

ОБРАЗОВАНИЕ ДЕФЕКТОВ В ПЛЕНКАХ СЕРЕБРА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ИХ ИОНАМИ ГЕЛИЯ

В.В. Красильников, В.В. Сирота, С.Е. Савотченко, Яссер Эль Генди

Белгородский государственный университет

В работе исследована микроструктура тонких поликристаллических пленок серебра, подвергнутых облучению ионами гелия с энергией 10 кэВ в диапазоне доз $1 \cdot 10^{12} \div 5 \cdot 10^{16}$ ион/см² и плотностью тока $0,1 \div 0,3$ мкА/см². Исследована морфология поверхности тонких пленок серебра, как необлученных, так и облученных ионами гелия в данном интервале доз. Установлено, что под действием бомбардировки ионами гелия происходит измельчение кристаллитов образца, и распределение их по размерам, подчиняясь логнормальному закону распределения.

Необычность свойств тонких металлических пленок всегда привлекала внимание исследователей. Среди них пленки благородных металлов занимают особое место. В частности, шероховатые поверхности пленок серебра обладают рядом свойств, приводящих к проявлению интересных эффектов. Например, к таковым относится явление гигантского комбинационного рассеяния, где шероховатость серебряной поверхности играет важнейшую роль антенны излучения [1].

В данной работе исследовалась микроструктура тонких пленок серебра, сконденсированных в сверхвысоком криогенном вакууме при $P \sim (1,5) \cdot 10^{-7}$ Па, а затем подвергнутых облучению ионами гелия.

Поликристаллические серебряные пленки (толщиной 100 ± 5 нм) получались электронно-лучевым испарением массы серебра (чистотой 99,999%), помещенной в водоохлаждаемый вольфрамовый тигель. Пары серебра осаждались на оптическое стекло (класс поверхности 14). При испарении и конденсации пленок серебра в напылительной криогенной камере поддерживался вакуум с помощью криосорбционного насоса с масс-спектроскопическим контролем остаточной атмосферы газов. Скорость конденсации оценена как $\sim 0,5$ и $1,5$ нм/с. Пленки серебра отделялись от подложек в 5% растворе плавиковой кислоты и дистиллированной воде. Затем их помещали на металлические двойные спаренные диски диаметром ~ 3 мм, с центральным отверстием диаметра $\sim 0,7$ мм и с отверстиями диаметра 0,4 мм, смещенными от центра. Приготовленные таким образом пленки отжигали в вакууме (10^{-7} Па) при $T \sim 673$ К в течение одного часа, чтобы стабилизировать структуру пленки и очистить ее поверхность от загрязнений. Степень чистоты пленок проверяли методом обратного резерфордовского рассеяния протонов с энергией 1,6 МэВ [2].

Поликристаллические пленки серебра были облучены при $T \sim 293$ К сепарированным пучком ионов гелия с энергией 10 кэВ в диапазоне доз $1 \cdot 10^{12} \div 5 \cdot 10^{16}$ ион/см² и плотностью тока $0,1 \div 0,3$ мкА/см². Облучение ионными пучками проводили в вакууме при давлении $P \sim (1 \dots 2) \cdot 10^{-6}$ Па, исключая заметное загрязнение пленок примесями.

Структуру исходных и облученных пленок исследовали с помощью методов просвечивающей электронной микроскопии на ЭМВ-100Л и атомно-силовой микроскопии на приборе Р-47.

Определялись средние размеры 300 кристаллитов темнопольного изображения на негативных микроснимках в свете отражений когерентного рассеяния (111), (200), (220), (311) в исходной и облученной ионами гелия пленок серебра, осажденных на подложках стекла.

Интегральная интенсивность дифракционного спектра электронограмм показала, что в пленке серебра преимущественная ориентация плоскости максимальной упаковки (111) проходит параллельно поверхности пленки. Индекс аксиальной текстуры $\langle 111 \rangle$ оказался равным $P[111] = 16,5$. Это означает, что основную фракцию объема пленки составляют

кристаллиты ориентации (220). Под воздействием облучения ионами гелия пленок серебра происходит измельчение кристаллитов. Гистограммы, характеризующие распределение кристаллитов по размерам для ориентации (220) приведены на рис. 1 а), б), в), г), д), е) при различных температурах (всего бралось 6 значений температур: 25°C (комнатная температура), 100°C, 150°C, 250°C, 400°C, 550°C – они указаны в правом верхнем углу для каждой гистограммы). По оси абсцисс отложены средние размеры L кристаллитов в нанометрах (nm), по оси ординат процентное содержание кристаллитов данного размера в образце.

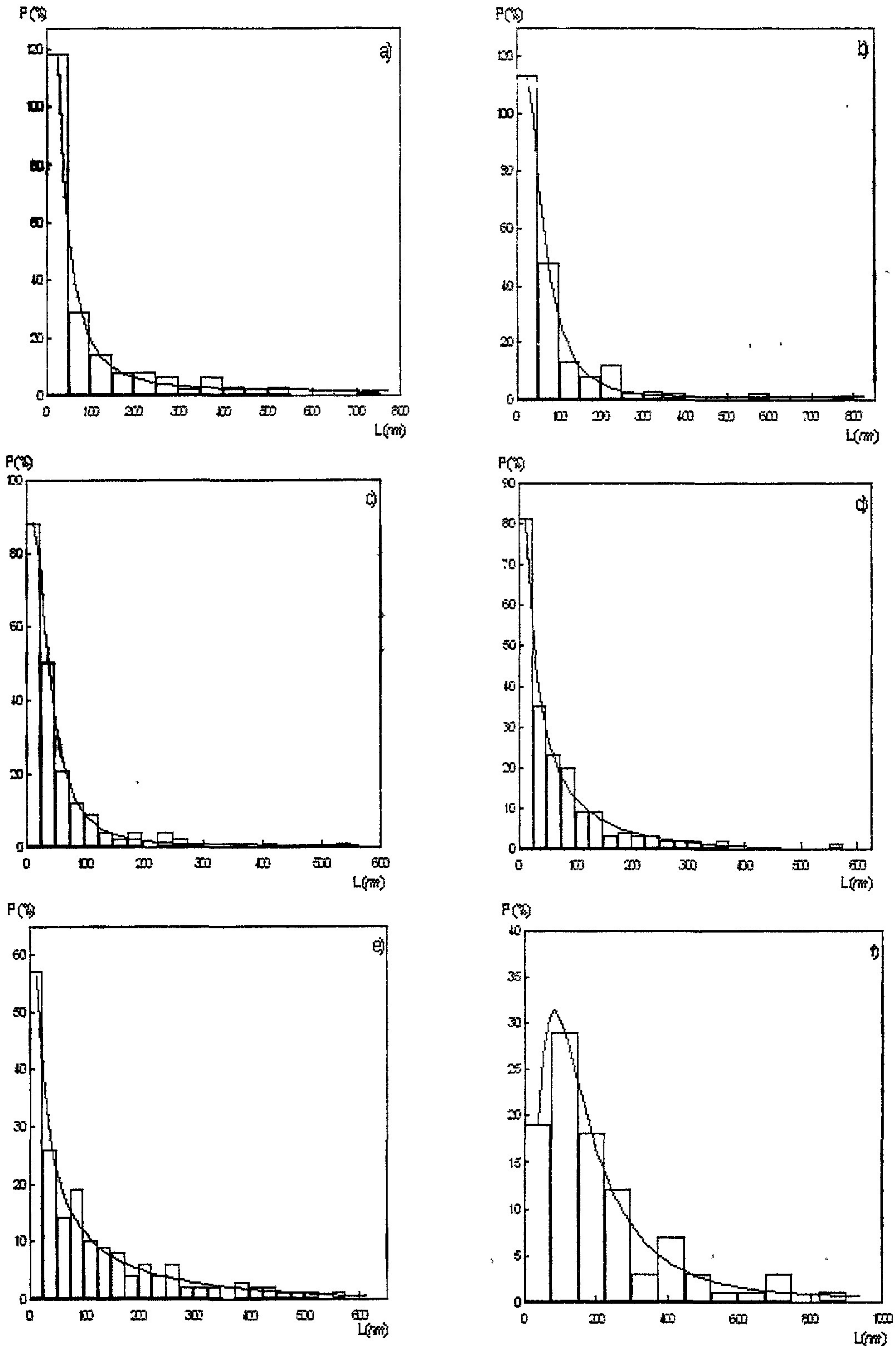


Рис. 1. Гистограммы распределений по размерам кристаллитов ориентации (220) при различных температурах: а) 25°C, б) 100°C, в) 150°C, г) 250°C, д) 400°C, е) 550°C. Сплошные кривые – подгонка экспериментальных данных логнормальным распределением

Сплошные кривые на гистограммах соответствуют логнормальному распределению

$$f(L) = \begin{cases} 0 & \text{при } L \leq 0 \\ \frac{1}{L\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\ln^2(L/L_c)}{2\sigma^2}\right) & \text{при } L > 0 \end{cases}$$

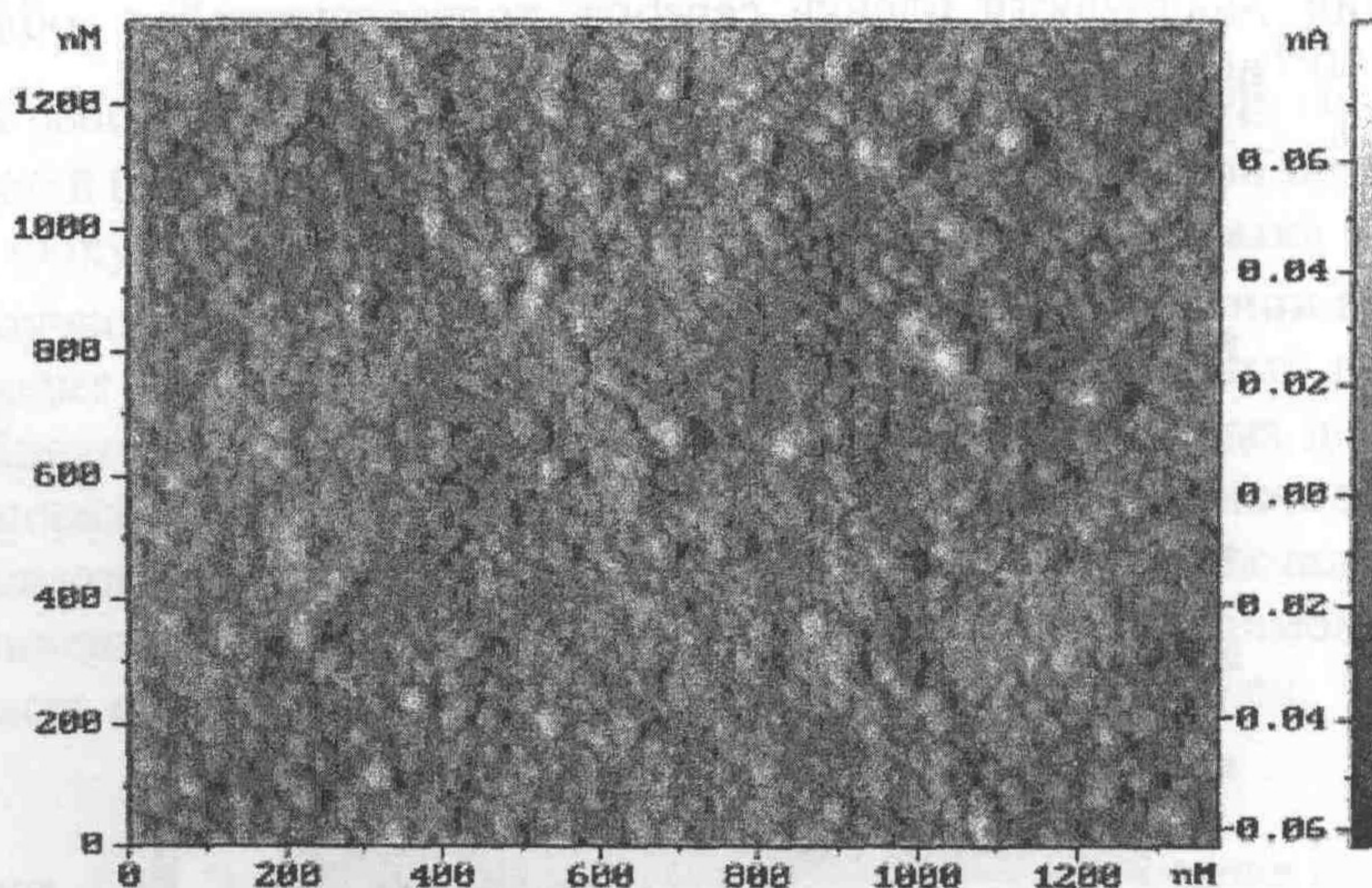
где σ и L_c – известные параметры логнормального распределения [3]. В табл. 1 сведены значения параметров σ , L_c , χ^2 и $\chi^2_{кр}$, вычисленные по экспериментальным данным для каждой температуры. Величина $\chi^2_{кр}$ бралась на 5-процентном уровне значимости. Из таблицы видно, что для каждой гистограммы выполняется неравенство $\chi^2 < \chi^2_{кр}$ [*], означающее в целом справедливость подгонки эмпирических распределений кристаллитов по размерам с помощью логнормального распределения.

Таблица 1

	Температура (°C)					
	25	100	150	250	400	550
L_c	6,54	24,61	13,91	2,97	0,84	82,40
σ	1,23	0,83	0,91	1,70	2,28	0,78
χ^2	3,95	7,25	1,53	2,40	3,58	3,13
$\chi^2_{кр}$	21,03	22,36	23,68	25,00	28,87	16,92

Таким образом, логнормальное распределение средних размеров кристаллитов удовлетворительно согласуется с эмпирическими распределениями, даваемыми гистограммами при рассмотренных температурах. Однако, слабая зависимость распределений от температуры все-таки просматривается. Так гистограмма е) свидетельствует о бимодальности распределения, возникающей при температуре 550°C.

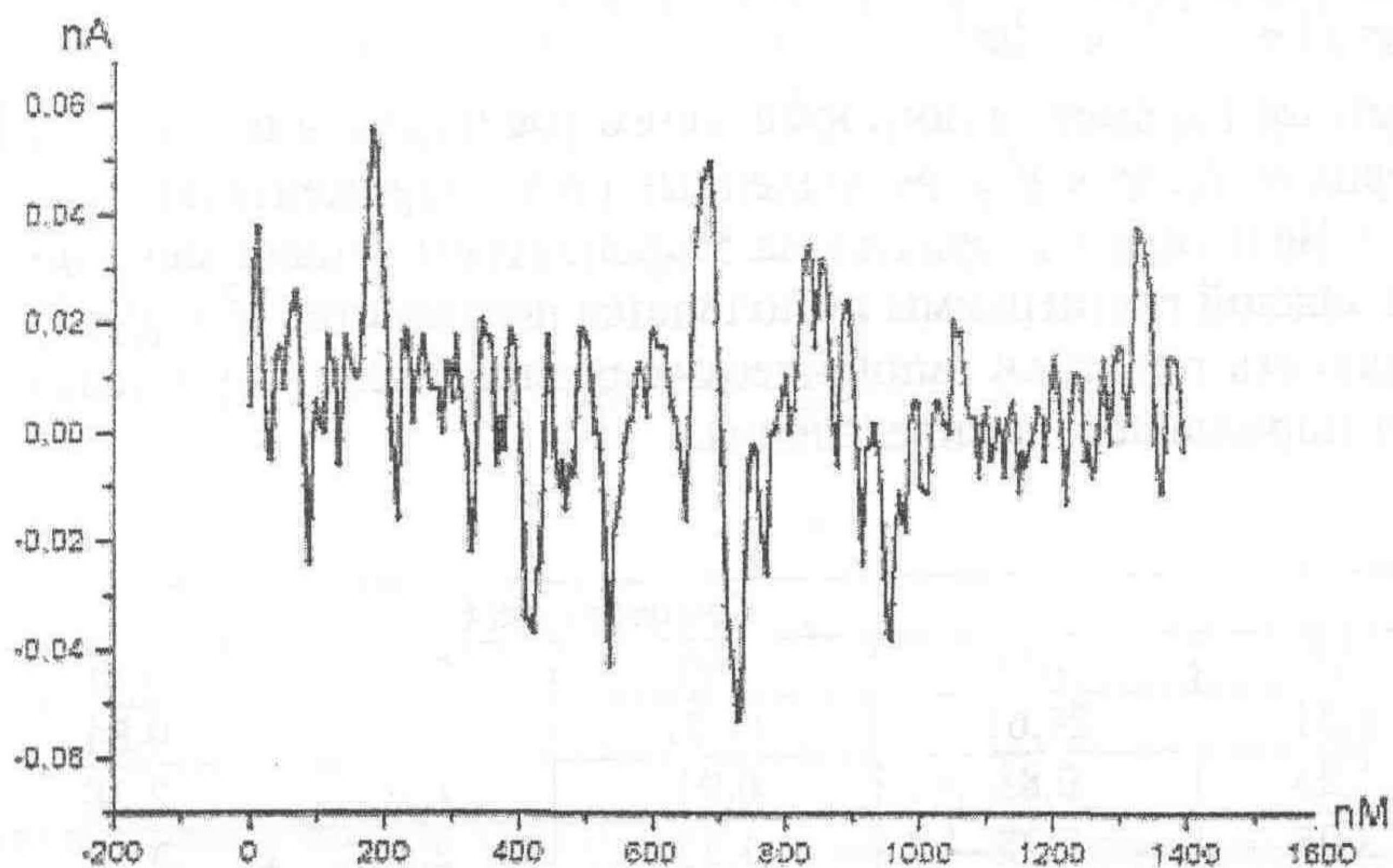
Облучение пленки серебра ионами гелия приводит к образованию в ней радиационных дефектов, таких как газовакансионные комплексы, газовые пузырьки, блистеры (вздутия) и другие виды структурных дефектов.



Р и с . 2. АСМ – изображение поверхности необлученной пленки серебра при комнатной температуре (25°C), полученное сканированием по оси абсцисс X контактным методом на микроскопе Р-47 со скоростью 103134 Å/s с шагом 45,36 Å. Количество точек, взятых по оси X и по оси Y, одинаково и равно $NX = NY = 256$

Морфология поверхности пленок серебра выяснялась методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) с помощью атомно-силового микроскопа Р-47. Рис. 2 дает АСМ – изображение поверхности необлученной пленки серебра при комнатной температуре (25°C),

полученное в результате сканирования по оси абсцисс X контактным методом со скоростью $103134 \text{ \AA}^{\circ}/\text{s}$ с шагом $45,36 \text{ \AA}^{\circ}$. Количество точек по осям X и Y одинаково и равно $NX = NY = 256$. На рис.3. показан токовый спектр, полученный сканированием поверхности пленки вдоль оси X, свидетельствующий об удовлетворительной ее однородности. Перепад высот в токовых единицах составляет всего $0,146 \text{ nA}$.

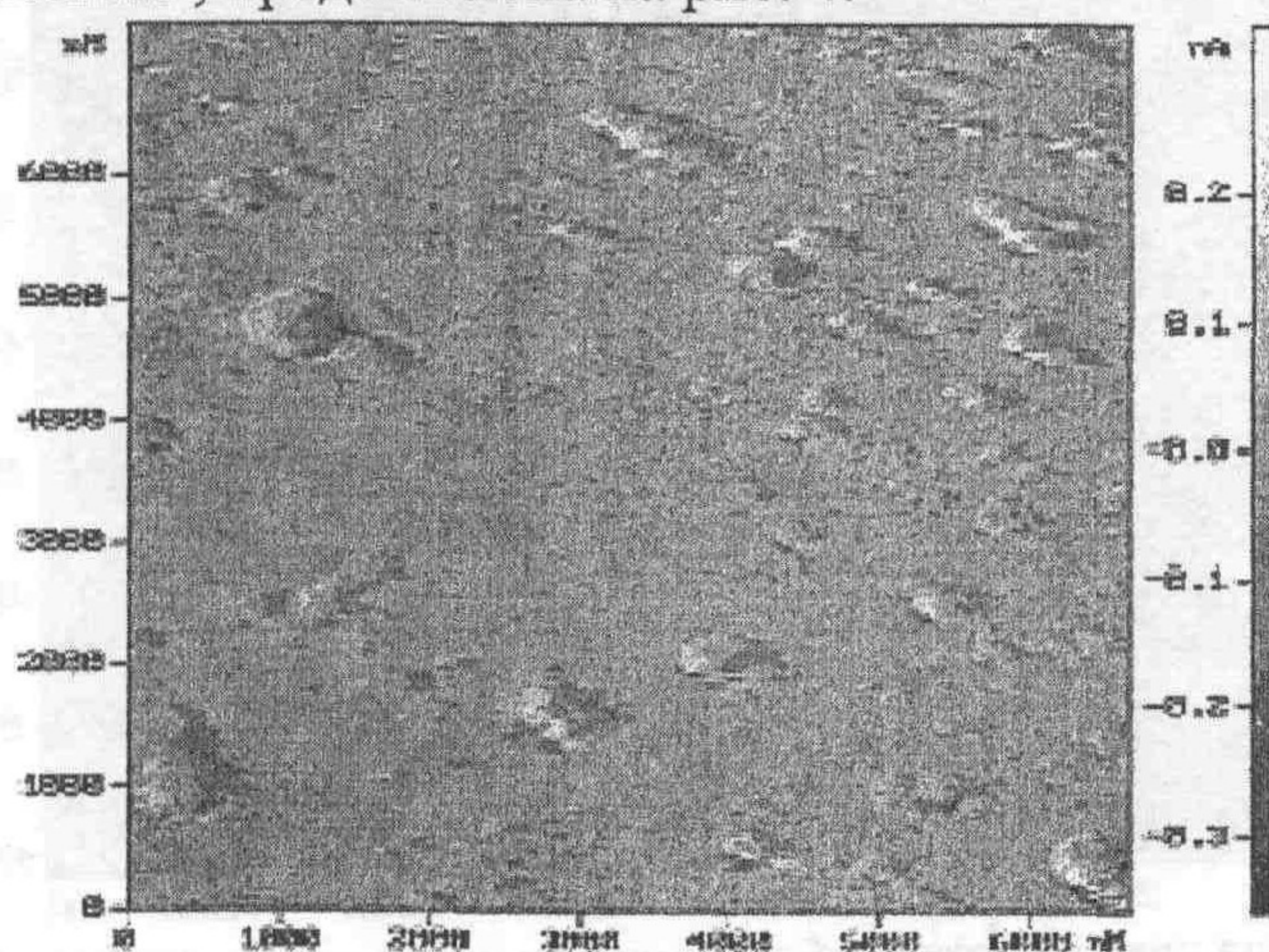


Р и с . 3. Токовый спектр, полученный при сканировании поверхности пленки серебра вдоль оси X при комнатной температуре в отсутствие облучения

Шероховатость пленки – незначительная (составляет $0,012 \text{ nA}$). Размеры крупных образований на выбранном участке пленки составляют $76,65; 56,51; 75,48; 57,55 \text{ (nM)}$. Пикообразность (эксцесс) равна $3,636$, то есть в пленке присутствует остроконечность.

Облучение поликристаллических пленок серебра при комнатной температуре ионами гелия с энергией 10 кэВ в диапазоне доз ($1 \cdot 10^{12} - 6 \cdot 10^{16} \text{ ион}/\text{см}^2$) с плотностью тока ($0,1-0,3 \text{ мкА}/\text{см}^2$) приводит к измельчению блоков-кристаллитов пленки. Кроме того, немонотонно меняется суммарная плотность двумерных дефектов (микродвойников, дислокаций) внутри матрицы кристаллитов [4].

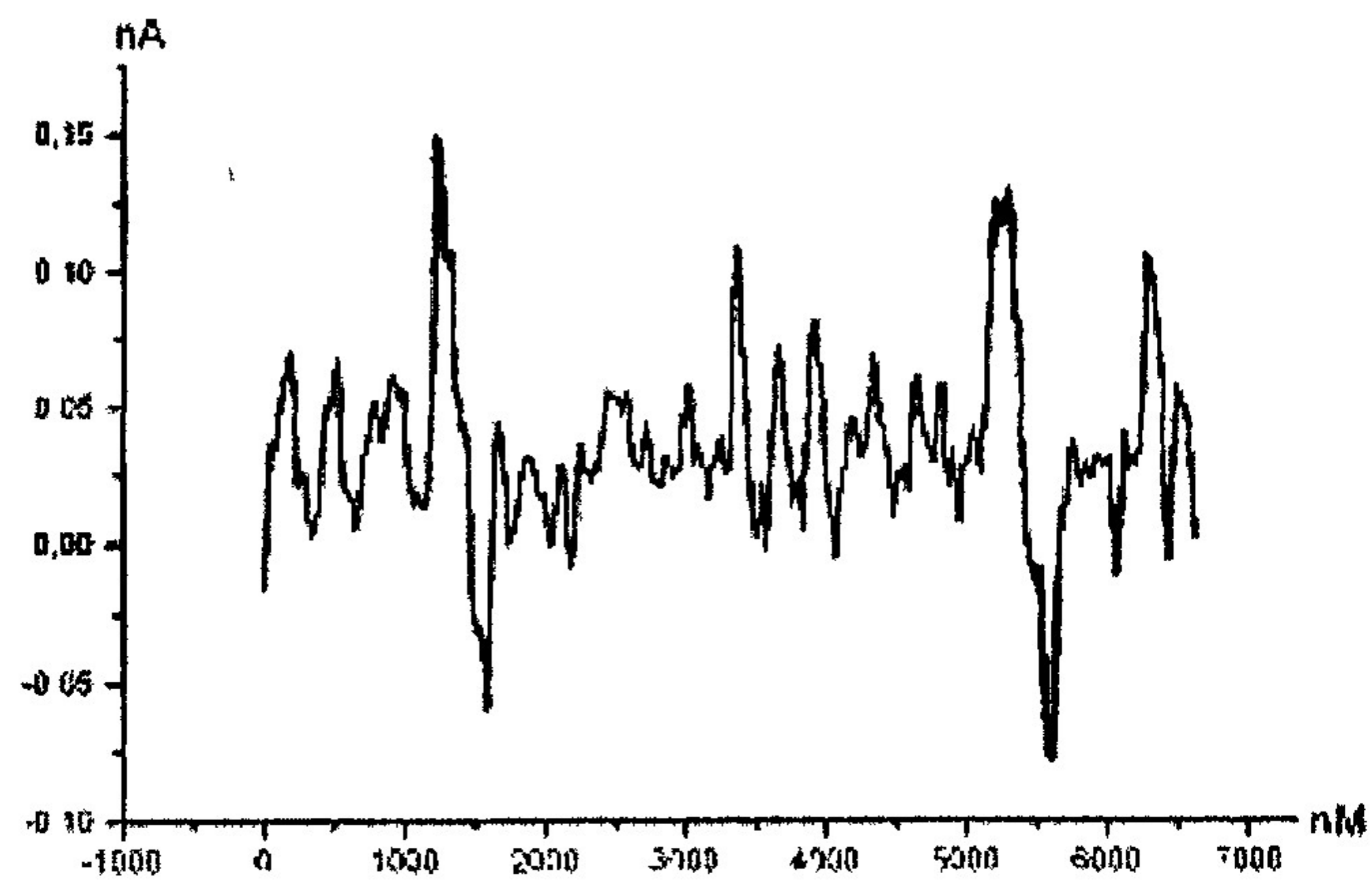
Морфология поверхности пленки серебра, подвергнувшейся облучению ионами гелия при дозе $\sim 10^{16} \text{ ион}/\text{см}^2$, представлена на рис. 4.



Р и с . 4. АСМ – изображение поверхности облученной ионами гелия (при дозе $4 \cdot 10^{16} \text{ ион}/\text{см}^2$) пленки серебра при комнатной температуре (25°C), полученное сканированием по оси абсцисс X контактным методом на микроскопе Р-47 со скоростью $100547 \text{ \AA}^{\circ}/\text{s}$ с шагом $185,2 \text{ \AA}^{\circ}$. Количество точек, взятых по оси X и по оси Y, одинаково и равно $NX = NY = 256$

Рис. 4. показывает АСМ – изображение поверхности облученной пленки серебра при комнатной температуре (25°C), полученное в результате сканирования по оси абсцисс X контактным методом со скоростью $100547 \text{ \AA}^{\circ}/\text{s}$ с шагом $185,2 \text{ \AA}^{\circ}$. Количество точек по

осям X и Y по-прежнему равно $NX = NY = 256$. На рис.5. показан токовый спектр, полученный сканированием поверхности пленки вдоль оси X, выявляющий ее неоднородности. Перепад высот возрос по сравнению с необлученной пленкой и в токовых единицах составляет теперь 0,686 нА.



Р и с . 5. Токовый спектр, полученный при сканировании поверхности пленки серебра вдоль оси X при комнатной температуре, облученной дозой $4 \cdot 10^{16}$ ион/см²

Шероховатость пленки составляет 0,028 нА (возросла более, чем в 2 раза). Пикообразность (экссесс) также возросла до значения 7,771. Размеры крупных образований (блистеров, пор) на выбранном участке пленки составили $705,27 \times 562,55$; $562,44 \times 309,45$; $907,73 \times 401,00$ (нМ). Количество блистеров на площади 7×7 нМ оказалось равным примерно 50 шт.

Результаты проведенных исследований морфологии серебряных пленок, подвергнутых облучению, тесно связаны с изменением электрофизических свойств пленок. В частности, электросопротивление как функция дозы ионного облучения исследовалось в [5-7], где было показано, что наблюдается рост сопротивления с увеличением дозы ионного облучения, достигающий насыщения при определенной дозе. Следует заметить, что последующее увеличение дозы может привести к уменьшению толщины пленки, а следовательно, и к уменьшению поверхностного электросопротивления пленки (размерный эффект) [8].

Заключение

В данной работе показана последовательность микроструктурных изменений, индуцированных ионной бомбардировкой He^+ с энергией 10 кэВ в тонкой поликристаллической пленке серебра. Облучение поликристаллических «текстурированных» пленок серебра сепарированным пучком ионов He^+ с энергией $E=10$ кэВ в направлении аксиальной текстуры $\langle 111 \rangle$ приводит к образованию высокодисперсных структурных неоднородностей в виде микродвойников, дислокаций, блистеров и других структурных дефектов. В двумерных дефектах (порах) накапливаются газовые микропузырьки. Конечная после облучения структура оказывается мелкозернистой. Причем распределение кристаллитов по размерам оказалось подчиненным логнормальному распределению. По-видимому, при дроблении кристаллитов часть образующихся дефектов уходит на границы зерен.

Литература

1. Емельянов, В.И. Эффект гигантского комбинационного рассеяния света молекулами, адсорбированными на поверхности / В.И. Емельянов, Н.И. Коротеев // Успехи физ. наук. – 1981. – / Т. 135, №2. С. 345–361.
2. Дзенковский, В.Г. Сочетание методов ОР и ПЭМ при исследовании тонкопленочных образцов / В.Г. Дзенковский, И.С. Мартынов, В.Ф. Рыбалко, Г.Д. Толстолуцкая // ВАНТ. Сер. ФРП и РМ. 1987. Вып. 3(4). С. 68–70.
3. Лоу, А.М. Имитационное моделирование. Классика CS / А.М. Лоу, В.Д. Кельтон. – 3-е изд. – СПб.: Изд. дом «Питер», 2004. – 848 с.

4. Камышанченко, Н.В. Структурные изменения в пленках серебра при облучении ионами гелия / Н.В. Камышанченко, И.С. Мартынов, Н.Н. Матюшенко, И.М. Неклюдов, В.Ф. Рыбалко // Научные ведомости. Сер. Физика. – Белгород: Изд-во БелГУ, 2000, № 1 (10). – С.120-130.
5. Teodosic V., Resistivity of thin silver layers during Heavy-Ion Irradiation. Appl. Phys. Letters, 1968, 9, 209.
6. Navinsek B., Carter G., Appl. Phys. Letters, 1968, 10, 91.
7. Тищенко, Л.П. Образование и отжиг дефектов, возникающих в тонких пленках серебра, облученных ионами гелия / Л.П. Тищенко, Т.П. Перегон, Я.М. Фогель, А.Л. Серюгин, И.С. Мартынов // Атомная энергия. 1974. Т. 37. Вып. 3. С. 246–247.
8. Стогний, А.И. Получение методом ионно-лучевого распыления и оптические свойства полупрозрачных пленок серебра / А.И. Стогний, Н.Н. Новицкий, О.М. Стукалов и др. // Поверхность. 2003. №10. С. 74–77.

FORMING DEFECTS IN SILVER FILMS UNDER IRRADIATION BY HELIUM IONS

*Krasil'nikov V.V., Sirota V.V., Savotchenko S.E., Yasser El' Gendy
Belgorod State University*

There are investigated microstructure of thin polycrystalline silver films put to irradiation by helium ions with energy 10 keV in the dose interval $1 \cdot 10^{12} \div 5 \cdot 10^{16}$ ion/cm² and current density $0,1 \div 0,3$ mA/cm² in this work. The morphology of surface of thin silver films both without irradiation and under irradiation by helium ions in the certain dose interval is investigated. It is found that fragmentation of sample crystallines occurs by helium ion bombardment, and distribution of their over sizes is subjected to the lognormal distribution.