

УДК 53.043

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ РАДИАЦИОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА РАЗМЕР ЗЕРЕН И МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТОНКОПЛЁНОЧНОГО АЛЮМИНИЯ

© 2024 г. Н. А. Дюжев^а, Е. Э. Гусев^{а,*}, Е. О. Портнова^а,
М. А. Махиборода^а

^аНациональный исследовательский университет “МИЭТ”, Россия, Москва,
Зеленоград

*e-mail: bubbledouble@mail.ru

Поступила в редакцию 30.05.2023 г.

После доработки 07.06.2023 г.

Принята к публикации 11.06.2023 г.

Впервые получена экспериментальная зависимость размера зерен и механических свойств материала тонкоплёночного алюминия от дозы коротковолнового излучения. Тонкая плёнка алюминия была сформирована на кремниевой подложке методом магнетронного напыления. Был выявлен эффект уменьшения механической прочности и двухосного модуля упругости при увеличении дозы радиационного облучения. Данный эффект объясняется уменьшением размера зерна и величины шероховатости на тонкоплёночной алюминиевой мембране. Для измеренного посредством микроскопа диапазона размера зерен алюминия используется обратное соотношение Холла—Петча. В ходе исследований было определено, что в процессе облучения увеличивается количество межзеренных границ и количества самих зерен, что ведет к возрастанию вероятности деформации.

Ключевые слова: механические свойства, размер зерен, тонкие плёнки, мембраны, механическая прочность, двухосный модуль упругости

DOI: 10.31857/S1026351924010084, EDN: WACXBG

Введение. В процессе перехода от макро- к микроразмерам меняются свойства материалов. Знание механических свойств материалов позволяет разработчику более точно рассчитать конструкцию устройства, определить возможный диапазон рабочих параметров при эксплуатации. Одним из базовых материалов в микроэлектронике является алюминий. Известен критерий радиационной стойкости интегральных схем, что крайне важно при использовании в космосе. В интегральных схемах с проектными нормами более 180 нм используется металлизация из алюминия. При торможении на корпусе электронного устройства электронов, протонов, космических

частиц возникают рентгеновское и гамма-излучение, тяжелые ионы. В подзатворном слое КМОП-структуры накапливается индуцированный излучением положительный заряд, что ведет к изменению рабочих характеристик транзисторов. Происходит смещение пороговых напряжений и увеличение токов утечки, изменяется время нарастания и спада фронтов и т.д. При этом старение интегральной схемы и степень разрушения зависят от суммарной дозы полученной радиации [1].

Также актуальность исследования подтверждается важностью радиационной стойкости материалов в рентгеновской литографии, в частности, при изготовлении масок-затворов, обеспечивающих в необходимый период времени прохождение излучения [2]. К материалу маски применяются жесткие требования. С одной стороны, материал маски должен поглощать излучение и обеспечивать механическую прочность для работы в атмосфере вакуума. С другой стороны, должен обладать достаточно упругими свойствами для обеспечения необходимой обратимой деформации.

Известно, что при нахождении в космосе на средней орбите (около 2000 км) в течение 1 года интегральная схема получает воздействие около 0.1 Мрад [3]. В данной работе максимум дозы облучения составлял 6 Мрад.

1. Технологический маршрут изготовления тонкопленочного алюминия. Тонкая монослойная пленка алюминия была осаждена магнетронным методом на кремниевую пластину диаметром 150 мм с кристаллографической ориентацией (100) и толщиной 675 ± 10 мкм. В результате сформировалась круглая мембрана на Si кристалле квадратной формы со стороной 6 мм. К преимуществам круглой мембраны можно отнести отсутствие концентраторов механических напряжений в углах структуры. Технологический маршрут изготовления структуры показан ниже. Особенностью технологического маршрута формирования мембран является выбор маски для защиты кремниевой поверхности. В процессе исследований было обнаружено, что слой фоторезиста толщиной единицы микрон стравливается раньше, чем происходит травление на глубину стандартной Si

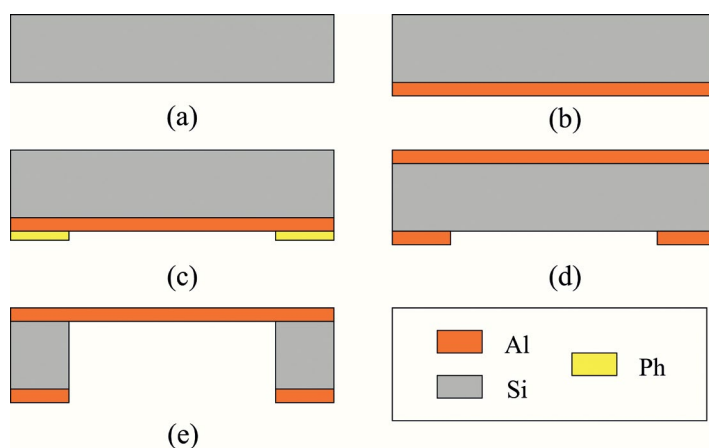


Рис. 1. Технологический маршрут.

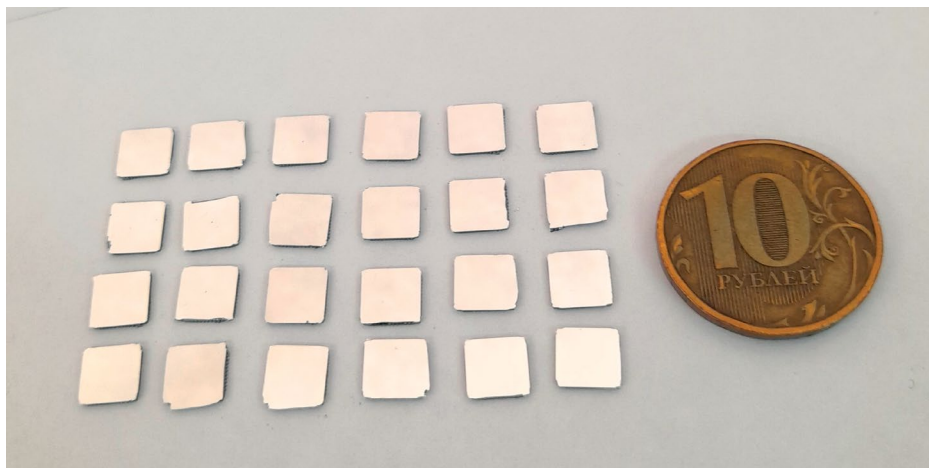


Рис. 2. Изображение изготовленных кристаллов.

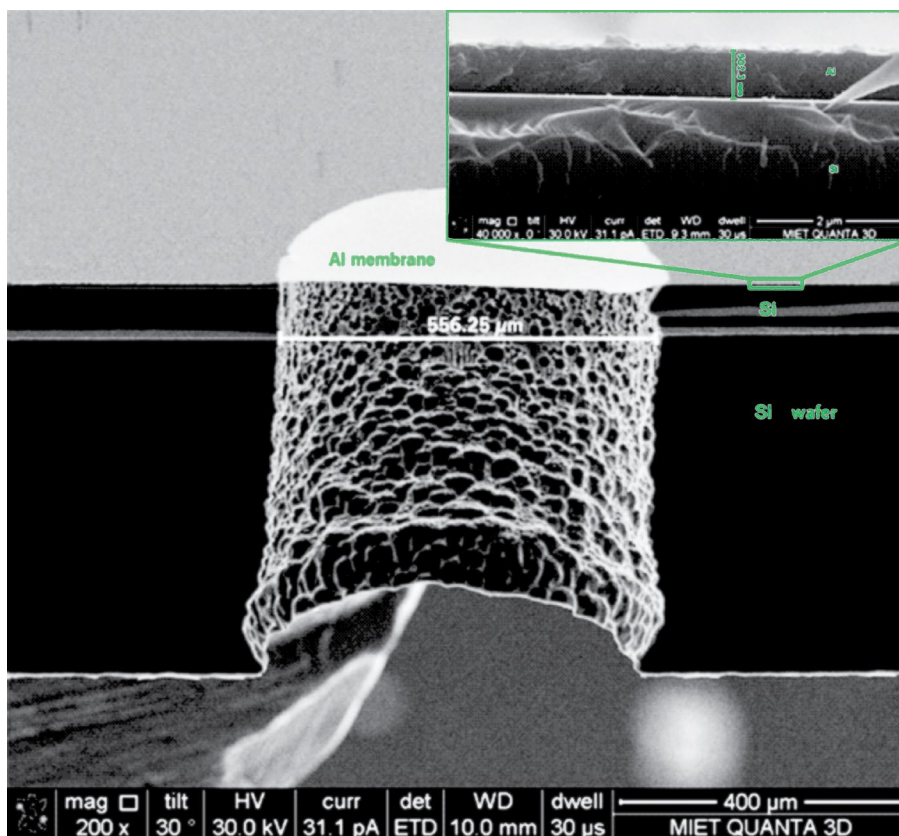


Рис. 3. Изображение мембраны на виде сбоку.

подложки толщиной 670 мкм. В результате значительно возрастает площадь травления и возникает эффект черного кремния. Для решения проблемы было решено стандартный слой фоторезиста заменить на слой алюминия. Алюминий обладает большей селективностью к кремнию по сравнению с фоторезистом (при травлении кремния).

На исходной кремниевой пластине (рис. 1,а), магнетронным методом формируют слой Al на обратной стороне подложки (рис. 1,б), выполняющий функцию защиты поверхности кремния при травлении. Затем проводят фотолитографию по обратной стороне пластины с алюминием (рис. 1,с). После этого проводят жидкостное химическое травление алюминия (рис. 1,д). Затем удаляют резист в ДМФА и осаждают слой Al на лицевой стороне. Далее выполняют глубокое травление кремния (Bosch-процесс) на глубину подложки до Al (рис. 1,е). Под мембраной подразумевается область пленки алюминия на лицевой стороне подложки, не имеющая под собой кремниевой подложки.

Изображение изготовленных кристаллов показано на рис. 2 выше.

На рис. 3. приведены изображения во вторичных электронах поперечного сечения образцов тонких пленок на кремниевой подложке.

Экспериментальный диаметр мембраны, сформированный после травления Si подложки составляет 556 микрон. Толщина пленки монослоя алюминия составляет 502 ± 10 нм, что обеспечивает пропускание менее 1% при длине волны 13.5 нм [4].

2. Измерение механических свойств. Контроль механических свойств осуществлялся на стенде, описанном в работе [5]. Стенд включает в себя оптический профилометр, манометры, ресивер, магистральную систему подачи избыточного давления воздуха. В результате, обеспечивая бесконтактное воздействие на мембрану за счет давления воздуха (без внесения дополнительных механических напряжений на структуру), можно получить значение давления разрыва мембраны и величину двухосного модуля упругости.

Механическая прочность кремниевых мембран рассчитывается по формуле (2.1):

$$\sigma_{max} = \frac{P_{over} \cdot a^2 \cdot B(\mu)}{h^2}, \quad (2.1)$$

где P_{over} – избыточное давление критической деформации структуры, a – радиус мембраны, $B(\mu)$ – коэффициент, h – толщина мембраны.

Коэффициент $B(\mu)$ рассчитывается как $\frac{3}{4}\sqrt{1+\mu^2}$. Анализируя зависимость (формула (2.2)) прогиба мембраны w от избыточного давления P , можно определить двухосный модуль упругости $E/(1-\mu)$:

$$P = C_1 \cdot \frac{\sigma_0 \cdot h \cdot w}{a^2} + C_2 \cdot \frac{E \cdot h \cdot w^3}{(1-\mu) \cdot a^4}, \quad (2.2)$$

где P – избыточное давление, σ_0 – остаточные механические напряжения в структуре при $P = 0$, h – толщина мембраны, w – прогиб мембраны, a – радиус мембраны, E – модуль Юнга, μ – коэффициент Пуассона.

Значение двухосного модуля упругости $E/(1-\mu)$ вычисляют на пологой области зависимости (2.2) при больших значениях прогиба мембраны w , т.е. значением первого слагаемого можно пренебречь (формула (2.3)):

$$\frac{E}{1-\mu} = \frac{P \cdot a^4}{C_2 \cdot h \cdot w^3}. \quad (2.3)$$

Радиационное облучение осуществлялось посредством использования установки гамма-облучения с ионизирующими источниками кобальт-60. Мощность облучения составляет 77 рад/с, время набора дозы в 1 мегарад составляет 3 ч 36 мин. Для каждой дозы облучения измерялось по 5 образцов. Итоговое значение механической прочности и двухосного модуля упругости материала алюминия определялось как среднее арифметическое.

Экспериментально были определены значения избыточного давления разрыва. Во всех случаях мембранные структуры выдерживают избыточное давление не менее 1.6 атм, что позволяет использовать данные конструкции в вакуумной

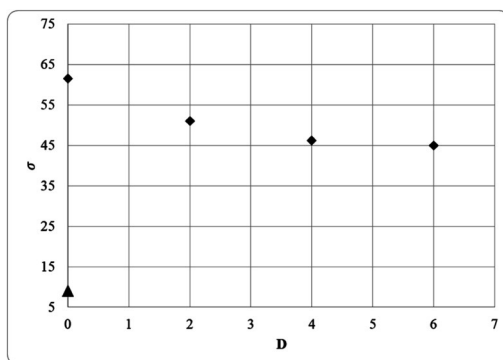


Рис. 4. Зависимость механической прочности от дозы облучения, где треугольником обозначены литературные данные, а ромбиками — данные, полученные в ходе проведения экспериментов для данной работы. По оси x — D — доза облучения, измеряемая в Мрад, по оси y — σ — механическая прочность, измеряемая в ГПа.

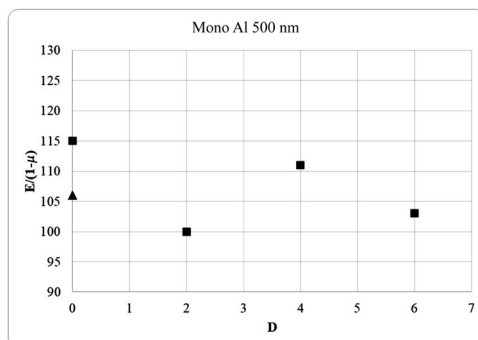


Рис. 5. Зависимость двухосного модуля упругости от дозы облучения, где треугольником обозначены литературные данные, а квадратами — данные, полученные в ходе проведения экспериментов для данной работы. По оси x — D — доза облучения, измеряемая в Мрад, по оси y — $E/(1-\mu)$ — двухосный модуль упругости, измеряемый в ГПа.

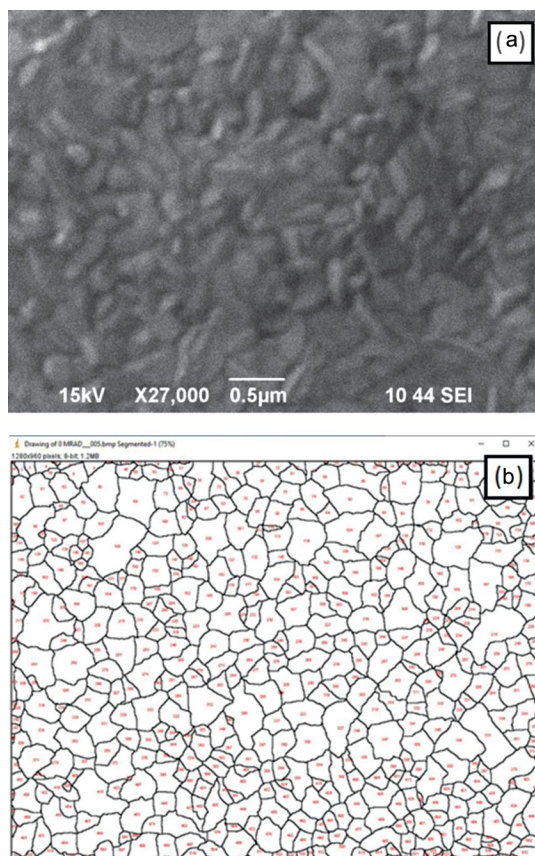


Рис. 6. Анализ размера зерен:

(a) – фотография с РЭМ; (b) – результат анализа для дозы 0 Мрад.

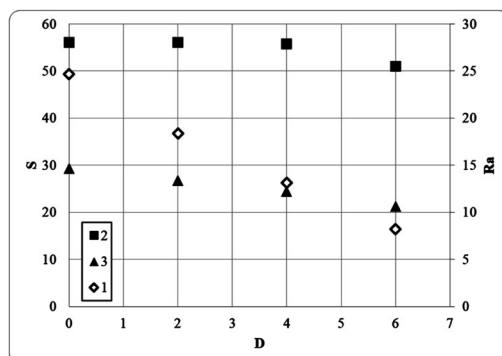


Рис. 7. Зависимость размера зерен и шероховатости от дозы облучения. По оси x – D – доза облучения, измеряемая в Мрад, по основной оси y – S – размер зерен, измеряемый в нанометрах по вспомогательной оси y – Ra – шероховатость поверхности, измеряемая в нанометрах.

среде. На рис. 4 показаны результаты измерений механической прочности. Согласно литературным данным, значение механической прочности композитной пленки Al-12.6%Si составляет 9.0 ГПа [6].

На рис. 5 показаны результаты расчета двухосного модуля упругости по формуле (2.3). Согласно литературным данным двухосный модуль упругости составляет 106 ГПа при коэффициенте Пуассона тонкопленочного материала алюминия составляет 0.34 и модуле Юнга 70 ГПа [7].

Из графиков выше можно заметить, что с увеличением дозы радиационного облучения значение механической прочности уменьшается с 61 до 45 ГПа (27%), величина двухосного модуля упругости уменьшается с 115 до 103 ГПа (11%). В результатах работы [8] указано, что по результатам моделирования величина удлинения алюминия снижается на 62% после облучения материала.

С помощью программы ImageJ сделан расчет количества зерен и их площади в области мембран. Изображение для анализа получено на микроскопе. Данная программа используется в мировом сообществе для подсчета количества частиц на образце [9].

Результат анализа размера зерен для различной дозы облучения при фиксированной площади анализа показал, что при увеличении дозы излучения до 6 Мрад количество зерен увеличивается от 468 до 635, а средний размер зерен уменьшается от 29.3 до 22.1 нм.

Также для определения размера зерен использовался рентгеновский дифрактометр Rigaku с длиной волны излучения 1,541 Å, напряжении на рентгеновской трубке 40 кВ и анодном токе 30 мА. Обобщенные результаты показаны на рис. 7.

Таким образом, результаты анализа поверхности объясняют эффект уменьшения механической прочности в процессе облучения за счет уменьшения размера зерна и шероховатости на тонкопленочной алюминиевой мембране. Различные авторы проводили оценку механической прочности материалов от размера зерен по прямому и обратному закону Холла–Петча [7]. В работе [10] указано, что для диапазона размера зерен металлов от 10 до 35 нм работает обратный закон Холла–Петча, т.е. механическая прочность прямо пропорциональна корню из размера зерна ($\sigma_{\text{макс}} \sim \sqrt{d}$). Для данного диапазона размера зерен характерен тип деформации в виде перемещения решеточных дислокаций из тройных стыков границ зерен при скольжении границ зерен. Полученные тенденции в текущей работе (при размере зерен от 22.1 до 29.3 нм) совпадают с тенденциями работы [10].

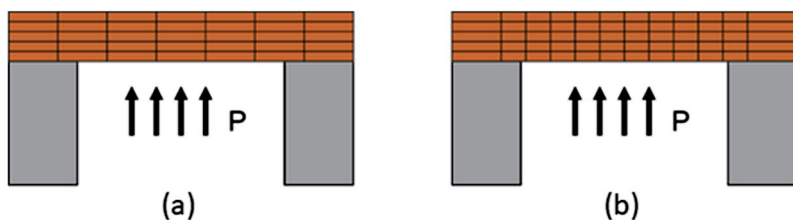


Рис. 8. Изменение количества межзеренных границ: (а) – до облучения; (б) – после облучения.

Очевидно, что при увеличении количества зерен возрастает количество межзеренных границ. Это ведет к возрастанию вероятности критической деформации при аналогичном значении избыточного давления (рис. 8).

Выводы. Определено влияние радиационного облучения на механические свойства тонких пленок на примере тонкой монослойной мембраны из алюминия. С увеличением дозы радиационного облучения до 6 Мрад значение механической прочности уменьшается с 61 до 45 ГПа (27%), величина двухосного модуля упругости уменьшается с 115 до 103 ГПа (11%). Данный эффект можно объяснить уменьшением размера зерна и шероховатости на тонкопленочной алюминиевой мембране. Для размера зерен алюминия от 22.1 до 29.3 нм используется обратное соотношение Холла—Петча. В процессе исследований было определено, что в процессе облучения увеличивается количество межзеренных границ и количества самих зерен, что ведет к возрастанию вероятности деформации.

Сравнивая полученный эффект с результатами работ других исследователей [11, 12] можно заметить, что подобные эффекты изменения механических свойств (механической прочности, жесткости, двухосного модуля упругости) от радиационного воздействия многослойных структур были выявлены ранее, но для других материалов и изготовленных другим методом. Например, в статье [13] приведены результаты измерения механической прочности меди и стали при разных температурах облучения. В работе [14] представлены результаты исследования на радиационную стойкость материала кремния макротолщины. Часто в качестве материала исследований выбирают кремний и материалы на его основе, например карбид кремния [15]. Проводят исследования радиации на свойства материала толстого алюминия, использующегося в ядерных реакторах [16, 17].

В мировой практике исследование влияния эффекта радиационного облучения для материал тонкопленочного Al, полученного методом магнетронного осаждения, проведено ранее не было, что подтверждает новизну данного экспериментального исследования.

Благодарности. Работы выполнены на оборудовании ЦКП “МСТ и ЭКБ” НИУ МИЭТ при поддержке гранта Президента РФ (№ МК-1692.2022.4).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Юдинцев В. Радиационно стойкие интегральные схемы. Надежность в космосе и на земле // Электроника: Наука, Технология, Бизнес. 2007. № 5. стр. 72–77.
2. Демин Г.Д., Ким П.П., Дюжеев Н.А. Моделирование рабочих характеристик МЭМС элемента динамической маски с электромеханическим оптическим затвором для задач рентгеновской нанолитографии // Нанотехнологии и нанотехнологии. Труды XXVI Международного симпозиума. 2022. 643 с.
3. Кузнецов Н.В. Сечение одиночных случайных сбоя СБИС при воздействии тяжелых заряженных частиц // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационного воздействия на радиоэлектронную аппаратуру. 2007. № 1–2. С. 52–55. <https://henke.lbl.gov/> (дата обращения: 29.05.2023).
4. Дюжеев Н.А., Гусев Е.Э., Махиборода М.А. Исследование механических свойств тонкопленочных мембран из оксида и нитрида кремния // Известия РАН. Механика твердого тела. 2022. № 5 с. 103–113. <https://doi.org/10.31857/S0572329922050063>
5. Mueller S.F.M.G., Fornabaio M., Zagar G., Mortensen A. Microscopis strength of silicon particles in an aluminum-silicon alloy // Acta Materialia. 2016. V. 105. P. 165–175. <http://doi.org/10.1016/j.actamat.2015.12.006>

6. *Lim Y.Y., Chaudhri M., Enomoto Yuji* Accurate determination of the mechanical properties of thin aluminum films deposited on sapphire flats using nanoindentations // *J. Mater. Res.* 1999. V. 14. P. 2314–2327. <https://doi.org/10.1557/JMR.1999.0308>
7. *Nabbi R., Wolters J.* Investigation of radiation damage in the aluminum structures of the German FRJ-2 research reactor // International Atomic Energy Agency (IAEA). 1998. https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/36/026/36026552.pdf
8. *Khan M. et al.* A Study of the Structural and Surface Morphology and Photoluminescence of Ni-Doped AlN Thin Films Grown by Co-Sputtering // *Nanomaterials*. 2022, V. 12. № 21. P. 3919. <https://doi.org/10.3390/nano12213919>
9. *Quek S.S. et. al* The inverse hall–petch relation in nanocrystalline metals: A discrete dislocation dynamics analysis // *J. Mech. Phys. Solids*. 2016. V.88. P. 252–266. <https://doi.org/10.1016/j.jmps.2015.12.012>
10. *Козловский А.Л., Гладких Т.Ю., Здоровец М.В.* Радиационные дефекты в нитриде алюминия при облучении низкоэнергетичными ионами C^{2+} // *Химия высоких энергий*. 2019. Т. 53. № 2. С. 135–139. <https://doi.org/10.1134/S0023119319020098>
11. *Seong-Hyun Hwang et al.* Effects of Al₂O₃ surface passivation on the radiation hardness of IGTO thin films for thin-film transistor applications // *Applied Surface Science*. 2022. V. 578. P. 152096. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.152096>
12. *Овчинников И.И. и др.* Влияние радиационных сред на механические характеристики материалов и поведение конструкций (обзор) // Интернет-журнал “НАУКОВЕДЕНИЕ”. 2012. № 4.
13. *Кузнецов Н.В.* Радиационная стойкость кремния: монография / Н.В. Кузнецов, Г.Г. Соловьев. М: Энергоатомиздат. 1989. 95 с.
14. *Лебедев А.А., Иванов А.М., Строкан Н.Б.* Радиационная стойкость SiC и детекторы жестких излучений на его основе // *Физика и техника полупроводников*. 2004. Т. 38. № 2. С. 129–150.
15. *Mohamad A.A., Farrokh K.* Evaluation of the radiation damage effect on mechanical properties in Tehran research reactor (TRR) clad // *Nucl. Eng. Technol.* 2020. V. 52. № 12. P. 2975–2981. <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.05.028>
16. *Waldemar A.M.* Radiation Effects in Materials. InTech. 2016. 462p. <https://doi.org/10.5772/61498>

STUDY OF THE EFFECT OF RADIATION EXPOSURE ON GRAIN SIZE AND MECHANICAL PROPERTIES OF THIN-FILM ALUMINUM

N. A. Dyuzhev^a, E. E. Gusev^{a,*}, E. O. Portnova^a, and M. A. Makhiboroda^a

^a National Research University of Electronic Technology (MIET), Zelenograd, Moscow, 124498 Russia

*e-mail: bubbledouble@mail.ru

Received 30.05.2023

Revised 07.06.2023

Accepted 11.06.2023

Abstract – For the first time, an experimental dependence of the grain size and mechanical properties of a thin-film aluminum material on the dose of short-wave radiation has been obtained. A thin film of aluminum was formed on a silicon substrate using magnetron sputtering. The effect of a decrease in mechanical strength and biaxial elastic modulus with increasing radiation dose was identified. This effect is explained by a decrease in grain size and roughness on a thin-film aluminum membrane. For the microscopically measured range of aluminum grain sizes, the inverse Hall-Petch relation is used. During the research, it was determined that dur-

ing irradiation the number of grain boundaries and the number of grains themselves increases, which leads to an increase in the likelihood of deformation.

Keywords: mechanical properties, grain size, thin films, membranes, mechanical strength, biaxial elastic modulus

REFERENCES

1. V. Udintsev, "Radiation-resistant ICs. Spaceward and Earth Reliability," *Elektronika: Nauka Tekhn. Biznes*, No. 5, 72–77 (2007).
2. G.D. Denim, P.P. Kim, and N.A. Dyuzhev, "Simulation of MEMS Performance Characteristics of a Dynamic Mask Element with an Electromechanical Optical Shutter for X-ray Nanolithography," in *Proc. of XXVI Symposium "Nanophysics and Nanoelectronics" Nizhnii Novgorod, 2022*, Vol. 1 (Nizhegorodsk. Gos. Univ. Im Lobachevskogo, 2022), pp. 543–544 [in Russian].
3. N.V. Kuznetsov, "Cross-section of single random failures of VLSI under the influence of heavy charged particles," *Vopr. Atom. Nauki Tekhn. Ser.: Fiz. Radiats. Vozd. Elektron. Appar.*, No. 1–2, 52–55 (2007). <https://henke.lbl.gov/> (29.05.2023).
4. N.A. Dyuzhev, E.E. Gusev, and M.A. Makhboroda, "Study of the mechanical properties of thin-film membranes made of oxide and silicon nitride," *Mech. Solids* **57**, 1044–1053 (2022). <https://doi.org/10.3103/S002565442205017X>
5. Sf. M.G. Mueller, M. Fornabaio, G. Zagar, and A. Mortensen, "Microscopis strength of silicon particles in an aluminium-silicon alloy," *Acta Mater.* **105**, 165–175 (2016). <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2015.12.006>
6. Y.Y. Lim, M. Chaudhri, and Yuji Enomoto, "Accurate determination of the mechanical properties of thin aluminum films deposited on sapphire flats using nanoindentations," *J. Mater. Res.* **14**, 2314–2327 (1999). <https://doi.org/10.1557/JMR.1999.0308>
7. R. Nabbi and J. Wolters, "Investigation of radiation damage in the aluminum structures of the German FRJ-2 research reactor," in *Proc. of 8th Meeting of the Int. Group on Research Reactor: IG-ORR8, Munich, Germany, 17–20 April 2001* (Munich, 2001), pp. 237–243 https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/36/026/36026552.pdf
8. M. Khan et al., "A Study of the Structural and Surface Morphology and Photoluminescence of Ni-Doped AlN Thin Films Grown by Co-Sputtering," *Nanomater.* **12** (21), 3919 (2022). <https://doi.org/10.3390/nano12213919>
9. S.S. Quek, et al., "The inverse hall–petch relation in nanocrystalline metals: A discrete dislocation dynamics analysis," *J. Mech. Phys. Solids* **88**, 252–266 (2016). <https://doi.org/10.1016/j.jmps.2015.12.012>
10. A.L. Kozlovskii, T. Yu. Gladkikh, and M.V. Zdorovets, "Radiation defects in aluminum nitride under irradiation with low-energy C²⁺ ions," *High Energy Chem.* **53**, 143–146 (2019). <https://doi.org/10.1134/S0018143919020097>
11. Seong-Hyun Hwang, Kie Yatsu, Dong-Ho Lee, et al., "Effects of Al₂O₃ surface passivation on the radiation hardness of IGTO thin films for thin-film transistor applications," *Appl. Surf. Sci.* **578**, 152096 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.152096>
12. I.I. Ovchinnikov, I.V. Ovchinnikov, M. Yu. Bogina, et al., "Influence of radiation environments on mechanical characteristics of materials and behavior of constructions (review)," *Internet-Zh. Naukoved.*, No. 4, 110TBH412 (2012). <https://naukovedenie.ru/PDF/110tvn412.pdf>
13. N.V. Kuznetsov an, G.G. Solovyov, *Radiation Resistance of Silicon* (Energoatomizdat, Moscow, 1989) [in Russian].
14. A.A. Lebedev, A.M. Ivanov, and N.B. Strokan, "Radiation hardness of SiC and nuclear radiation detectors based on the SiC films," *Fiz. Tekh. Poluprovodnik.* **38** (2), 129–150 (2004).
15. A.A. Mohamad and K. Farrokh, "Evaluation of the radiation damage effect on mechanical properties in Tehran research reactor (TRR) clad," *Nucl. Eng. Technol.* **52** (12), 2975–2981 (2020). <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.05.028>
16. *Radiation Effects in Eaterials*, Ed. by W.A. Monteiro (InTech, 2016). <https://doi.org/10.5772/61498>