

ИССЛЕДОВАНИЕ КАЧЕСТВА ПОВЕРХНОСТИ ТОНКИХ ПЛЕНОК В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ИХ ТЕРМИЧЕСКИХ ОБРАБОТОК И УСЛОВИЙ ВЫРАЩИВАНИЯ

П. А. БЕЗИРГАНЯН, М. А. ЦЕРУНЯН, С. А. АДАМЯН, М. С. ДАДАЯН

Изучена зависимость качества поверхности тонких металлических пленок от условий их выращивания, механических и термических обработок. Для этого используется метод полного внешнего отражения рентгеновских лучей от поверхности пленок. Показано, что качество поверхности тонких пленок сильно зависит от температуры подложки, скорости испарения, скорости охлаждения и механических напряжений.

Физические свойства тонких пленок во многом зависят от состояния их поверхности, и целью настоящей работы является изучение зависимости качества поверхности тонких металлических пленок от условий их выращивания и от их последующих механических и термических обработок.

Для исследования используется метод полного внешнего отражения рентгеновских лучей от поверхности пленок. Интенсивность полного внешнего отражения рентгеновских лучей сильно зависит от качества отражающей поверхности (зеркала) [1, 2]. Увеличение шероховатости этой поверхности приводит к резкому уменьшению интенсивности полного внешнего отражения и увеличению интенсивности диффузного рассеяния (фона). Эффект такой зависимости интенсивности полного внешнего отражения от гладкости отражающей поверхности может быть использован для исследования состояния отражающей поверхности.

Обычно гладкость поверхности зеркала исследуют оптическими методами, однако в особых случаях, когда требуются более высокие точности исследования качества поверхности, приходится прибегать к рентгеновским методам исследования. Это связано с тем, что длина волны рентгеновского излучения на три порядка меньше длины световой волны и, следовательно, точность исследования рентгеновскими методами по крайней мере на два порядка выше оптических [3, 4].

В излагаемой работе исследована зависимость интенсивности полного внешнего отражения пленок:

- 1) от некоторых параметров выращивания пленок (температуры подложки и скорости испарения исходного материала),
- 2) от длительности и температуры отжига готовой пленки,
- 3) от тепловых напряжений (скорости охлаждения пленок и их температурного градиента),
- 4) от механических напряжений (изгиб образцов).

Некоторые из перечисленных вопросов (влияние температурного градиента и механических напряжений) были исследованы и для массивных образцов. Для исследования использован метод ПВО монохроматизированного медного K_{α_1} -излучения. Работа выполнена на рентгеновском дифрактометре ДРОН-1. Схема опыта показана на рис. 1.



Рис. 1. Ход рентгеновских лучей и схема эксперимента.

1. Зависимость интенсивности полного внешнего отражения рентгеновских лучей от температуры подложки пленок

Исследования показывают, что качество поверхности тонких пленок, а следовательно, и интенсивность полного внешнего отражения рентгеновских лучей от их поверхности сильно зависят от температуры подложки в процессе выращивания пленки.

Для исследования были изготовлены тонкие пленки металлов *Au*, *Ag*, *Fe*, *Ni*, *Cu* и *Al* с толщиной около 700—750 Å. Эти пленки были изготовлены вакуумным испарением на установке типа НВА-1 при вакууме 10^{-5} тор. Они были выращены при двух различных температурах подложки — при комнатной и высокой (100—150°C), причем остальные параметры выращивания в этих двух случаях были строго одинаковыми.

Исследование интенсивности полного внешнего отражения от этих образцов показало, что качество поверхности пленок *Fe*, *Ni*, *Cu* и *Al* в случае нагретых стеклянных подложек получается лучше, чем при комнатной температуре. Поверхности пленок *Ag*, *Au*, наоборот, получаются лучше при комнатной температуре. На рис. 2а показаны интенсивности полного внешнего отражения от пленок *Ag* и *Au*, полученных на ненагретых стеклянных подложках, на рис. 2в показаны интенсивности для нагретых до 100—150°C подложек. На этих кривых под малыми углами наблюдаются острые максимумы, происхождение которых объяснено в работе [5].

Были исследованы также поверхности тонких пленок, полученных при более высоких температурах подложки (200—300°C). Исследования показали, что с дальнейшим повышением температуры качество поверхности как пленок *Ag* и *Au*, так и *Fe*, *Ni*, *Cu* и *Al* ухудшается.

Повышая температуру стеклянной подложки в процессе выращивания пленки, мы получаем более агломерированную структуру, которая приводит к уменьшению интенсивности отражения.

Было исследовано качество поверхности пленок в зависимости от скорости испарения исходного материала. Исследования показали, что качество поверхности пленок существенно зависит от скорости ее выращивания: малая скорость выращивания вызывает ухудшение качества поверхности пленки, а увеличение скорости выращивания приводит к улучшению качества поверхности. Влияние скорости осаждения на качество поверхности сильнее влияния температуры подложки.

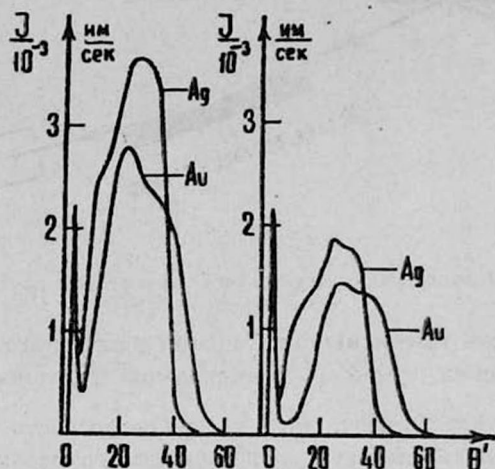


Рис. 2а. Интенсивности ПВО от пленок *Ag* и *Au*, полученных при комнатной температуре подложки.

Рис. 2б. Интенсивности ПВО от пленок *Ag* и *Au*, полученных при температуре подложки 100—150°C.

2. Зависимость интенсивности полного внешнего отражения рентгеновских лучей от длительности и температуры отжига пленки

Для исследования состояния поверхности в зависимости от длительности и температуры отжига нами определены интенсивности ПВО от указанных выше пленок после отжига. Отжиг производился в следующих режимах: пленки *Ag*, *Au*, *Fe*, *Ni*, *Cu* и *Al*, полученные на стеклянных и кварцевых подложках, отжигались при температурах 100, 200°C и выше в течение 2, 5 и 12 час.

При отжиге в течение 2 час при температуре 100°C интенсивность ПВО от пленок *Al*, *Cu*, *Fe* и *Ni* значительно увеличивалась, а от пленок *Ag* и *Au* — увеличивалась незначительно. На рис. 3а показано изменение интенсивности ПВО от этих пленок до отжига, а на рис. 3в — после отжига.

После отжига в течение 5 час при температуре 100°C интенсивность ПВО от пленок *Al*, *Cu*, *Fe* и *Ni* увеличивалась, тогда как интенсивность отражения от пленок *Ag* и *Au* уменьшалась.

После отжига в течение 2 час при температуре 200 °C интенсивность ПВО от пленок *Al*, *Cu*, *Fe* и *Ni* уменьшалась, а от пленок *Ag* и *Au* — уменьшалась еще сильнее. После пятичасового отжига при температуре 200°C интенсивность ПВО от всех этих пленок уменьшалась, и это уменьшение было особенно заметно у *Ag* и *Au*. После отжига более 5 час при температуре выше 200°C наблюдалось общее падение интенсивности у всех пленок.

Исследовалась также интенсивность отражения от пленок, полученных при различных температурах подложки, в зависимости от длительности и

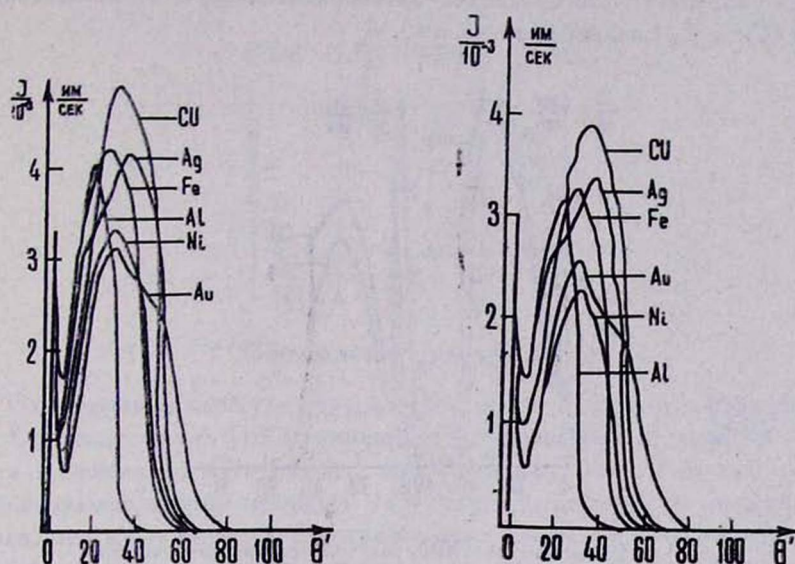


Рис. 3а. Интенсивность ПВО до отжига.

Рис. 3в. Интенсивность ПВО после отжига.

температуры отжига. Исследования показали, что интенсивность отражения от пленок, полученных на нагретых подложках (температура подложки до 100°C), после двухчасового отжига при 100°C не изменяется в случае пленок *Al*, *Fe*, *Ni* и *Cu*, а для пленок *Ag* и *Au* наблюдается уменьшение интенсивности. После более длительного отжига при той же температуре наблюдается уменьшение интенсивности отражения от всех пленок (особенно *Ag* и *Au*). В случае более сильно нагретых подложек (температура подложки 200°C) интенсивность ПВО падает для всех пленок.

3. Зависимость интенсивности ПВО от скорости охлаждения пленок и от температурного градиента

Для исследования влияния тепловых напряжений на качество поверхности пленок была исследована зависимость интенсивности ПВО рентгеновских лучей от скорости охлаждения *Au*-, *Ag*-, *Al*-, *Cu*-, *Fe*- и *Ni*-пленок, осажденных на стеклянных подложках, и от их температурного градиента. Во-первых, партия пленок была нагрета в вакууме до 300°C , затем часть из них была быстро охлаждена, а вторая часть — медленно (в течение 5 час). Исследования показали, что интенсивность отражения от быстро охлажденных пленок гораздо меньше, чем интенсивность ПВО от медленно охлажденных.

Далее, была исследована зависимость интенсивности ПВО от наличия температурного градиента пленки. Для этой цели один конец пленки охлаждался с помощью жидкого азота до -100°C , а другой — нагревался до 100°C (градиент порядка $40^\circ\text{C}/\text{см}$). Исследования показали, что при

наличии температурного градиента интенсивность ПВО от исследованных пленок (Cu и Ag) падает (рис. 4а и в).

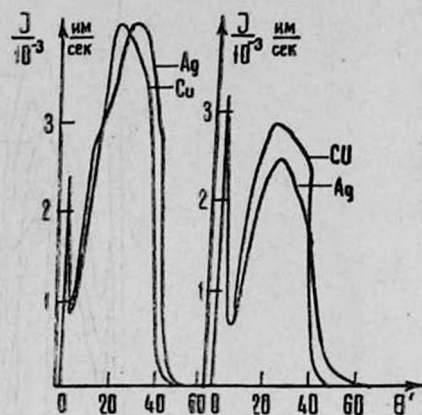


Рис. 4а. Интенсивность ПВО без температурного градиента.

Рис. 4в. Интенсивность ПВО с температурным градиентом.

Была исследована также интенсивность ПВО от массивных образцов при наличии градиента (40 град/см). Оказалось, что и в этом случае температурный градиент уменьшает интенсивность отражения. Во всех указанных случаях с исчезновением градиента интенсивность ПВО восстанавливалась — увеличиваясь, она доходила до интенсивности при комнатной температуре.

4. Зависимость интенсивности ПВО от механических напряжений

Для исследования зависимости качества поверхности от механических напряжений определялось изменение интенсивности ПВО в зависимости от изгиба пленки.

Для этой цели пленки Ag и Cu, выращенные на тонких стеклянных подложках, вместе с подложкой изгибались в пределах упругости подложки, а затем снимались все действующие силы. Производился изгиб двух видов: пленка вместе с подложкой изгибалась так, что в первом случае свободная поверхность пленки оказывалась выпуклой, а во втором — вогнутой.

Результаты исследований приведены в таблице, где R — радиус кривизны поверхности в метрах, J_1 — интенсивность ПВО после изгиба в первом случае, а J_2 — во втором случае, J_0 — интенсивность ПВО до изгиба ($J_0 = 4 \cdot 10^4$ им/сек).

Как видно из таблицы, интенсивность ПВО в первом случае (выпуклая поверхность) уменьшается с уменьшением радиуса кривизны, а во втором случае (вогнутая поверхность) — увеличивается, и для некоторого значения кривизны получается максимальная интенсивность отражения. Дальнейшее уменьшение радиуса кривизны приводит к резкому уменьшению ПВО.

Таблица

R (м)	$\frac{J_1}{J_0} \cdot 100\%$	$\frac{J_2}{J_0} \cdot 100\%$
9	93,6	100
4,5	96,8	101,5
3	95,8	102,25
2,25	95,4	108,6
1,8		103
1,5	94,4	100
1,28		98
1,125	94	

Обсуждение результатов

Исследования качества поверхности пленок показали следующее.

1. Интенсивность ПВО уменьшается с уменьшением скорости выращивания (осаждения). Это значит, что малая скорость нанесения приводит к образованию крупнозернистой структуры и шероховатости поверхности пленок, что и сказывается на отражающих свойствах поверхности. Увеличение скорости выращивания приводит к уменьшению шероховатости поверхности и обеспечивает получение мелкозернистой структуры, что приводит к увеличению интенсивности ПВО.

Действительно, при очень низких скоростях осаждения скорость образования зародыша мала и поэтому начинается преимущественный рост кристаллографических плоскостей с наименьшей свободной энергией. В результате пленки получаются шероховатыми и рыхлыми. С увеличением скорости испарения (осаждения) атомы под влиянием вновь поступающих атомов начнут закрепляться в случайных положениях, и так как для перераспределения этих закрепленных атомов требуется значительно большая энергия активации, а испаренные атомы сталкиваются с подложкой в большинстве случаев неупруго с передачей кинетической энергии решетке подложки, и перемещения этих атомов затрудняются, то средний размер кристаллитов уменьшается и увеличивается гладкость поверхности.

2. С увеличением температуры подложки подвижность атомов увеличивается и их перераспределение облегчается; в результате этого размер кристаллитов увеличивается, а число дефектов в решетке уменьшается. Увеличение размеров кристаллитов приводит к ослаблению интенсивности ПВО, а уменьшение дефектов, наоборот, увеличивает интенсивность отражения. При малых температурах (100°C) второй механизм преобладает, что приводит к общему увеличению интенсивности. В дальнейшем начинается преобладание первого механизма, что приводит к падению интенсивности.

Что касается атомов Ag и Au , то силы сцепления их с поверхностью стекла очень малы. Поэтому сначала эти атомы стремятся скапливаться в островки, пленки их получаются крупнозернистыми и интенсивность отражения мала. При повышении температуры подложки до 100°C размеры кристаллитов несколько изменяются (увеличиваются), что приводит к незначительному изменению (ослаблению) интенсивности ПВО. Дальнейшее ослабление интенсивности объясняется так же, как и у других металлов.

3. Почти так же объясняется падение интенсивности отражения от пленок при отжиге. Действительно, после отжига при температурах до 100°C происходит некоторое улучшение качества поверхности пленок за счет исчезновения дефектов, тогда как увеличение размеров кристаллитов не так заметно. Дальнейшее увеличение температуры отжига приводит к ослаблению интенсивности ПВО, так как размеры зерен и рыхлость растут.

4. При медленном охлаждении пленок происходит малое падение интенсивности ПВО, а при быстром охлаждении между зернами и между пленкой и подложкой возникают напряжения, которые приводят к ухудшению поверхности и уменьшению интенсивности ПВО.

5. Уменьшение интенсивности с уменьшением радиуса изгиба при выпуклой поверхности объясняется остаточной выпуклостью и шероховатостью поверхности пленки. Увеличение интенсивности с уменьшением радиуса изгиба при вогнутой поверхности объясняется, в основном, остаточной вогнутостью поверхности пленки — происходит фокусировка отраженных лучей. В этом случае для определенного радиуса изгиба ($R=2,25$ м) получается максимальное отражение. Это объясняется тем, что фокус отраженных волн получается точно у окна сцинтилляционного счетчика.

Ереванский государственный
университет

Поступила 8.V.1974,
после переработки 6.VII.1975

ЛИТЕРАТУРА

1. С. Метфессель. Тонкие пленки. Изготовление и измерение, Гостехиздат, М.—Л., 1963.
2. М. А. Блохин. Физика рентгеновских лучей, М., 1957.
3. Г. Хасс. Физика тонких пленок, Изд. Мир, М., 1967, т. 1.
4. Л. Холлэнд. Нанесение пленок в вакууме, М., 1963.
5. М. А. Церунян, Ж. К. Манучарова. Молодой научный сотрудник ЕГУ, № 12 (1970).

ՔԱՐԱԿ ԹԱՂԱՆԹՆԵՐԻ ՄԱԿԵՐԵՎՈՒՅԹԻ ՈՐԱԿԻ ԿԱԽՈՒՄԸ ԶԵՐՄԱՅԻՆ ՄՇԱԿՈՒՄԻՑ ԵՎ ԱՃԵՑՄԱՆ ՊԱՅՄԱՆՆԵՐԻՑ

Պ. Հ. ԲԵԶԻՐԳՅԱՆԱՆ, Մ. Հ. ՇԵՐՈՒՆՅԱՆ, Ս. Հ. ԱԳԱՄՅԱՆ, Մ. Ս. ԴԱԴԻՅԱՆ

Ուսումնասիրված է բարակ թաղանթների մակերեսի որակի կախումը աճեցման պայմաններից, մեխանիկական և ջերմային մշակումից: Ուսումնասիրությունները կատարված են բարակ թաղանթներից ռենտգենյան ճառագայթների լրիվ արտաքին անդրադարձման մեթոդով: Ցույց է տրված, որ բարակ թաղանթների մակերեսի որակը խիստ կերպով կախված է տակդիրի ջերմաստիճանից, գոլորշիացման արագությունից և մեխանիկական լարումներից:

A STUDY OF SURFACE FINENESS OF THIN FILMS DEPENDING ON THE CONDITIONS OF GROWTH AND HEAT TREATMENT

P. H. BEZIRGANYAN, M. H. TSERUNYAN, S. A. ADAMYAN, M. S. DADAYAN

The dependence of the surface fineness of thin metallic films on the conditions of the mechanical growth and heat treatment is studied by means of the method of complete X-ray reflection from the surface of the film. The study shows, that the surface fineness of thin films strongly depends on the temperature of the substrate, the rate of evaporation and the cooling, and on mechanical tensions.

