

# КОНДЕНСАЦИЯ ЛАНГАН КҮЙДІҢ ФИЗИКАСЫ ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ

УДК 531.02

А.Е.Альжанова, А.К.Даулетбекова

Евразийский национальный университет им. Л.Н.Гумилева, Астана  
(E-mail: aliya.alzhan@yandex.kz)

## Трековое формирование в структурах $\text{SiO}_2/\text{Si}$ и $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$

В рамках модели термического пика рассчитаны параметры трекообразования для структур  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  и  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$  при облучении быстрыми ионами. Авторами подчеркнуто, что важным и новым результатом является оценка возможности использования рассчитанных ионов для создания нанопористых слоев в диоксиде кремния и нитриде кремния. Методом химического травления были получены наноразмерные поры в структурах  $\text{SiO}_2/\text{Si}$ . Исследована морфология поверхности образцов  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  и параметры сформированных нанопор. Таким образом, отработана методика вытравливания ионных треков методом химического травления.

*Ключевые слова:* модель, термический пик, трекообразование, структура, формирование.

Облучение быстрыми тяжелыми ионами позволяет управлять свойствами тонких пленок и наночастиц, вкрапленных в твердую матрицу. Треки, образовавшиеся в результате облучения быстрыми тяжелыми ионами, после обработки в некоторых травящих композициях могут быть преобразованы в систему наноканалов [1–3]. Этот подход используется для изготовления трековых мембран на основе полимерных пленок, используемых в качестве фильтров тонкой очистки в органическом синтезе, биотехнологиях, медицине.

Процесс вытравливания треков носит пороговый характер. Важно выбрать режим облучения, который позволил бы гарантированно получать вытравленный трек на месте падения каждого иона. В качестве критерия «травимости» треков обычно используют величину электронных потерь энергии иона на входе в мишень  $(dE/dx)_{e\text{ thr}}$ . В случае  $\text{SiO}_2$  пороговое значение  $(dE/dx)_{e\text{ thr}}$ , по разным данным, колеблется от 4 до 1,5 кэВ·нм<sup>-1</sup> [1, 4–6]. Однако для гарантированного получения слоев с высокой плотностью и малым диаметром каналов, кроме  $(dE/dx)_{e\text{ thr}}$ , важно располагать информацией о других параметрах трекообразования, например, о диаметре трековой области, формирующейся при прохождении иона в аморфном  $\text{SiO}_2$ . Для описания прохождения быстрых ионов в  $\text{SiO}_2$  и некоторых других диэлектриках хорошие результаты дает модель термического пика [7].

Расчет проводился в рамках модели термического пика с использованием программного комплекса, созданного в лаборатории элионики Института прикладных физических проблем им. А.Н.Севченко БГУ. Модель предполагает термализацию электронной подсистемы твердого тела за время, не превышающее  $10^{-14}$  с. В следующие несколько пикосекунд электрон-фононное взаимодействие приводит к быстрому нагреву области вдоль траектории быстрого иона. Процесс переноса энергии от электронной к атомной подсистеме твердого тела описывается системой из двух дифференциальных уравнений. Для расчета тепловых полей используют макроскопические свойства материала мишени. Модель включает один свободный параметр — средний пробег электрона при электрон-фононном взаимодействии  $\lambda$ . Если плотность энергии, выделенной в электронных возбуждениях, достаточно высока, происходит расплавление материала и формирование цилиндрической области диаметром в несколько нанометров — будущего трека. В последующие несколько десятков пикосекунд расплав охлаждается до температуры окружающей матрицы. Теплофизические параметры  $\text{SiO}_2$  для расчета взяты из [7], параметр  $\lambda$  принят равным 4 нм.

В таблице 1 представлены результаты моделирования трекообразования (радиус и время жизни) расплавленной области, образующейся в SiO<sub>2</sub> при прохождении ионов (<sup>19</sup>F 28 МэВ; <sup>32</sup>S 47 МэВ; <sup>35</sup>Cl 43 МэВ, <sup>40</sup>Ar 38, 54 МэВ).

Т а б л и ц а 1

Данные по температурным полям для структуры SiO<sub>2</sub>

Ион	Энергия иона (МэВ)	Мах радиус области, нагретой до температуры плавления (нм)	Время существования (пс)
Ar	38	2,6	3,6
Ar	54	2,4	3,0
Cl	43	2,1	2,6
S	47	1,6	1,4

В таблице 2 приведены данные по температурным полям, рассчитанным для Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, облученного ионами <sup>56</sup>Fe 56 МэВ, <sup>84</sup>Kr 84 МэВ, <sup>180</sup>W 180 МэВ.

Т а б л и ц а 2

Данные по температурным полям для структуры Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>

Ион	Энергия иона (МэВ)	Мах радиус области, нагретой до температуры плавления (нм)	Время существования (пс)
Fe	56	1,7	0,5
Kr	84	3,0	1,3
W	180	5,3	4,7

Таким образом, в рамках модели термического пика рассчитаны параметры трекообразования (радиус и время существования расплавленной области) для прохождения (<sup>19</sup>F 28 МэВ; <sup>32</sup>S 47 МэВ; <sup>35</sup>Cl 43 МэВ, <sup>40</sup>Ar 38, 54 МэВ) в SiO<sub>2</sub>. По результатам расчетов скрытые треки в случае облучения ионами <sup>19</sup>F 28 МэВ не образуются, поскольку материал в трековой области не нагревается до температуры плавления. Для остальных ионов достигается плавление трековых областей, причем максимальный радиус расплавленной области, 2,2 нм, достигается при прохождении ионов Ar с энергией 38 МэВ, минимальный радиус расплавленной области, 1,6 нм, достигается при облучении ионами S с энергией 47 МэВ. При облучении нитрида кремния ионами Fe (56 МэВ) рассчитанные радиус и время существования области, нагретой до температуры плавления, составляют 1,7 нм и 0,5 пс соответственно. При облучении ионами Kr (84 МэВ) эти значения равны 3,0 нм и 1,3 пс. В случае W (180 МэВ) радиус нагретой до температуры плавления области равен 5,3 нм, а время ее существования составляет 4,7 пс. Выполненные исследования позволяют выбрать нужные ионы для создания треков, с учетом возможностей ускорителя DC-60, для создания нанопористых материалов на основе структур SiO<sub>2</sub>/Si и Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si методом вытравливания треков.

Структуры SiO<sub>2</sub>/Si, изготовленные термическим оксидированием кремниевой подложки КДБ 12 диаметром 100 мм с кристаллографической ориентацией (111) в атмосфере влажного кислорода при 900 °С, облучались нормально к поверхности ионами Хе с энергией 133 МэВ, флюэнсом 1×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup> и с энергией 200 МэВ, с флюэнсами 2×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>11</sup> см<sup>-2</sup>; ионами Ar с энергией 38 МэВ, с флюэнсами 1×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>, 1×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup>, 1×10<sup>11</sup> см<sup>-2</sup>, 1×10<sup>12</sup> см<sup>-2</sup>; ионами Kr с энергией 59 МэВ, с флюэнсами 2×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>11</sup> см<sup>-2</sup>. Затем для вытравливания ионных треков было использовано химическое травление образцов SiO<sub>2</sub>/Si в 4 %-ном водном растворе фтористоводородной кислоты (HF) при комнатной температуре в интервале времени от 2,5 до 15 минут для образцов, облученных ионами Хе (133 МэВ), и 6 минут — для остальных образцов.

На рисунках 1–3 показаны поверхности структур SiO<sub>2</sub>/Si, полученные посредством изучения морфологии на сканирующем электронном микроскопе JSM-7500F (Япония) после травления.

В ходе исследований морфологии поверхности стало ясно, что с ростом времени травления увеличивается диаметр вытравленных пор (рис. 4), плотность же пор существенно не изменяется, и ее значение порядка значения флюэнса. Это подтверждают диаграммы зависимости плотности вытравленных пор от величины флюэнса, построенные для ионов Хе и Kr, приведенные на рисунках 5, 6.

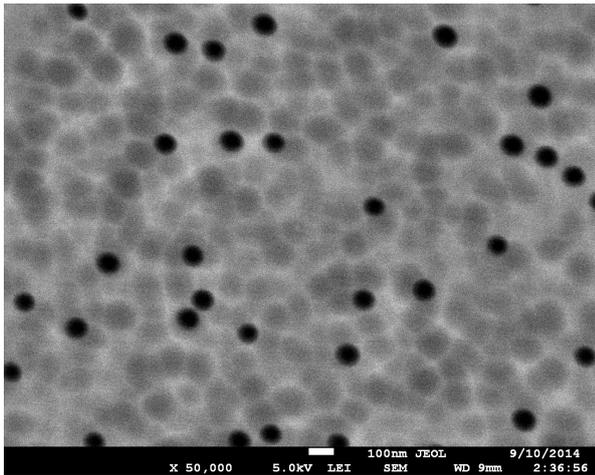


Рисунок 1. Поверхность образца SiO<sub>2</sub>, облученного Хе (133 МэВ, 1×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF в течение 2,5 мин

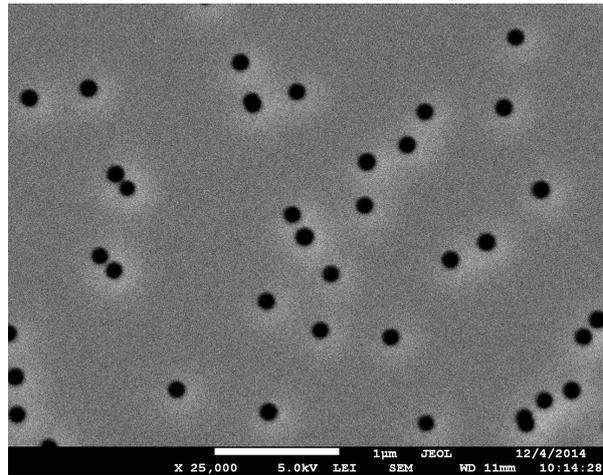


Рисунок 2. Поверхность образца SiO<sub>2</sub>, облученного Хе (200 МэВ, 2×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF в течение 6 мин

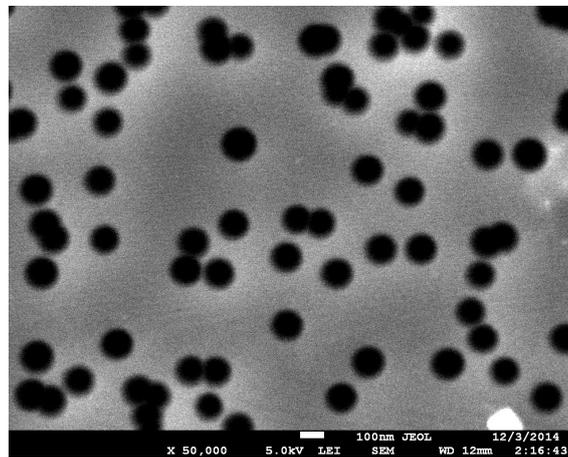


Рисунок 3. Поверхность образца SiO<sub>2</sub>, облученного Кг (59 МэВ, 2×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF в течение 6 мин

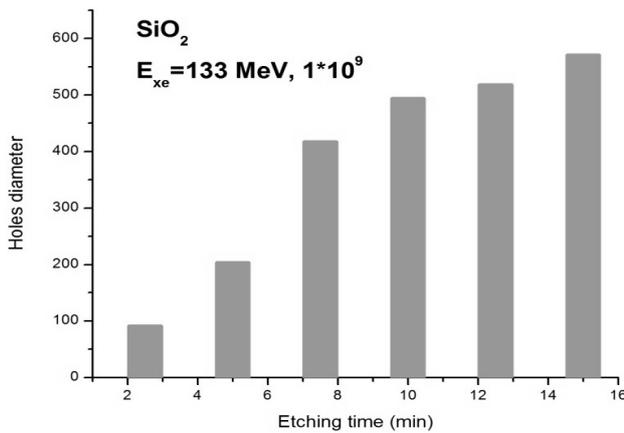


Рисунок 4. Зависимость диаметра пор от времени травления для образца SiO<sub>2</sub>, облученного Хе (133 МэВ, 1×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF

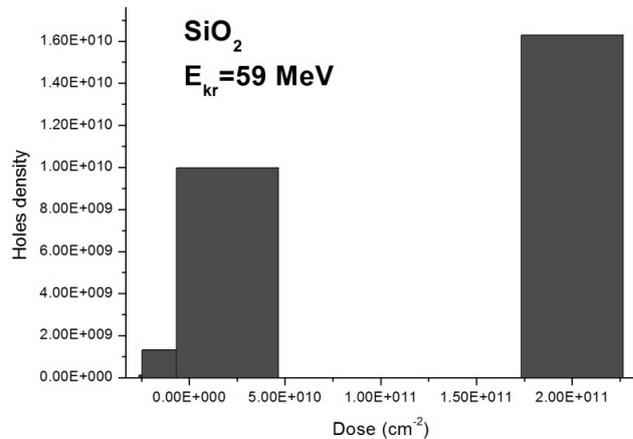


Рисунок 5. Зависимость плотности пор от времени травления для образца SiO<sub>2</sub>, облученного Кг (59 МэВ, 2×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup>, 2×10<sup>11</sup> см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF

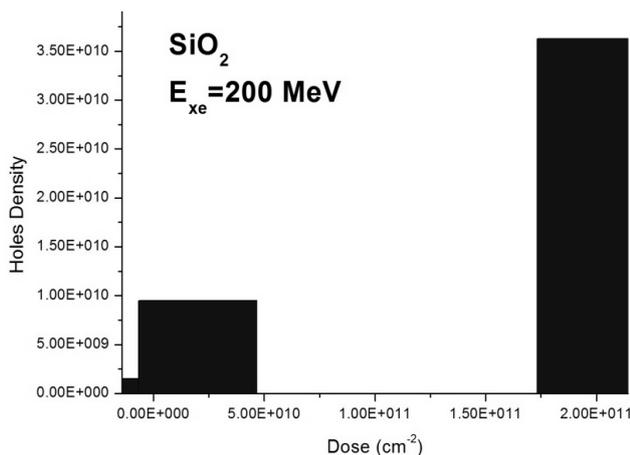


Рисунок 6. Зависимость плотности пор от времени травления для образца SiO<sub>2</sub>, облученного Хе (200 МэВ,  $2 \times 10^8$  см<sup>-2</sup>,  $2 \times 10^9$  см<sup>-2</sup>,  $2 \times 10^{10}$  см<sup>-2</sup>,  $2 \times 10^{11}$  см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF

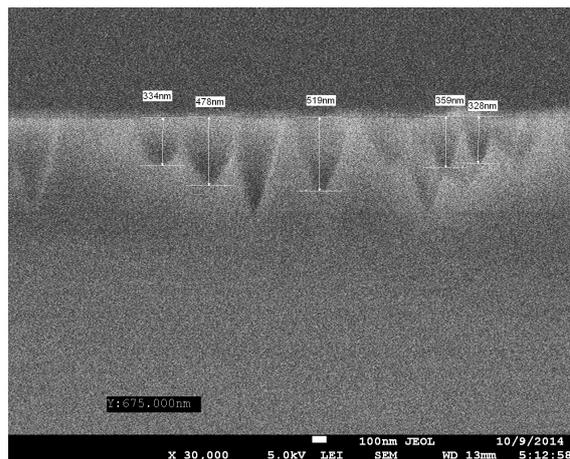


Рисунок 7. Поперечное сечение образца SiO<sub>2</sub>, облученного Хе (133 МэВ,  $1 \times 10^9$  см<sup>-2</sup>), после обработки в 4 % HF в течение 10 мин

Был получен поперечный снимок образца SiO<sub>2</sub>, сделанный посредством сканирующей электронной микроскопии (рис. 7). Как видно из рисунка 7, поры имеют правильную коническую форму. Коническая форма пор обусловлена сопоставимыми по величине скоростями травления материала в области трека  $V_t$  и в объеме неповрежденной матрицы  $V_b$ . Зная длительность травления  $t_e$ , глубину поры  $z$  и половинный угол конуса поры  $\beta$ , из соотношений  $z = (V_t - V_b)t_e$  и  $\sin \beta = V_b/V_t$  можно рассчитать  $V_t$  и  $V_b$  [8]. Усредненные по результатам девяти измерений  $V_t$  и  $V_b$  составляют  $72$  нм·мин<sup>-1</sup> и  $24$  нм·мин<sup>-1</sup> соответственно.

Таким образом, изучена морфология вытравленных треков в слоях аморфного SiO<sub>2</sub> на Si. Показано, что использование доз  $\leq 10^9$  см<sup>-2</sup> позволяет создавать систему каналов практически одинакового размера и правильной формы. Обработка облученных образцов в растворах на основе HF приводит к формированию каналов в виде конусов. Построенные диаграммы зависимости плотности вытравленных пор от времени травления и диаграмма зависимости диаметра вытравленных пор от времени травления показывают, что плотность пор соответствует значению флюэнса, а диаметр пор увеличивается с увеличением времени травления.

#### Список литературы

- 1 Dallanora A., Marcondes D.A., Bermudez T.L., Fichtner G.G., Trautmann C., Toulemonde M., Papaleo R.M. Ion tracks in systems // Journal Appl. Phys. Physics series. — 2008. — No. 3(45). — P. 104–106.
- 2 Bergamini, Bianconi M., Cristiani S., Gallerani L., Nubile A., Petrini S., Sugliani S. Tracks formation in silicon structure // Journal Nucl. Instr. Meth. Phys. Series B. — 2008. — № 5(22). — P. 266–269.
- 3 Vlasukova L.A., Komarov F.F., Yuvchenko V.N., Mil'chanin O.V., Didyk A.Yu., Skuratov V.A., Kislitsyn S.B. Threshold of track formation // Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics series. — 2012. — № 1(38). — P. 76–78.
- 4 Marcondes D.A., Bermudez T.L. Nuclear Tracks in Solids // Journal of Ed. R.L.Fleischer. Berkeley Univ. California Press. — 1975. — № 2(32). — P. 23–27;
- 5 Sigrist A., Balzer R. Etching tracks in silicon dioxide // Journal Helv. Phys. Acta. Series B. — 1977. — № 5(23). — P. 75–78.
- 6 Jensen, Skupinski M., Razpet A., Possnert G. Ion irradiation in amorphous silicon dioxide // Journal Nucl. Instr. and Meth. Phys. Series B. — 2000. — № 5(12). — P. 903–906;
- 7 Toulemonde M., Dufour C., Mefiah A., Paumier E. Transient. Thermal processes in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators // Journal Nucl. Instr. and Meth. Phys. Series B. — 2000. — № 5(12). — P. 906–909;
- 8 Spohr R. Ion tracks and micro technology: principles and applications // Journal Wisbaden: Viweg Verlag. Physics series. — 1990. — № 1. — P. 272–276.

А.Е.Әлжанова, А.Қ.Даулетбекова

### **SiO<sub>2</sub>/Si және Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si құрылымдардағы трек қалыптасуы**

Термиялық шоқының қалыбының шегінде, SiO<sub>2</sub>/Si және Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si құрылымдары үшін трек қалыптасуы параметрлерін жылдам иондармен сәулелендіру кезінде өлшенді. Авторлар есептелген иондарды қолдану мүмкіндігін бағалауда нанокеуек қабаттарды SiO<sub>2</sub>/Si және Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si құрастыру үшін өте маңызды және жаңа нәтижеге қолжетімді екендігін айтады. Химиялық күйдірмелеуі әдісімен SiO<sub>2</sub>/Si құрылымдарда нанокөлемді тесіктер алынды. Зерттеу SiO<sub>2</sub>/Si құрылымдарының бетінің морфологиясының және нанокөлемі тесіктердің параметрлері арқылы жүзеге асты, және химиялық күйдірмелеуі әдісімен алынған иондық трек күйдірмелеуі әдістемесі ұсынылды.

A.Ye.Alzhanova, A.K.Dauletbekova

### **Track formation in SiO<sub>2</sub>/Si and Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si structures**

In frame of thermal spike model, calculated the parameters of track formation were developed for the agencies of the SiO<sub>2</sub>/Si and Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Si irradiated by fast ions. An important and a new result is the estimation of possibility of using the calculated ions to create a nanoporous layers in silicon dioxide and silicon nitride. The method of chemical etching were obtained nanosized pores in the structures of the SiO<sub>2</sub>/Si. We investigated the surface morphology of samples SiO<sub>2</sub>/Si and parameters formed nanopores. Thus, the tested technique of etching ion tracks by the method of chemical etching.