

## **Влияние облучения высокоэнергетическими электронами на адгезию вольфрамовой плёнки к кремниевой подложке**

**А. В. Артамонов, Г. Г. Бондаренко, М. М. Якушкин**

---

Используя метод неразрушающего контроля адгезии границы контакта плёнка – подложка по величине тепловой проводимости  $\alpha_{12}$ , проведено исследование изменения  $\alpha_{12}$  для системы вольфрамовая плёнка (0,8 мкм) – кремниевая подложка (0,7 мм) после облучения высокоэнергетическими электронами. Показано, что облучение приводит к увеличению тепловой проводимости границы раздела и улучшению адгезионных характеристик.

---

### **Введение**

Возможность получения новых материалов на основе тонкопленочных многослойных систем с высокой степенью адгезии на границе раздела в настоящее время интенсивно исследуется экспериментально и теоретически [1, 2]. Одним из способов получения таких материалов является облучение слоистых систем высокоэнергетическими электронами [3, 4].

В работах, посвященных исследованиям воздействия высокоэнергетических электронов на слоистые системы, до сих пор основное внимание уделялось изучению аномальной подвижности атомов на границе раздела [3 – 7] и не рассматривалось изменение структуры самой границы раздела при облучении. В [8] аномальный массоперенос был связан с воздействием высокоэнергетических электронов непосредственно на границу раздела. Это позволяет предположить, что облучение должно приводить также к изменению адгезионных характеристик слоистых систем. В связи с этим цель работы — исследование адгезионных характеристик системы W плёнка (0,8 мкм) – Si подложка (0,7 мм) после облучения релятивистскими электронами.

### **Методическая часть**

Количественная оценка адгезионных характеристик проводилась фототермическим методом с использованием модулированного лазерного луча.

Метод основан на нахождении тепловой проводимости  $\alpha_{12}$  границы раздела по изменению конфигурации температурного поля на поверхности образца.

Влияние неидеальности теплового контакта на границе раздела слоистых систем на конфигурацию температурного поля рассматривалось в связи с разработкой процесса лазерной термообработки [9, 10] и развитием методов термоволновой лазерной дефектоскопии [11]. Было показано [12], что количественная оценка адгезионных характеристик плёнок по величине тепловой проводимости наиболее эффективна при использовании излучения лазеров, работающих в периодическом импульсном режиме в радиочастотном диапазоне следования импульсов лазерной генерации. Такой режим работы лазеров позволяет перейти к исследованию адгезионных характеристик микронных плёнок и использовать для анализа температурного поля метод синхронного детектирования, который позволяет исключить случайную ошибку из результатов измерений. При сканировании лазерным пучком по поверхности пленки использовалось излучение с гауссовым распределением плотности мощности. Численное исследование на ЭВМ соответствующей трёхмерной тепловой задачи показало, что за время ~5 мин устанавливается квазистационарный тепловой режим, при котором распределение температуры в центре теплового источника зависит только от толщины образца, а влиянием неравномерности

распределения теплового потока по поверхности можно пренебречь. Поэтому для вывода расчетных формул, описывающих влияние тепловой проводимости на квазистационарный тепловой режим, и определения величины  $\alpha_{12}$  была использована одномерная модель.

Система, моделирующая осциллирующую составляющую  $\Theta_j(t, z)$  теплового процесса, возникающего под действием периодического импульсного излучения лазера в центре теплового источника, имеет вид:

$$\begin{cases} \frac{\partial \Theta_j}{\partial t} = a_j \frac{\partial^2 \Theta_j}{\partial z^2}; \Theta_j(0, z) = 0, \quad 0 \leq t < \infty, \\ \left( -\lambda_1 \frac{\partial \Theta_1}{\partial z} + \alpha \Theta_1 \right)_{z=0} = \bar{q}(t), \quad \Theta_2(t, \infty) = 0. \end{cases} \quad (1)$$

$$\bar{q}(t) = q(t) - \bar{q},$$

$$q(t) = \begin{cases} q_0, & 0 \leq t \leq t_u; \\ 0, & t_u < t < t_n \end{cases}; \quad q(t) = q(t + \nu t_n), \quad \nu = 1, 2, \dots$$

Здесь  $\bar{q} = \gamma q_0$ ,  $\gamma = t_u / t_n$  — коэффициент заполнения,  $\alpha = 4\sigma \varepsilon \bar{T}_1(0)$  — линеаризованный коэффициент теплопотери с поверхности образца,  $\bar{T}_1(0)$  — средняя температура на поверхности плёнки, индексы  $j = 1, 2$  относятся к плёнке и подложке соответственно. Тепловой контакт на границе двух сред  $z = \xi$  считаем неидеальным:

$$\begin{cases} \left( \lambda_1 \frac{\partial \Theta_1}{\partial z} - \lambda_2 \frac{\partial \Theta_2}{\partial z} \right)_{z=\xi} = 0, \\ \left[ \lambda_1 \frac{\partial \Theta_1}{\partial z} + \alpha \Theta_1 + \alpha_{12} (\Theta_1 - \Theta_2) \right]_{z=\xi} = 0. \end{cases} \quad (2)$$

Величина  $\alpha_{12}$  является количественной оценкой неидеальности контакта и характеризует тепловую проводимость границы раздела. Обратная величина  $\alpha_{12}^{-1} = R_{12}$  есть тепловое сопротивление границы раздела.

Решение задачи (1), полученное операционным методом, имеет вид:

$$\begin{aligned} \Theta_1(t, z) = & \frac{2}{\alpha} \sum_{k=1}^{\infty} \operatorname{Re} \left\{ A_k \operatorname{ch} \left( z \sqrt{i\omega_k / a_1} \right) + \right. \\ & \left. + B_k \operatorname{ch} \left[ (\xi - z) \sqrt{i\omega_k / a_1} \right] \right\} \frac{c_k}{\Delta_k} \exp(i\omega_k t), \\ & (0 \leq z \leq \xi), \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \Theta_2(t, z) = & \frac{2}{\alpha} \sum_{k=1}^{\infty} \operatorname{Re} \left\{ G_k \exp \left[ -(z - \xi) \sqrt{i\omega_k / a_2} \right] \right\} \times \\ & \times \frac{c_k}{\Delta_k} \exp(i\omega_k t), \quad (\xi \leq z \leq \infty), \end{aligned} \quad (4)$$

$$A_k = - \left( 1 + \frac{\alpha}{\alpha_{12}} \right),$$

$$B = \left[ \left( d + \frac{\eta_k}{\alpha_{12}} \right) \operatorname{sh}(\xi \varphi_k) + \left( 1 + \frac{\alpha}{\alpha_{12}} \right) \operatorname{ch}(\xi \varphi_k) \right],$$

$$G_k = d \left( 1 + \frac{\alpha}{\alpha_{12}} \right) \operatorname{sh}(\xi \varphi_k),$$

$$\Delta_k = \left[ \frac{\eta_k}{\alpha_{12}} \operatorname{sh}(\xi \varphi_k) + \operatorname{ch}(\xi \varphi_k) \right] \times$$

$$\times \left[ \left( d + \frac{\eta_k}{\alpha_{12}} \right) \operatorname{sh}(\xi \varphi_k) + \left( 1 + \frac{\alpha}{\alpha_{12}} \right) \operatorname{ch}(\xi \varphi_k) \right] -$$

$$- \left( 1 + \frac{\alpha}{\alpha_{12}} \right),$$

$$\varphi_k = \sqrt{i\omega_k / a_1}; \quad \eta_k = \sqrt{i\omega_k / D_1}; \quad d = \sqrt{D_2 / D_1},$$

$$D_{1,2} = \left( \sqrt{\lambda C_p \rho} \right)_{1,2} \text{ — тепловая активность границы}$$

плёнки и подложки,  $c_k$  — коэффициенты Фурье разложения в ряд функции  $\bar{q}(t)$ .

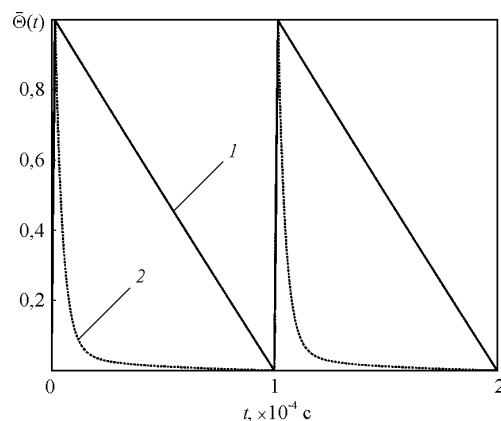


Рис. 1. Форма нормированной осциллирующей составляющей температурного поля  $\bar{\Theta}(t) = \Theta(t) / \Theta_a$  на поверхности образца в зависимости от величины тепловой проводимости  $\alpha_{12}$  границы контакта вольфрамовой плёнки с кремниевой подложкой. 1 —  $\alpha_{12} = 0$ , 2 —  $\alpha_{12} = \infty$ .  $\Theta_a$  — амплитудные значения пульсации температуры. Период следования импульсов лазерной генерации  $t_n = 10^{-4}$  с, длительность импульсов  $t_u = 10^{-6}$  с.

Результаты математического моделирования теплового процесса на поверхности плёнки  $z = 0$  для системы, исследованной в эксперименте, представлены на рис. 1. Для наглядности приведены нормированные кривые  $\bar{\Theta}(t) = \Theta(t, 0) / \Theta_a$ , где  $\Theta_a$  — амплитудные значения пульсации температуры. Расчет проводился для средней температуры  $\bar{T}_1(0) = 1000$  К и двух значений величины тепловой проводимости  $\alpha_{12} = 0$  и  $\alpha_{12} = \infty$ , соответствующих случаям отсутствия и идеального теплового контакта, соответственно. Для значений теплофизических констант были использованы данные [13, 14]. Очевидно, что величина  $\alpha_{12}$  может служить количественной характеристикой адгезии, так как первый случай соответствует отслоению вольфрамовой плёнки от кремниевой подложки, в то время как во втором случае прилегание является идеальным. Как видно из рис. 1, форма осциллирующей составляющей  $\Theta_1(t)$  на поверхности  $x = 0$  существенно зависит от величины тепловой проводимости  $\alpha_{12}$ . Решение обратной задачи позволяет по форме осциллирующей составляющей температурного сигнала найти  $\alpha_{12}$  и тем самым дать количественную оценку адгезионных характеристик границы раздела.

### Экспериментальная часть

Образцы получали путем напыления вольфрама в испарителе магнетронного типа на полированную кремневую подложку толщиной 0,7 мм, предварительно очищенную в среде аргоновой плазмы. В качестве подложки использовали Si (100) марки ЭКЭФ-500. Толщина вольфрамовой плёнки 0,8 мкм контролировалась кварцевым датчиком. Отношение толщины пленки – подложка было равно  $\sim 10^{-3}$ , что позволяло в расчётах считать подложку полуограниченной.

Для облучения образцов использовали линейный ускоритель типа УЭЛВ-10-10 с мощностью пучка электронов 10 кВт. Образцы крепили в специальной термостатированной приставке, позволяющей изменять температуру образца в пределах 300–1800 К. Облучение проводили в вакууме при следующих режимах: энергия электронов — 9 МэВ, плотность тока в пучке — 15 мкА/см<sup>2</sup>, интегральная доза облучения —  $10^{17}$  эл/см<sup>2</sup>. Температура образца составляла 300 К. С целью изучения влияния облучения на адгезию пленки к подложке измерения проводили до и после облучения образцов.

Принципиальная схема установки приведена на рис 2. В качестве источника излучения использовался Nd:YAG-лазер с акустооптическим затвором ( $\lambda = 1,06$  мкм, средняя мощность излучения в одно-

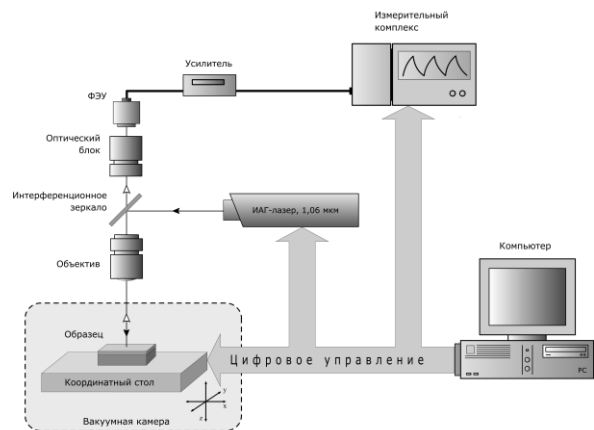


Рис. 2. Схема экспериментальной установки.

модовом режиме 16 Вт, длительность следования импульсов лазерной генерации  $t_u = 1,6$  мкс, частота следования импульсов 10 кГц). Диаметр пятна нагрева составлял  $\sim 50$  мкм. В измерительной части оптической схемы использован блок, состоящий из диафрагмы и расширителя, который позволял исследовать температурное поле в центральной части пятна нагрева диаметром  $\sim 5$  мкм и использовать для расчёта величины тепловой проводимости по форме пирометрического сигнала одномерную модель (1).

С целью автоматизации эксперимента измерительный комплекс установки был выполнен в микросхемном исполнении как программируемый модуль (ПМ), данные которого — значения  $\Theta(t_i)$ ,  $1 \leq i \leq 4096$  на периоде  $t_n$ , преобразованные контроллером ввода-вывода, передавались через параллельный порт персонального компьютера (ПК). С помощью ПК по измеренной зависимости  $\Theta(t)$  осуществляли расчет  $\alpha_{12}$ , измерение средней температуры образца  $\bar{T}(0)$  в центре теплового источника, визуализация результатов измерений, а также управление ПМ. Величина выборки составляла  $10^6$ , что позволяло пренебречь случайной ошибкой в эксперименте.

Чтобы исключить влияние диффузионных процессов на величину  $\alpha_{12}$ , все образцы подвергались отжигу в вакууме при температуре 1000 К в течение 10 мин.

Под действием излучения лазера в пятне нагрева устанавливался квазистационарный тепловой режим, при котором температура в центре пятна нагрева  $T(t, 0) = \bar{T}(0) + \Theta(t, 0)$  пульсировала около среднего значения  $\bar{T}(0) = 900$  К с частотой, равной частоте следования импульсов лазерной генерации. По форме осциллирующей составляющей  $\Theta(t, 0)$ , используя предложенную математическую модель, рассчитывали значение тепловой проводимости  $\alpha_{12}$  в точке  $(x, y)$  поверхности образца. По нашей оценке,

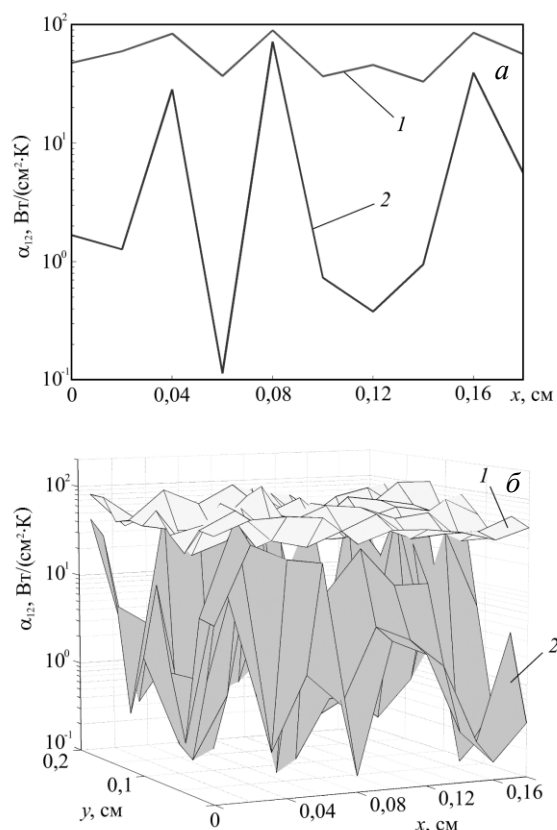


Рис. 3. Изменение значения тепловой проводимости границы контакта  $\alpha_{12}$  W плёнка (0,8 мкм) – Si подложка (0,7 мм): а – при фиксированном значении координаты  $y$ , б – по поверхности образца ( $x, y$ ). Зависимости 1 и 2 соответствуют облучённому и необлучённому образцам. Шаг сканирования 20 мкм.

сделанной с использованием калиброванной зависимости  $\Theta(t, 0)$ , погрешность измерения на установке формы пирометрического сигнала не превышала  $\sim 0,1\%$ , а измеренные значения величины тепловой проводимости  $\alpha_{12}$  могли меняться в диапазоне  $0,1 - 100 \text{ Вт}/(\text{см}^2 \cdot \text{К})$ . Так как большие или меньшие  $\alpha_{12}$  не регистрируются в эксперименте, то значения  $\alpha_{12} \sim 100 \text{ Вт}/(\text{см}^2 \cdot \text{К})$  считали соответствующими идеальному тепловому контакту, а  $\alpha_{12} \sim 0,1 \text{ Вт}/(\text{см}^2 \cdot \text{К})$  — нарушению сплошности границы раздела.

Сканирование лазерного пучка по поверхности образца осуществлялось путём перемещения координатного стола с шагом 20 мкм. Распределение значений тепловой проводимости  $\alpha_{12}$  при сканировании облучённого (кривая 1) и необлучённого (кривая 2) образца при фиксированном значении  $y$  показаны на рис.3а. На рис.3б показано распределение тепловой проводимости по поверхности

образца. Как видно из рисунков, облучение образцов приводит к увеличению тепловой проводимости границы раздела плёнка-подложка и следовательно улучшению адгезионных характеристик системы. Для необлучённых образцов характерен большой разброс значений тепловой проводимости по поверхности плёнки, который меняется в диапазоне от  $\sim 0,1$  до  $\sim 100 \text{ Вт}/(\text{см}^2 \cdot \text{К})$ . После облучения значения величины тепловой проводимости выравниваются и при сканировании меняются в диапазоне  $\sim 10 - 100 \text{ Вт}/(\text{см}^2 \cdot \text{К})$ .

## Выводы

1. Разработан локальный метод неразрушающего контроля адгезии плёнок толщиной 0,1 – 10 мкм к подложке по величине тепловой проводимости границы раздела. Метод использован для исследования изменения адгезионных характеристик границы раздела в системе W плёнка (0,8 мкм) – Si подложка (0,7 мм) после облучения электронами с энергией  $\sim 9 \text{ МэВ}$ .

2. Показано, что облучение высокоэнергетическими электронами приводит к увеличению величины тепловой проводимости до значений, соответствующих идеальному тепловому контакту. Можно предположить, что при облучении граница раздела плёнка – подложка приобретает более однородный характер с высокими адгезионными свойствами.

## Литература

1. Panin A.V., Shugurov A.R., Chun H.-G., Oskomov K.V. Surface Morphology, Microstructure and Mechanical Properties of Thin Ag Films. J. Kor. Powder Met. Inst., 2003, v. 10, no. 3, p. 190 – 194.
2. Berggren K.K., Prentiss M., Timp G.L., Behringer R.E. Calculation of atomic positions in nanometer-scale direct-write optical lithography with an optical standing wave. J. Opt. Soc. Amer. B, 1994, v. 11, no. 7, p. 1166 – 1176.
3. Wada T., Takeda M., Yamada T., Ichimura M. Formation of a  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$  alloy layer by high-energy electron-beam irradiation. Appl. Surface. Sci., 1989, v. 41 – 42, p. 580 – 583.
4. Shlenov Yu.V., Yakunkin M.M. Alloying with High-Energy Electron Beams. J. of Adv. Mat., 1995, v.2, p. 273 – 278.
5. Mori H., Yasuda H., Koyama H., Sumida N., Fujita H. Electron-irradiation-induced gold atom implantation in to a silicon substrate and AES-analysis of the gold implanted silicon. Nuclear Instrum. and Methods in Physics Research. B., 1992, v. 63, no. 3, p. 291 – 296.
6. Иванов Л.И., Лазаренко В.М., Платов Ю.М., Плетнев М.Н., Торопова Л.С. Образование фазы  $\text{Mg}_5\text{Al}_8$  в ненасыщенном твердом растворе Al – Mg при

- электронном облучении. Доклады АН СССР. Серия: Физическая химия, 1981, т. 257, № 5, с. 1175 – 1178.
7. Hodgson E.R., Arizmendi L. et al. Displacement of atoms in  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  during electron irradiation. Nucl. Instrum. and Meth. Phys. Research. B, 1992, v. 65, no. 1 – 4, p.275 – 277.
  8. Бондаренко Г.Г., Белов В.А., Якункин М.М. Влияние облучения высокоэнергетическими электронами на фазовые равновесия в сплавах. Металлы, 2000, №4, с.97 – 99.
  9. Вейко В.П., Метев С.М. Лазерные технологии в микроэлектронике. София, Изд. БАН, 1991, 361 с.
  10. Рыкалин Н.Н., Углов А.А., Кокора А.Н.. Лазерная обработка материалов. Машиностроение. 1975, 311 с.
  11. Karabutov A.A., Kubushkin A.P. Laser thermal-wave microscopy for remote non-destructive testing. Proc. SPIE, 1994, v. 2257, p. 83 – 88.
  12. Yakunkin M. M. Using Modulated Laser Radiation for Examining Properties and Heat Treatment of Films and Thin Foils. Journal of Advanced Materials, 1997, v.1(1), p. 92 – 100.
  13. Shanks H. R., Maycock P. D., Sidles P. H., Danielson G. C. Thermal Conductivity of Silicon from 300 to 1400 K. Phys. Rev., 1963, v. 130, p. 1743 – 1748.
  14. Термодинамические свойства индивидуальных веществ. Т. IV. М., Наука, 1982, 622 с.

***Артамонов Андрей Васильевич** — Московский институт электроники и математики (Технический университет), аспирант. Специалист в области физики и технологии материалов электронной техники.*

***Бондаренко Геннадий Германович** — НИИ перспективных материалов и технологий Московского государственного института электроники и математики (Технического университета), доктор физико-математических наук, профессор, заместитель директора НИИ ПМТ МГИЭМ (ТУ). Специалист в области физики конденсированного состояния.*

***Якункин Михаил Михайлович** — Российский государственный университет инновационных технологий и предпринимательства, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник. Специалист в области физики конденсированного состояния*