

## بررسی سینتیک رشد لایه نازک کربن آمورف انباشت شده توسط روش کندوپاش پرتو یونی با استفاده از

### مدل آورامی

الهام محقق پور<sup>۱\*</sup>، مجید مجتهدزاده لاریجانی<sup>۲</sup>، مرجان رجبی<sup>۳</sup>، رضا غلامی پور<sup>۴</sup>، مجید ملک<sup>۵</sup>

۱ استادیار، پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، تهران، ایران

۲ استاد، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، تهران، ایران

۳ استادیار، پژوهشکده مواد پیشرفته و انرژی های نو، سازمان پژوهشهای علمی و صنعتی ایران، تهران، ایران

۴ دانشیار، پژوهشکده مواد پیشرفته و انرژی های نو، سازمان پژوهشهای علمی و صنعتی ایران، تهران، ایران

۵ کارشناس، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، تهران، ایران



سینتیک رشد لایه نازک کربن آمورف طی فرآیند انباشت در رابطه با مورفولوژی سطح و تحولات ساختاری لایه ها بررسی شد. لایه نازک کربن آمورف با استفاده از روش کندوپاش پرتو یونی بر سطح شیشه انباشت شد. بر اساس مدل آورامی، رشد لایه نازک کربن آمورف در ضخامت‌های بالاتر از ۵۶ nm (بعد از ۹۰۰ s انباشت) به صورت ۲ بعدی انجام می شود و معادله پیشنهادی جهت بررسی فرآیند رشد در تحقیق حاضر به صورت  $V=1-\exp(-2 \times 10^{-7} t^2)$  می باشد. تغییرات نرخ ضخامت مانند مدل پیشنهادی آورامی از یک نمودار S شکل در بازه زمانی ۳۰۰ s تا ۴۵۰۰ s تبعیت می کند. به این صورت که سرعت افزایش ضخامت در مراحل اولیه و انتهای فرآیند لایه نشانی کم است در حالی که در میانه مسیر زیاد می باشد. بررسی مورفولوژی سطح لایه ها نشاندهنده ارتباط زبری سطح با تحولات ساختاری لایه ها تحت تاثیر افزایش ضخامت می باشد. بر اساس نتایج طیف رامان، حداکثر جایجایی مکان پیک G در نمونه انباشت شده با ضخامت ۳۶۰ nm همراه با کاهش نرخ رشد لایه ایجاد می شود. نسبت  $I_D/I_G$ ، اندازه خوشه های گرافیتی با پیوند  $(La) sp^2$  و زبری لایه مذکور به ترتیب برابر با ۱/۲ و ۱/۴۸ nm و  $20/39 \pm 4/8$  nm می باشد.

چکیده

تاریخ دریافت:

۱۴۰۰/۰۲/۱۱

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۰/۰۲/۱۸

لایه نازک، کربن آمورف، سینتیک رشد، مدل رشد آورامی، کندوپاش پرتو یونی

واژگان کلیدی

## Growth kinetic study of amorphous carbon thin film deposited by Ion Beam Sputtering deposition (IBSD) method using Avrami's model

E. Mohagheghpour<sup>1\*</sup>, M. Mojtahedzadeh Larijani<sup>2</sup>, M. Rajabi<sup>3</sup>, R. Gholamipour<sup>4</sup>, Sh. Sheibani<sup>5</sup>

1. Assistant Prof., Materials Engineering, Radiation Applications Research School, Nuclear Sciences and Technology Research Institute, Tehran, Iran
2. Professor, Physics and Accelerators Research school, Nuclear Sciences and Technology Research Institute, Tehran, Iran
3. Assistant Prof., Department of Advanced Materials and Renewable Energy, Iranian Research Organization for Science and Technology (IROST), Tehran, Iran
4. Associated Prof., Department of Advanced Materials and Renewable Energy, Iranian Research Organization for Science and Technology (IROST), Tehran, Iran
5. BSc, Physics and Accelerators Research school, Nuclear Sciences and Technology Research Institute, Tehran, Iran

### Abstract

The growth kinetic of amorphous carbon (a-C) thin films was investigated in the relation to the surface morphology and structural transformations. The a-C thin films were deposited by ion beam sputtering technique on the glass substrate. According to Avrami's model, the growth at the thickness above 56 nm (after 900 s deposition) is two-dimensional and the proposed equation for investigating about the growth process of amorphous carbon thin film in the present study is as follows:  $V=1-\exp(-2 \times 10^{-7} t^2)$ . Transformations of the thickness is similar to proposed Avrami's model follow a characteristic s-shaped, or sigmoidal, profile during deposition time from 300s to 4500s, where the transformation rates are low at the beginning and the end of the transformation but rapid in between. Surface roughness and structural transformation depend on the film thickness. Raman spectra showed the maximum displacement in G peak position created in the film thickness equal 360 nm with the reduction of the growth rate. The  $I_D/I_G$  ratio, the size of graphite crystallites with  $sp^2$  bonds ( $L_a$ ) and the roughness of this layer is equal to 1.2, 1.48 nm and  $20.39 \pm 4.8$  nm, respectively.

### Keywords

Thin film, Amorphous carbon, growth kinetic, Avrami growth model, Ion beam sputtering deposition

## ۱- مقدمه

مطالعه و فهم فرآیندهای اتمی که در طول انباشت و رشد لایه نازک کربن آمورف رخ می‌دهد، از آنجا که بر خواص لایه مانند چگالی، خواص نوری، مکانیکی و الکتریکی اثر می‌گذارد، بسیار مهم است. به طور ویژه، بمباران یونی تأثیر قابل توجهی بر واکنشهای سطحی می‌گذارد و فرآیندهای فیزیکی در طول انباشت و رشد فیلم را تحت تأثیر قرار می‌دهد [۱]. همچنین روش انباشت و انرژی یون یکی از عوامل اصلی تعیین کننده مکانیزم رشد لایه نازک کربن آمورف می‌باشد [۲].

اگرچه، مدل‌های زیادی در مورد فرآیند رشد فیلم‌های کربن آمورف تحت بمباران یونی پیشنهاد شده است، تعدادی از آنها بر جانشینی اتم‌های پیوندی  $sp^2$ ، افزایش دانسیته به وسیله کاشت و آزادسازی تنش درونی که از طریق مفهوم میله‌های گرمایی مطرح می‌شود و جانشینی اتم‌ها و همچنین آزادسازی تنش در طول میله‌های گرمایی پایه گذاری شده است [۱، ۳]. همچنین تحقیقاتی بر پایه شبیه‌سازی مولکولی مراحل اولیه رشد کربن آمورف تتراهدرال (ta-C) وجود دارد که تنها بر تحولات پیوندهای  $sp^3$  در طول فرآیند انباشت تمرکز دارند [۴، ۵]. هرچند مدل سینتیکی که توسط آورامی در اواخر دهه ۳۰ گسترش یافت، قبلاً برای تشریح رفتار موقتی تغییر فاز به کار می‌رفت [۶، ۷]، این نظریه کاربرد وسیعی در تشریح فرآیند هسته‌سازی و رشد فازهای جدید دارد و البته پیشرفت‌های جدیدی برای گسترش و انعطاف پذیری هرچه بیشتر این فرضیه ارائه شده است. به عنوان مثال از معادله آورامی جهت مطالعه روند تغییرات ترکیبات گرانولومتری نیز استفاده شده است [۸]. مدل آورامی بر این فرض که سیستمی که در حال تغییر فاز می‌باشد از ذرات ریز فاز جدید تشکیل شده است، بنا شده است.

در فرآیند رشد لایه نازک دانه‌های فاز جدید مصداق هسته پایدار است. البته در این مرحله تعداد ذرات اصلی متناسب با زمان کاهش می‌یابد و این کاهش با دو مکانیزم اتفاق می‌افتد:

۱- ذرات به دانه تبدیل می‌شوند (در فرآیند رشد لایه نازک مصداق تبدیل خوشه به هسته است).

۲- دانه‌های در حال رشد با ذرات موجود آمیخته می‌شوند یا به عبارتی دیگر ذرات را جذب می‌کنند (در فرآیند رشد لایه نازک مصداق تبدیل هسته‌های پایدار (جوانه) به جزیره است).

آورامی با انجام این فرض‌های فیزیکی و انجام یک سری محاسبات ریاضی که بررسی رابطه تابعی بین تعداد ذرات و حجم فاز جدید در حال رشد پرداخته و نظریه خود را بیان می‌کند.

معادله آورامی همچنین به نام معادله Johnson-Mehl- Avrami- Kohmogoro (JMKA) شناخته شده است [۹]. استفاده از مدل مذکور جهت بررسی تحولات در لایه نازک محدودیتهایی دارد که در مقالات مختلف به آن پرداخته شده است [۳، ۱۰-۱۲]، اما با توجه به آنکه هیچ مدل ساده‌ای که جهت بررسی سینتیک رشد در لایه

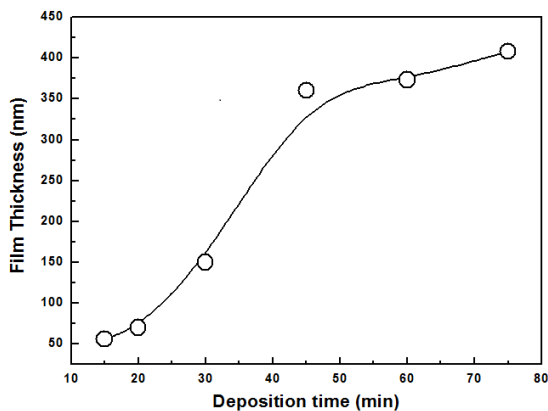
نازک مانند معادله JMKA وجود ندارد و کارهای کمی در زمینه فهم سیستماتیک و ارزیابی مدل آورامی به صورت غیرخطی در لایه نازک انجام شده است [۳] و علاوه بر آن مدل‌های پیشنهاد شده در مقالات نتیجه محاسبات پیچیده است [۳-۵]، در تحقیق حاضر از مدل آورامی برای بررسی سینتیک رشد لایه نازک کربن آمورف استفاده شد.

البته در تعدادی از تحقیقات، سینتیک هسته‌سازی و رشد الماس با استفاده از مدل آورامی بررسی شده است [۱۳-۱۵]. به عنوان مثال در تحقیقی که توسط کانستنت و همکارانش انجام شد، سینتیک هسته‌سازی و رشد الماس بر زیر لایه مس پلی کریستالین با استفاده از روش CVD بررسی شده است. نتایج حاکی از انطباق مدل رشد الماس با مدل آورامی می‌باشد [۱۳]. اما تاکنون از مدل مذکور جهت بررسی سینتیک رشد لایه نازک کربن آمورف انباشت شده بر سطح شیشه و با استفاده از روش کندوپاش پرتو یونی استفاده نشده است.

در تحقیق حاضر، جهت فهم فرآیندهای اتمی که در طول انباشت و رشد لایه نازک کربن آمورف رخ می‌دهد، وابستگی تحولات ساختاری و سطحی لایه کربن با افزایش ضخامت بررسی شده است. علاوه بر آن میزان تطابق روند تغییرات حجم کربن انباشت شده بر سطح زیر لایه شیشه‌ای در طول انباشت جهت استفاده به عنوان پوشش نوری با مدل پیشنهادی آورامی بررسی شده است.

## ۲- مواد و روش‌ها

لایه نشانی کربن آمورف با استفاده از دستگاه MBM 100- China و توسط روش کندوپاش پرتو یونی (IBSD) بر شیشه به عنوان زیر لایه با زبری  $0.73 \pm 1/31$  nm انجام شد. عملیات چربی زدایی و شستشوی نمونه‌ها در حمام اولتراسونیک به ترتیب با استفاده از استن به مدت ۱۰ min، اتانول ۵ دقیقه و آب مقطر، انجام شد. از ورق گرافیتی خالص (با ابعاد  $15 \text{ cm} \times 12$ ) که با سطح زیر لایه زاویه ۴۵ درجه می‌سازد، به عنوان منبع کربن استفاده شد. خلاء تقریبی پایه در محفظه لایه‌نشانی قبل از ورود گاز آرگون به محفظه به  $10^{-5} \times 1-2$  Torr می‌رسد و انباشت در دمای اتاق انجام شد. انرژی پرتو یون و جریان



شکل ۱: نمایش روند تغییرات ضخامت لایه نازک کربن آمورف در زمانهای min

۳۰-۷۵ (چاپ مجدد با اجازه از Elsevier [۲۹])

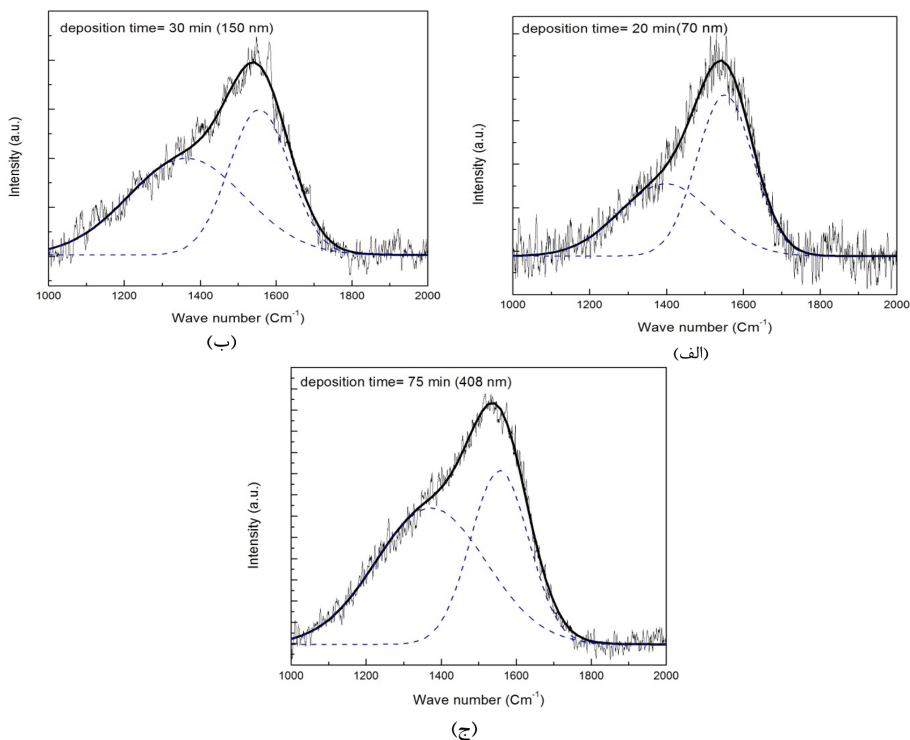
### ۳- نتایج و بحث

در جدول ۱ روند تغییرات ضخامت، زبری و تحولات ساختاری لایه‌های انباشت شده بر شیشه گزارش شده است. همانطور که ملاحظه می‌شود با افزایش زمان لایه‌نشانی ضخامت لایه نازک به دلیل افزایش انباشت ماده رسوب کرده افزایش پیدا می‌کند، اما تغییراتی در نرخ افزایش ضخامت ملاحظه می‌شود (شکل ۱). به اینصورت که در محدوده ضخامت مورد بررسی سرعت افزایش ضخامت به دو مرحله پرسرعت و آرام تقسیم می‌شود. با توجه به این مساله که سرعت انباشت اتمهای کربن با کنترل پارامترهای انباشت ثابت نگه داشته شده است، کاهش سرعت افزایش ضخامت بعد از ۴۵ min به افزایش چگالی لایه نازک کربن آمورف مربوط می‌شود. این فرآیند احتمالاً به افزایش تحرکات اتمی در نتیجه انباشته شدن انرژی بمباران یونی در طول انباشت مربوط می‌باشد که منجر به کاهش حجم آزاد لایه نازک و افزایش چگالی می‌شود [۱۶].

تارگت به ترتیب ۲/۲ keV و ۲۵ mA در طول لایه نشانی ثابت نگه داشته شد. ۶ نمونه لایه نازک کربن آمورف در بازه زمانی ۱۵ min تا ۷۵ min دقیقه در دمای محیط انباشت شد. ضخامت و مورفولوژی لایه‌ها با استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی (DS 95; Denmark) که با فرکانس ۳ Hz و نیروی ۰/۱ nN سطح  $2 \times 1 \mu\text{m}$  را به صورت غیر تماسی روبش می‌کند، محاسبه و بررسی شده است. برای بررسی تحولات ساختاری پوشش کربنی با افزایش ضخامت از طیف‌سنجی رامان استفاده شده است. برای این منظور از دستگاه رامان (Raman; Labram HR 800, Germany) با لیزر Nd:YAG، طول موج ۵۳۲ nm و توان ۱ mW استفاده شده است. جهت بررسی ساختار کربن از نظر بلوری از دستگاه پراش پرتو ایکس (XRD; Si $\alpha$ -mens500 CuK $\alpha$  ( $\lambda = 0.154 \text{ nm}$ )) استفاده شده است.

جدول ۱: پارامترهای انباشت: زمان انباشت، ضخامت، زبری و اطلاعات مستخرج از طیف رامان (چاپ مجدد با اجازه از Elsevier [۲۹])

کد نمونه	زمان انباشت (min)	ضخامت (nm)	زبری (nm)	مکان پیک $G (\text{Cm}^{-1})$	$I_D/I_G$
t15	۱۵	۵۶	$3.0 \pm 59/37$	-	-
t20	۲۰	۷۰	$1.0 \pm 0.7/21$	۱۵۵۲/۳	۰/۴۴۷۲
t30	۳۰	۱۵۰	$0.8 \pm 6.0/66$	۱۵۵۵/۶	۰/۷۰۵۲
t45	۴۵	۳۶۰	$4/20 \pm 8.0/39$	۱۵۷۰/۷	۱/۲۰۲۶
t60	۶۰	۳۷۳	$0.3 \pm 25/63$	۱۵۵۹/۱	۰/۷۳۷۳
t75	۷۵	۴۰۸	$0.1 \pm 36/71$	۱۵۵۵/۸	۰/۷۸۳۱



شکل ۲: نمایش طیف رامان نمونه‌های انباشت شده در زمان متفاوت: الف) ۲۰ min، ب) ۳۰ min، ج) ۷۵ min

معادله مدل سینتیکی پیشنهاد شده توسط آورامی جهت بررسی فرآیند هسته گذاری-رشد، عبارت است از:

$$V=1-\exp(-\beta t^k) \quad (1)$$

که در آن  $K$  توان آورامی است و به طبیعت سینتیکی فرآیند بستگی دارد،  $V$  کسر حجمی لایه انباشت شده است (معادل نسبت سطح پوشش داده شده به سطح کل از هر منطقه انتخابی به صورت تصادفی) و  $t$  مدت زمان سپری شده از انباشت است [۲۲، ۶].  $\beta$  ثابت آهنگ واکنش است که طی یک فرآیند به وسیله معادله آرنهئوس با دمای  $T$  متناسب است:

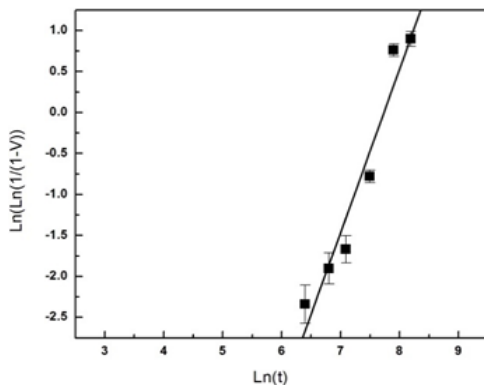
$$\beta=A\exp(-E/RT) \quad (2)$$

که در آن  $A$  ضریب ثابت،  $E$  انرژی فعال سازی و  $R$  ثابت عمومی گازی می باشد. البته با توجه به اینکه در تخمین حاضر شرایط ایزواستاتیک و هم‌دما در نظر گرفته شده است، از تغییرات  $\beta$  نسبت به دما چشم پوشی می شود. براساس گزارش پنج و همکارانش در مورد سینتیک رشد، مقدار عددی توان  $K$ ، یک مقدار ثابت و منطبق بر بعد رشد است. بنابراین  $K=2$  نشان دهنده انجام فرآیند رشد به صورت دو بعدی است و به همین ترتیب  $K=3$  نماد رشد به صورت سه بعدی می باشد [۳]. بنابراین با استفاده از مدل آورامی تعیین بعد امکان پذیر می باشد. به این صورت که با نوشتن معادله ۱ به شکل معادله ۳:

$$\ln(\ln 1/(1-V))=\ln\beta+k \ln t \quad (3)$$

و رسم نمودار  $\ln(\ln 1/(1-V))$  بر حسب  $\ln t$ ، از معادله آورامی جهت استخراج برخی اطلاعات مربوط به ماهیت هندسه و رشد لایه استفاده می شود. شیب خط حاصل، مقدار  $K$  را مشخص می کند. بنابراین در زمانهای دیگر امکان تخمین حجم تغییر فاز یافته امکان پذیر می باشد.

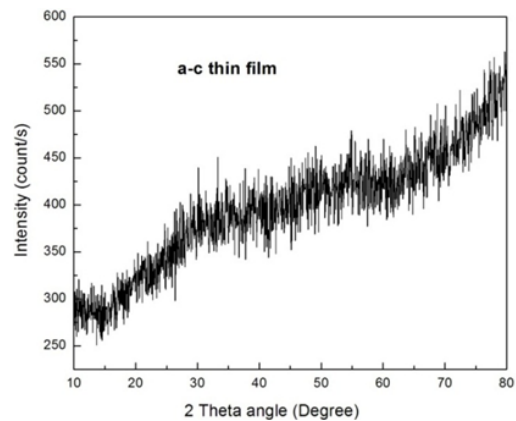
جهت استفاده از معادله ۱ برای بررسی روند تغییرات کسر حجمی افزایش ضخامت نسبت به زمان انباشت در تحقیق حاضر، با توجه به اینکه ۶ نمونه در محدوده زمانی ۱۵-۷۵ min انباشت شده‌اند و ضخامت نمونه انباشت شده در ۷۵ min، ۴۰۸ nm است، بنابراین ضخامت هر کدام از نمونه ها کسری از ضخامت نمونه  $t_{75}$  در نظر گرفته شد و جهت تخمین  $K$ ، نمودار  $\ln(\ln 1/(1-V))$  بر حسب



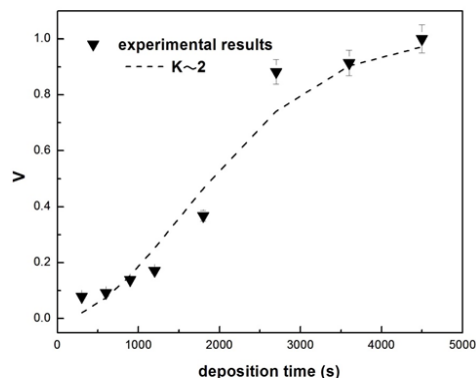
شکل ۴: نمودار تغییرات نمودار  $\ln(\ln 1/(1-V))$  بر حسب  $\ln t$  لایه های انباشت شده در زمانهای مختلف

به طور کلی در زمانهای طولانی تر، به دلیل رشد همگن لایه های کربنی سرعت رشد کاهش می یابد. مکانیزم رشد همگن زمانی رخ می دهد که جزیره های تشکیل شده در هم ادغام شده باشند [۱۷]. بررسی تحولات ساختاری با استفاده از طیف سنجی رامان، افزایش چگالی لایه بعد از ۴۵ min لایه نشانی را اثبات می کند. همانطور که در جدول ۱ ملاحظه می شود، عدد موج پیک  $G$  در نمونه انباشت شده با ضخامت ۳۶۰ nm (بعد از ۴۵ min لایه نشانی) به بیشترین مقدار خود در میان نمونه های مورد بررسی رسیده است. حال با توجه به اینکه یکی از عواملی که منجر به افزایش عدد موج پیک  $G$  می شود، افزایش مقدار تنش فشاری در ساختار می باشد [۱۸]، می توان نتیجه گرفت که در نمونه مذکور حداکثر تنش فشاری نسبت به نمونه های دیگر مورد بررسی ایجاد شده است که ناشی از افزایش چگالی در لایه است. البته افزایش مقدار تنش فشاری در لایه می تواند باعث افزایش مقدار پیوند های  $sp^3$  در ساختار شود [۱۹-۲۱]. در شکل ۲ به صورت نمونه طیف رامان تعدادی از نمونه های مورد بررسی نمایش داده شده است.

در شکل ۳ طیف XRD لایه کربن انباشت شده بر شیشه نمایش داده شده است. همانطور که ملاحظه می شود، طیف در محدوده ی بزرگی پیک ندارد بنابراین ساختار لایه های انباشت شده بر شیشه، آمورف است.



شکل ۳: طیف XRD لایه نازک کربن انباشت شده بر شیشه



شکل ۵: نمودار کسر انباشت شده ( $V$ ) بر حسب زمان انباشت در  $K=2$

مکانیزم رشد بعد از ایجاد یک لایه پیوسته بر زیرلایه، به این صورت می باشد که با توجه به اینکه اتمهای که بر سطح فرود می آیند به اتمهای کربنی که قبلاً انباشت شده اند برخورد می کنند و اولویتی بین ایجاد پیوند اتمها با لایه نازک در حال رشد و یا پیوند با اتمهای در حال انباشت از لحاظ ترمودینامیکی وجود ندارد [۱۷، ۲۳] اما به دلیل اینکه امکان برخورد موثر بیشتری با اتمهای انباشت شده بر سطح دارند، بنابراین رشد به صورت تقریباً لایه به لایه ادامه می یابد. نمودار تغییرات کسر انباشت شده (V) بر حسب زمان انباشت با استفاده از مدل نظری آورامی در مقایسه با مقادیر تجربی در شکل ۵ نمایش داده شده است.

همانطور که ملاحظه می شود، نتایج انطباق نسبتاً خوبی با منحنی مشخصه S شکل پیشنهادی آورامی دارند بنابراین معادله پیشنهادی جهت بررسی فرآیند رشد در تحقیق حاضر به شکل زیر می باشد.

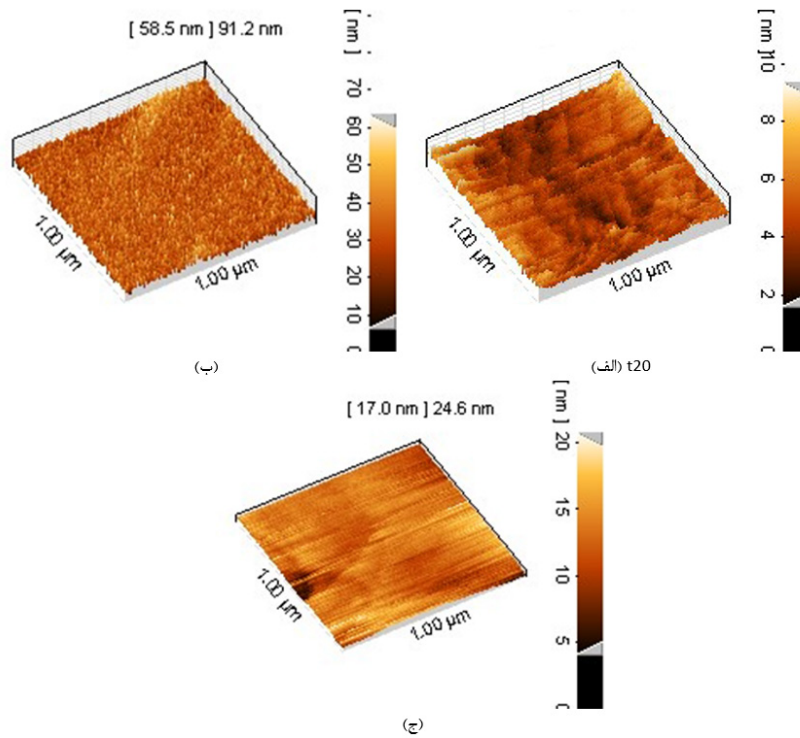
Lnt رسم شد ( شکل ۴).

همانطور که در شکل ۴ ملاحظه می شود، خط عبوری با کمترین انحراف خطی با معادله زیر می باشد:

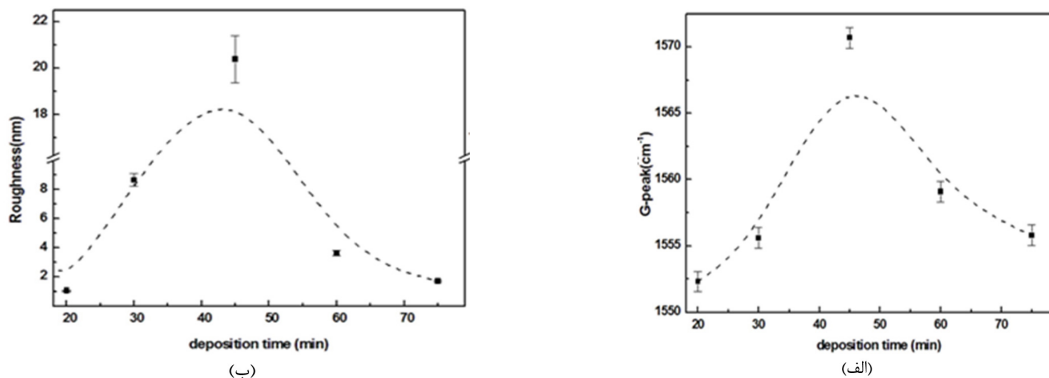
$$Y = -15.41 + 2x \quad (4)$$

که ۶۷٪ با مقادیر تجربی انطباق دارد و مقدار انحراف از استاندارد (SD) برابر با ۰/۳۶ می باشد. با توجه به اینکه مقدار K در لایه های انباشت شده در محدوده زمانی ۱۵-۷۵ min حدود ۲ تخمین زده شده است، بنابراین می توان نتیجه گرفت که رشد در ضخامت های بالاتر از ۵۶ nm در دو بعد انجام می شود و آهنگ هسته گذاری بالاست [۳، ۶].

بنابراین مدل رشد از رشد جزیره ای در شرایطی که هنوز لایه کامل و به هم پیوسته ای شکل نگرفته است (محدوده ضخامت کوچکتر از ۵۰ nm) به مدل رشد لایه-لایه تغییر پیدا می کند. دلیل تغییر



شکل ۶: نمایش توپوگرافی سطح لایه های انباشت شده در زمانهای مختلف با استفاده از آنالیز AFM (الف) ۲۰ min (ب) ۳۰ min (ج) ۷۵ min



شکل ۷: مقایسه روند تغییرات زبری و مکان پیک G با افزایش زمان انباشت

#### ۴- نتیجه گیری

یکی از پارامترهای موثر بر مورفولوژی سطح و خواص ساختاری لایه کربن ضخامت لایه است که متناسب با زمان انباشت می باشد. نتایج بررسی تغییرات ضخامت لایه نازک کربن آمورف انباشت شده بر شیشه با استفاده از روش کندوپاش پرتو یونی در بازه زمانی ۳۰۰ s تا ۴۵۰۰ K نشان می دهد که فرآیند رشد در توافق خوبی با مدل آورامی در برابر ۲ است و کسر حجمی انباشت شده بر زیر لایه از یک نمودار S شکل با گذشت زمان تبعیت می کند.

مدل رشد لایه نازک کربن آمورف تا قبل از تشکیل یک لایه پیوسته به صورت جزیره ای است بنابراین در مراحل اولیه لایه نشانی زبری سطح کاهش می یابد. در ادامه فرآیند لایه نشانی و با افزایش تنش پسماند در لایه، زبری سطح در جهت آزادسازی انرژی محبوس شده در ساختار افزایش می یابد.

$$V=1-\exp(-2 \times 10^{-7} t^2) \quad (5)$$

توپوگرافی سطح تعدادی از نمونه های انباشت شده با استفاده از دستگاه زبری سنجی در شکل ۶ نمایش داده شده است. بررسی روند تغییرات زبری لایه های انباشت شده نشان دهنده کاهش زبری سطح تا  $1/0.7 \pm 0/21$  nm در نمونه انباشت شده با ضخامت ۷۰ nm و سپس افزایش زبری سطح تا حدود  $20/39$  nm بعد از ۴۵ min لایه نشانی می باشد. همانطور که در جدول ۱ ملاحظه می شود زبری سطح مجدداً با افزایش ضخامت کاهش می یابد به طوری که بعد از ۷۵ min لایه نشانی دوباره به محدوده ۲ nm می رسد. کاهش زبری سطح تا ضخامت ۷۰ nm را می توان مربوط به انجام مرحله سوم و چهارم شکل گیری لایه نازک دانست [۲۴]. به این صورت که در ضخامت های کمتر از محدوده مورد بررسی مراحل اولیه ایجاد هسته، رشد و ایجاد جزیره با به هم پیوستن هسته ها انجام شده است و در این مرحله با ادامه فرآیند انباشت، جزایر به هم می پیوندند و تشکیل ساختار متخلخل می دهند که این امر منجر به کاهش زبری سطح می شود. در ادامه اتمهای ورودی، حفره ها و کانالهای موجود در لایه متخلخل را پر می کنند و بدین ترتیب زبری سطح همچنان کاهش می یابد تا اینکه به زبری  $1/0.7 \pm 0/21$  nm که در حد زبری زیر لایه شیشه ای است ( $1/31 \pm 0/73$  nm)، می رسد. بنابراین تا قبل از تشکیل یک لایه پیوسته مدل رشد لایه نازک کربن آمورف جزیره ای است زیرا اتمهای کربن تمایل بیشتری به ایجاد پیوند با اتمهای کربن نسبت به اتمهای سیلیس دارند بنابراین اتمهای ورودی ابتدا در حفره های موجود در سطح زیر لایه تجمع پیدا می کنند و تا ایجاد یک لایه پیوسته زبری سطح را کاهش می دهند [۲۵].

به نظر می رسد که در ادامه فرآیند لایه نشانی و با افزایش تنش پسماند در لایه بر اساس نتایج طیف سنجی رامان که در بخش قبل بیان شد، زبری سطح در جهت آزادسازی انرژی محبوس شده در ساختار افزایش می یابد. بنابراین علی رغم اینکه بر اساس مدل آورامی رشد در محدوده ضخامت مذکور به صورت دو بعدی انجام می شود و عملاً نباید شاهد تغییرات زیادی در زبری لایه های انباشت شده باشیم، ملاحظه می شود که به دلیل افزایش تنش پسماند در ساختار، آشفستگی سطحی در لایه افزایش می یابد. البته در تحقیقات دیگر نیز به کاهش انرژی محبوس شده در لایه ها با افزایش آشفستگی سطحی اشاره شده است [۲۶]. همچنین افزایش زبری سطح در استفاده از پرتو یونی پر انرژی به افزایش امکان نفوذ یونها به سطح ناشی از ایجاد میله های گرمایی نسبت داده شده است [۲۶-۲۸]. به این صورت که امکان جابجایی اتمهای کاشت شده در ساختار که با ایجاد میله های گرمایی تسهیل می شود در صورت انتقال اتمهای کاشت شده به سطح منجر به افزایش زبری لایه می شود. در شکل ۷ روند تغییرات زبری با مکان پیک G مقایسه شده است. همانطور که ملاحظه می شود، هر دو از یک روند پیروی می کنند.

۵- مراجع

- [1] S. Logothetidis, P. Patsalas, M. Gioti, A. Galdikas, L. Pranevicius, "Growth kinetics of sputtered amorphous carbon thin films: composition studies and phenomenological model", *Thin Solid Films*, Vol. 376, pp. 56-66, 2000.
- [2] F. Bi, K. Hou, P. Yi, L. Peng, X. Lai, "Mechanisms of growth, properties and degradation of amorphous carbon films by closed field unbalanced magnetron sputtering on stainless steel bipolar plates for PEM-FCs", *Applied Surface Science* Vol. 422, pp. 921-931, 2017.
- [3] E. Pang, N. Vo, T. Philippe, P. Voorhees, "Modeling interface-controlled phase transformation kinetics in thin films", *Journal of Applied Physics*, Vol. 117, pp. 175304, 2015.
- [4] C. Casiraghi, A. Ferrari, J. Robertson, "The smoothness of tetrahedral amorphous carbon", *Diamond and related materials*, Vol. 14, pp. 913-920, 2005.
- [5] M.A. Caro, V.L. Deringer, J. Koskinen, T. Laurila, G. Csányi, "Growth Mechanism and Origin of High sp<sup>3</sup> Content in Tetrahedral Amorphous Carbon", *Physical review letters*, Vol. 120, pp. 166101, 2018.
- [6] M. Avrami, "Kinetics of phase change. II transformation-time relations for random distribution of nuclei", *The Journal of chemical physics*, Vol. 8, pp. 212-224, 1940.
- [7] M. Avrami, "Kinetics of phase change. I General theory", *The Journal of chemical physics*, Vol. 7, pp. 1103-1112, 1939.
- [8] M. Kuśnierz, J. Łomotowski, "Using Avrami equation in the studies on changes in granulometric composition of algal suspension", *Hydrobiologia*, Vol. 758, pp. 243-255, 2015.
- [9] M. Fanfoni, L. Persichetti, M. Tomellini, "Order and randomness in Kolmogorov–Johnson–Mehl–Avrami-type phase transitions", *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 24, 355002, 2012.
- [10] A. Faleiros, T. Rabelo, G. Thim, M. Oliveira, "Kinetics of phase change", *Materials Research*, Vol. 3, pp. 51-60, 2000.
- [11] M. Weinberg, R. Kapral, "Phase transformation kinetics in finite inhomogeneously nucleated systems", *The Journal of chemical physics*, Vol. 91, pp. 7146-7152, 1989.
- [12] L. Levine, K.L. Narayan, K. Kelton, "Finite size corrections for the Johnson–Mehl–Avrami–Kolmogorov equation", *Journal of materials research*, Vol. 12 . pp. 124-132, 1997.
- [13] L. Constant, F. Le Normand, "HF CVD diamond nucleation and growth on polycrystalline copper: A kinetic study", *Thin Solid Films*, Vol. 516, pp. 691-695, 2008.
- [14] W.R. Lambrecht, C.H. Lee, B. Segall, J.C. Angus, Z. Li, M. Sunkara, "Diamond nucleation by hydrogenation of the edges of graphitic precursors", *Nature*, Vol. 364, pp. 607-610, 1993.
- [15] M. Tomellini, R. Polini, V. Sessa, "A model kinetics for nucleation at a solid surface with application to diamond deposition from the gas phase", *Journal of applied physics*, Vol. 70, pp. 7573-7578, 1991.
- [16] H. Dai, X. Cheng, C. Wang, Y. Xue, Z. Chen, "Structural, optical and electrical properties of amorphous carbon films deposited by pulsed unbalanced magnetron sputtering", *Optik*, Vol. 126, pp. 861-864, 2015.
- [17] S. Logothetidis, "Surface and interface properties of amorphous carbon layers on rigid and flexible substrates", *Thin Solid Films*, Vol. 482, pp. 9-18, 2005.
- [18] J.-K. Shin, C.S. Lee, K.-R. Lee, K.Y. Eun, "Effect of residual stress on the Raman-spectrum analysis of tetrahedral amorphous carbon films", *Applied Physics Letters*, Vol. 78, pp. 631-633, 2001.
- [19] P.C. Kelires, "Intrinsic stress and stiffness variations in amorphous carbon", *Diamond and Related Materials*, Vol. 10, pp. 139-144, 2001.
- [20] D. McKenzie, D. Muller, B. Pailthorpe, "Compressive-stress-induced formation of thin-film tetrahedral amorphous carbon", *Physical review letters*, Vol. 67, pp. 773, 1991.
- [21] J. Robertson, "Deposition mechanisms for promoting sp<sup>3</sup> bonding in diamond-like carbon", *Diamond and related materials*, Vol. 2, pp. 984-989, 1993.
- [22] J.W. Christian, C. JW, *The theory of transformations in metals and alloys. I. Equilibrium and general kinetic theory*, 1975.
- [23] M. Yari, M. Larijani, A. Afshar, M. Eshghabadi,



- A. Shokouhy, "Physical properties of sputtered amorphous carbon coating", Journal of alloys and compounds, Vol. 513, pp. 135-138, 2012.
- [24] L. Eckertova, Physics of Thin Films, chapter 1, Plenum Press, 1990.
- [25] M. Zhong, C. Zhang, J. Luo, "Effect of substrate morphology on the roughness evolution of ultra thin DLC films", Applied Surface Science, Vol. 254, pp. 6742-6748, 2008.
- [26] L. Bai, G. Zhang, Z. Wu, J. Wang, P. Yan, "Effect of different ion beam energy on properties of amorphous carbon film fabricated by ion beam sputtering deposition (IBSD)", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 269, pp. 1871-1877, 2011.
- [27] M. Salvadori, D. Martins, M. Cattani, "DLC coating roughness as a function of film thickness", Surface and Coatings Technology, Vol. 200, pp. 5119-5122, 2006.
- [28] Q. Jun, L. Jianbin, W. Shizhu, W. Jing, L. Wenzhi, "Mechanical and tribological properties of non-hydrogenated DLC films synthesized by IBAD", Surface and Coatings Technology, Vol. 128, pp. 324-328, 2000.
- [29] E. Mohaghehpour, M. Rajabi, R. Gholamipour, M.M. Larijani, S. Sheibani, "Correlation study of structural, optical and electrical properties of amorphous carbon thin films prepared by ion beam sputtering deposition technique", Applied Surface Science, Vol. 360, pp. 52-58, 2016.