случае преодоление сцепления пленки с подложкой газом происходит в отсутствие радиационного воздействия, что позволяет, в отличие от предыдущего способа, рассчитать адгезионные характеристики без учета влияния облучения.

Анализ формулы (3) показывает, что в выражении в скобках второе слагаемое значительно больше первого, что обусловлено фактором образования пузырей в результате давления газа на границе раздела, а не действием внутренних напряжений в пленке. Отсюда  $f_n \sim \psi^3$ . Для пузырей одинакового размера ( $\tau_0 = \text{const}$ )  $f_n \sim 1/R_k^3$ . А из формулы (1) следует, что  $f_n \sim 1/(R_m^2 - R_n^2)$ . Это означает, что количество (или частота) колец Ньютона в пузыре (рис. 4) характеризует прочность сцепления пленки с подложкой в представляемом методе.

Параллельным использованием методов ионно- и термостимулированного газовыделения подтверждена теоретическая модель изменения зарядового состояния тонкопленочной системы в зоне излучения. Этой моделью прогнозировалась резкое уменьшение адгезии в зоне излучения по сравнению с начальной в случае, когда адгезия в тонкопленочной системе обусловлена силами электрической природы, и последующее ее незна-

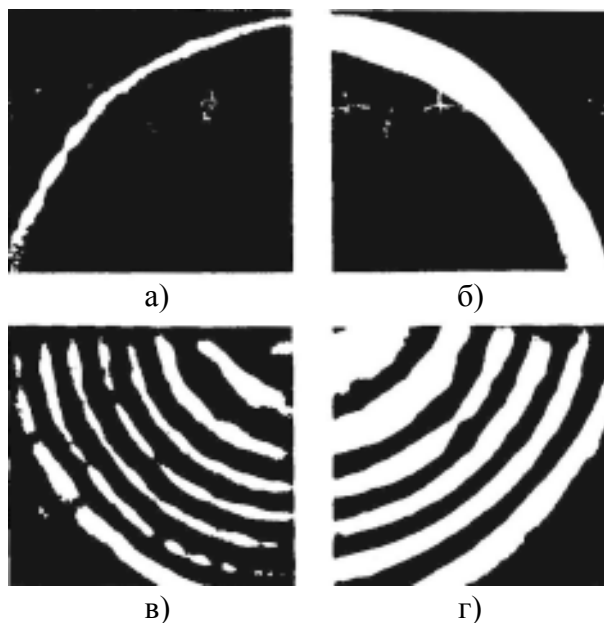


Рис. 4. Интерферограммы пузырей для плёнок с различной адгезией;  $\times 2000$ .

чительное повышение после окончания облучения. Это объясняется тем, что существующий на границе раздела двойной электростатический слой, обуславливающий сцепление пленки с подложкой, при облучении исчезает как заряд на обкладках конденсатора в поле излучений. Остаточная адгезия после прекращения облучения объясняется частичной поляризацией заряда на границе раздела.

Уравнение кинетики роста пузыря

$$\frac{dr_n}{dt} = \frac{3}{2} \cdot \frac{kTj(t)}{\psi f_n} \cdot r_n, \quad (5)$$

где  $j(t)$  – плотность диффузионного потока.

Измеряя среднюю скорость роста пузыря  $dr_n/dt$ , по формуле (5) можно найти среднее значение  $j$  и относительное количество газа  $\beta$  вышедшего из подложки на границу раздела. В условиях проведенного эксперимента эти величины равны  $j = 4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  и  $\beta = 0,25$  соответственно.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. При протонном облучении тонкопленочных систем на границе раздела образуются газовые пузыри, размеры которых возрастают с увеличением дозы. Миграция водорода в пограничной области приводит к скоплению газа вблизи поверхности подложки и последующему его выходу на границу раздела.

2. Установлено соответствие между процессом пограничного газовыделения и адгезионными характеристиками системы.
3. Проведен расчет силовой и энергетической характеристики адгезии.
4. Предлагается ряд способов измерения адгезии тонких пленок к подложкам методом стимулированного газовыделения.
3. Kaletta D. Radiation Effects. – 1980. – Vol. 47. – P. 237.
4. Неклюдов И.М., Рыбалко В.Ф. и др.//Поверхность. – 1983. – № 12. – С. 48.
5. Палатник Л.С., Федоров Г.В., Ильинский А.И. //ФММ. – 1961. – № 5. – С. 815 .
6. Борисенко Ю.Н., Грицына В.Т.//Поверхность. – 1984. – №. 11. – С. 129.
7. Beams J.W., Neugebauer C.A., Newkirk J.B., Vermilyea D.A. Structure and Properties of Thin Films. /Eds. John Wiley. – New York, 1959. – 183 p.
8. Borisenko Yu.N., Gritsyna V.T.//J. of Adhesion Sci. And Technol. – 1995.– Vol. 9, № 11.– P. 49.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Борисенко Ю.Н., Войцень В.С., Грицына В.Т., Орлинский Д.В.//Изв. РАН. Сер.физ. – 1994. – Т. 58, № 12. – С.185.
2. Борисенко Ю.Н., Грицына В.Т., Першин В.Ф. //ВАНТ. – 1974. – Вып. 1. – С. 97.