КОЛЛОИДНЫЙ ЖУРНАЛ, 2025, том 87, № 4, с. 429–443

УДК 539.612:544.72

КАПИЛЛЯРНЫЕ СИЛЫ МЕЖДУ ШЕРОХОВАТЫМИ ПОВЕРХНОСТЯМИ, ПОЛУЧЕННЫМИ МЕТОДАМИ МИКРО/НАНОТЕХНОЛОГИИ

© 2025 г. И. В. Уваров[1, 2], В. Б. Световой[3, *]

[1]Центр научно-информационных технологий – Ярославль

Отделения физико-технологических исследований имени К.А. Валиева

НИЦ «Курчатовский Институт»,

ул. Университетская, д. 21, Ярославль, 150067 Россия

[2]Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Ярославский государственный университет им. П.Г. Демидова»,

ул. Советская, д. 14, Ярославль, 150003 Россия

[3]Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт

физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук,

Ленинский пр-т, д. 31, корп. 4, Москва, 119071 Россия

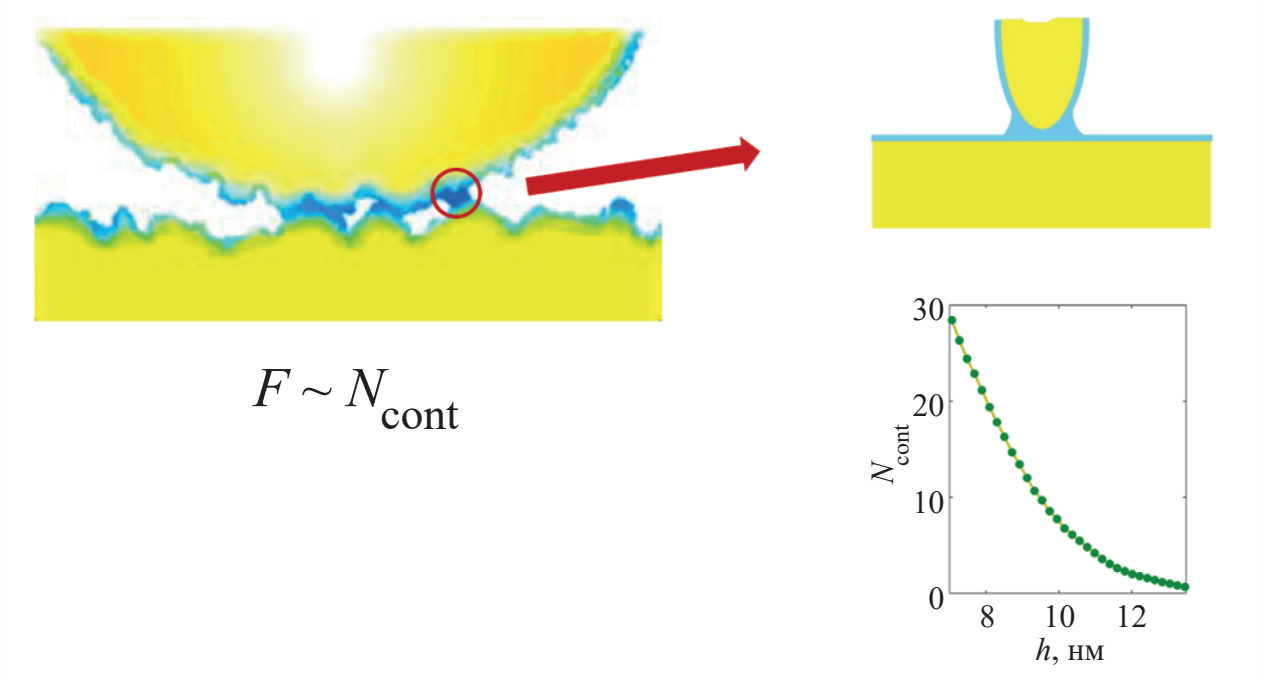
**e-mail: v.svetovoy@phyche.ac.ru*

Поступила в редакцию 16.05.2025 г.
После доработки 02.06.2025 г.
Принята к публикации 05.06.2025 г.

Капиллярные силы являются одним из основных источников адгезии между элементами микросистем. Адгезия может проявляться при изготовлении или эксплуатации устройства и играть негативную или позитивную роль. В работе описан метод оценки капиллярной силы между гидрофильными шероховатыми поверхностями как функции относительной влажности и номинальной площади контакта. Метод основан на подсчете числа пиков шероховатости, между которыми спонтанно образуются капиллярные мостики. Для реализации метода требуется детальная информация о шероховатости контактирующих поверхностей, которая может быть получена с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ). Идея метода иллюстрируется на примере термически напыленных пленок золота разной толщины, контактирующих с гладкой поверхностью кремния. Используются АСМ сканы поверхности площадью 20×20 мкм^2 и разрешением 4096 пикселей на линию. Развитая теория воспроизводит основные закономерности, наблюдаемые экспериментально. В частности, показано, что относительная роль капиллярных сил снижается с увеличением номинальной площади контакта, и основную роль в адгезии начинают играть дисперсионные силы. Результаты работы важны для проектирования микросистем и экспериментов по измерению дисперсионных сил.

Ключевые слова: капиллярные силы, шероховатость поверхности, адгезия, микросистемы

DOI: , **EDN:**



ВВЕДЕНИЕ

Адгезионные силы между шероховатыми поверхностями играют важную роль в современных микро/наноэлектромеханических системах (М/НЭМС). Это связано с тем, что адгезионные силы оказывают значительное воздействие как на процесс изготовления, так и на функционирование М/НЭМС. При изготовлении М/НЭМС заключительными технологическими операциями являются промывка и сушка. Для длинных и тонких элементов М/НЭМС капиллярные силы приводят к эффектам спонтанного залипания. Однако после полного высыхания жидкости слипшиеся элементы остаются в залипшем состоянии [1–3]. Это нежелательное явление частично удается предотвратить с помощью свехкритической сушки или путем использования гидрофобных покрытий, что усложняет процессы изготовления микросистем. Проблема, однако, возникает снова, когда готовое изделие эксплуатируется. Конденсация атмосферной влаги может привести к залипанию отдельных элементов и выходу устройства из строя. Так, залипание контактов является одной из главных проблем в МЭМС-переключателях [4]. Даже при использовании гидрофобных покрытий невозможно полностью исключить капиллярное взаимодействие [5]. Кроме того, спонтанное залипание возможно за счет более слабых дисперсионных сил [6], поскольку площади микроэлементов относительно велики, а расстояния между ними малы, так что результирующая сила может оказаться значительной. Поскольку проблема залипания элементов М/НЭМС имеет достаточно общий характер, ей посвящена обширная научная литература [3–6]. Кроме нормальных адгезионных сил, которым посвящена данная работа, возможны латеральные адгезионные взаимодействия [7], играющие важную роль в трибологии.

Для изучения процессов залипания элементов М/НЭМС в качестве тестовой структуры было предложено использовать залипший кантилевер [3, 8, 9]. Эта структура представляет собой тонкую прямоугольную балку длиной L и шириной w (рис. 1а), один конец которой жестко фиксирован на высоте H от подложки, а второй конец прилип к подложке. Было установлено [3], что, начиная с некоторой длины s, кантилеверы с длиной $L > s$ оказываются залипшими, а с длиной $L < s$ – свободными. Была получена связь между энергией адгезии на единицу площади Γ и параметрами кантилевера [8, 10]:

$$\Gamma = \frac{3Et^3H^2}{2s^4}, \qquad (1)$$

где E – модуль Юнга материала кантилевера, t – толщина кантилевера. Таким образом, зная длину неприлипшей части s и характеристики кантилевера, можно судить об энергии адгезии на некотором среднем расстоянии h_0 между поверхностями, которое определяется шероховатостями контактирующих поверхностей. Зависимость (1) тестировалась при воздействии на кантилевер электростатической силы, которая прикладывалась с помощью специально изготовленных электродов [11]. Этот метод измерения энергии адгезии использовался в основном для измерения энергии, связанной с капиллярными силами [12, 13]. Величина Γ при этом варьировалась в широких пределах от 100 мкДж/м^2 до 100 мДж/м^2 в зависимости от количества капиллярных мостиков, которые образуются между поверхностями при данной влажности окружающей среды. Эти величины

гораздо больше, чем характерная энергия адгезии $\Gamma = 1-10$ мкДж/м^2, индуцированная дисперсионным взаимодействием.

Энергия адгезии между гидрофобизированными поверхностями поликремния, связанная с дисперсионными силами, была измерена в единственной работе [5], в которой расстояние h_0 изменялось за счет изменения шероховатости поверхностей. Измеренная энергия адгезии варьировалась на 50% от измерения к измерению. При этом подчеркивалось, что адгезия вызвана дисперсионными силами, действующими в обширных областях, где нет прямого контакта между телами. В работе [14] было предложено использовать метод залипшего кантилевера для более точного измерения дисперсионных сил. С целью увеличения чувствительности предлагалось вместо микрокантилеверов использовать мини-кантилеверы длиной порядка 10 мм, изготовленные методами микротехнологии. Преимуществами этого метода является то, что кантилевер не теряет устойчивость при любом h_0, взаимодействуют плоские поверхности с большой площадью контакта, и путем изменения подложки метод можно применять к любым материалам.

С другой стороны, измерение капиллярных и дисперсионных сил успешно выполнялось с помощью АСМ [15–21]. К кончику АСМ кантилевера приклеивалась микросфера с типичным радиусом 50 мкм. Она сближалась с подложкой с помощью пьезодвигателя, а сила измерялась по отклонению кантилевера в процессе сближения [15]. При измерении капиллярных сил сферу приводили в контакт с подложкой, а затем расстояние между сферой и подложкой увеличивали (рис.1б,в) и измеряли силу отрыва объектов [20]. Измерения проводили при варьировании шероховатости контактирующих тел и влажности окружающей среды [21]. Было показано, что капиллярные силы убывают с увеличением шероховатости и плавно возрастают с увеличением влажности. С другой стороны, при измерении капиллярных сил с помощью залипшего микрокантилевера сила уменьшалась с увеличением шероховатости, но почти не изменялась при увеличении влажности [12] вплоть до 80%, а затем резко увеличивалась. При измерении дисперсионных сил с помощью мини-кантилеверов [22] оказалось, что капиллярные силы не играют существенной роли при измерениях в обычных атмосферных условиях.

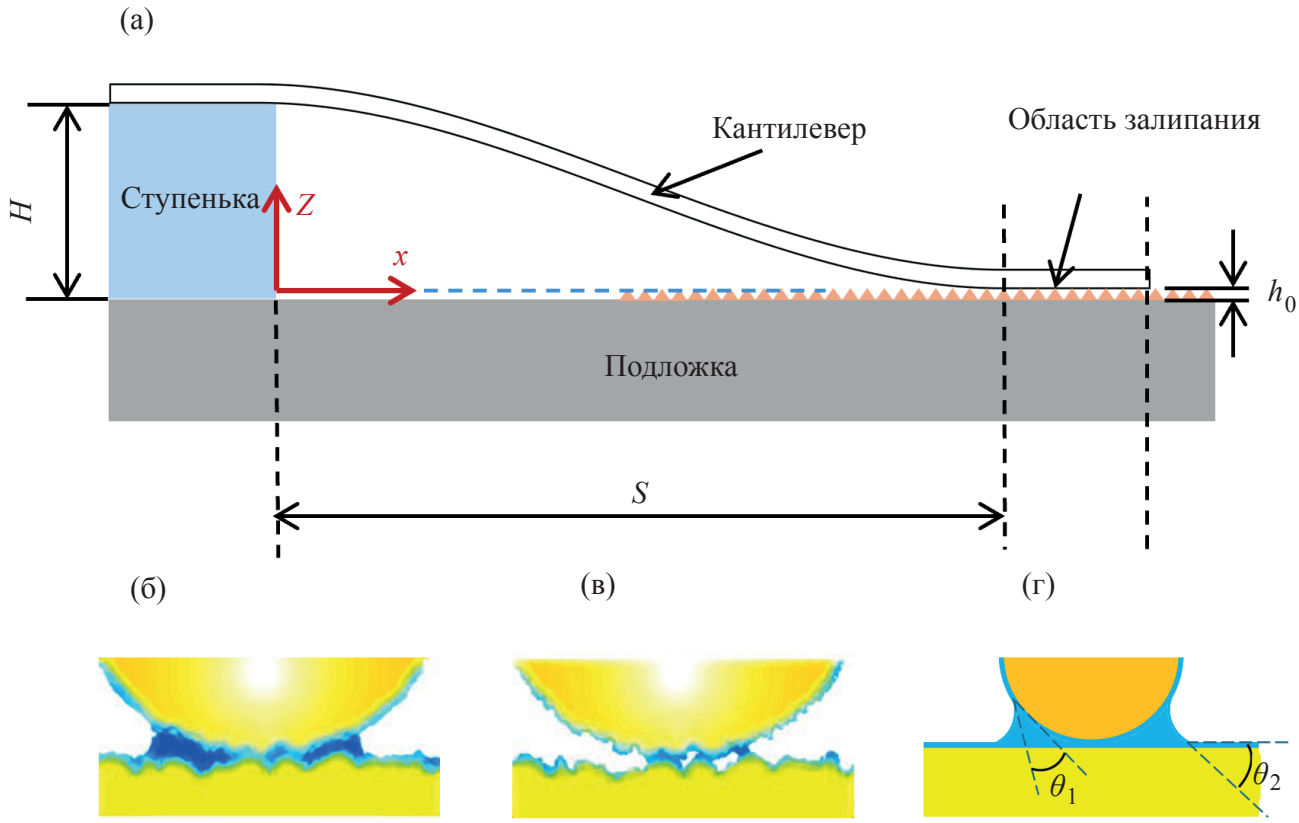


Рис. 1. (а) Схематичное изображение залипшего кантилевера. (б) Полный капиллярный контакт сферы и подложки, (в) неполный капиллярный контакт за счет капиллярных мостиков ((б) и (в) воспроизводятся с разрешения авторов [21]). (г) Схематическое изображение контактных углов при контакте сферы и плоскости.

Шероховатость взаимодействующих поверхностей играет ключевую роль как для дисперсионных сил на малых расстояниях [22, 23], так и для капиллярных сил [12, 21]. Особую значимость имеет тот факт, что шероховатость определяет равновесное среднее расстояние между контактирующими телами h_0. Этот параметр имеет особое значение для широкого круга задач, таких как энергия адгезии, электрическое сопротивление контактирующих тел, задачи опрессовки. Поскольку шероховатость может формироваться на основе различных физических принципов, невозможно построить общую теории шероховатого контакта. Казалось бы, многие поверхности демонстрируют самоафинное поведение [24], но это справедливо лишь на определенных латеральных масштабах. В частности, для поверхностей, полученных методами микротехнологии, этот масштаб менее или порядка 100 нм, тогда как характерный размер площади контакта в МЭМС более 10 мкм. В настоящей работе мы концентрируемся на шероховатости, формируемой на поверхностях в результате проведения операций микротехнологии. При анализе шероховатости чаще всего полагают, что амплитуда шероховатости является случайной величиной, подчиняющейся нормальному закону распределения [25, 26]. Однако анализ поверхностей, напыленных термическим или магнетронным методом [27, 28], а также полученных травлением термически выращенного оксида кремния [22], показал, что число высоких пиков на поверхности значительно выше, чем предсказывает нормальное распределение, а статистика высоких пиков хорошо описывается статистикой экстремальных значений [29, 27, 23]. Поскольку контакт шероховатых тел определяется именно высокими пиками, этот факт существенно влияет на адгезию между шероховатыми поверхностями.

В настоящей работе предложена основа метода расчета капиллярной силы между шероховатыми поверхностями, позволяющая, по крайней мере, качественно объяснить противоречивые экспериментальные данные по измерению капиллярных сил.

МЕТОД

Капиллярные силы представляют собой главный паразитный эффект при измерении дисперсионных сил с помощью АСМ. По этой причине были проведены специальные измерения адгезионной силы между микросферой и поверхностью, показавшие важную роль капиллярной составляющей даже при относительной влажности около 2% [20, 21]. Был сделан вывод о том, что между поверхностями остаются нанометровые капиллярные мостики, не позволяющие измерять слабые дисперсионные силы на фоне гораздо более сильных капиллярных сил. Даже при использовании очень жестких АСМ кантилеверов и гладких поверхностей [18] капиллярные силы доминировали на расстоянии менее 10 нм, где было возможно образование капиллярных мостиков. Гидрофобные покрытия заметно уменьшают капиллярные силы, но не исключают их полностью [5]. Важность капиллярных сил была продемонстрирована также при измерении энергии адгезии методом залипшего микрокантилевера. В отличие от контакта сферы и пластины, в этом эксперименте роль капиллярных сил проявлялась при гораздо большей относительной влажности [12, 13]. С другой стороны, измерение энергии адгезии с помощью залипших микрокантилеверов не выявило влияния капиллярных сил [22]. Таким образом, экспериментальные данные демонстрируют противоречие, которое является важным для понимания контакта между шероховатыми поверхностями в условиях конечной влажности.

Качественный анализ

Прежде чем переходить к детальному анализу, рассмотрим качественное объяснение наблюдаемых закономерностей. При сближении поверхностей капиллярный мостик с отрицательным радиусом кривизны r_c может возникнуть за счет спонтанной конденсации в зависимости от относительной влажности $RH = p / p_s$, где p – давление паров воды в атмосфере, а p_s – давление насыщенных паров. Кривизна капиллярного мостика включает еще один радиус кривизны (положительный), который считается большим по сравнению с r_c и поэтому не участвует в анализе. Радиус r_c определяется уравнением Оствальда-Фрейндлиха:

$$r_c = \frac{\sigma v_m}{k_B T \ln(RH)}, \qquad (2)$$

где k_B – постоянная Больцмана, $\sigma = 0.073$ Дж/м^2 – поверхностное натяжение воды, $v_m = 2.99 \times 10^{-29}$ м^3 – объем, приходящийся на одну молекулу в жидкой воде. Мостик возникает между телами, сближенными на расстояние $2r_c$. При влажности $RH = 0.02$ имеем $2r_c = -0.3$ нм, а при $RH = 0.5$ находим $2r_c = -1.5$ нм. Силу между сферической поверхностью радиусом R и плоскостью можно представить в виде [19]:

$$F = 2\pi R\sigma\left(\cos\theta_1 + \cos\theta_2\right), \qquad (3)$$

где $\theta_{1,2}$ – контактные углы на взаимодействующих поверхностях (рис. 1г). Для сферы с радиусом $R = 50$ мкм, как в работе [21], сила составляет $F \approx 50$ мкН. Здесь для простейшей оценки было принято $\theta_{1,2} = 0$. Эта сила является верхним пределом, который реализуется при взаимодействии гладких поверхностей. Сила между реальными поверхностями приближается к этому пределу лишь при высокой влажности $RH \to 1$. Реальные шероховатые поверхности контактируют по наиболее высоким пикам.

Допустим, что имеется всего один пик с радиусом вершины ξ. Тогда сила взаимодействия с гладкой поверхностью дается той же формулой (3) с заменой $R \to \xi$ [19]. В качестве ξ можно взять длину корреляции шероховатого профиля. Например, для напыленного золота $\xi \approx 50$ нм. Силу взаимодействия с единичным пиком $F \approx 50$ нН можно считать близкой к нижнему пределу для капиллярной силы между телами.

С другой стороны, минимальное расстояние между поверхностями определяется высотой наиболее высокого пика h_0. Эффективная площадь взаимодействия сферы и плоскости составляет $2\pi R h_0$. При условии $h_0 \ll R$ можно считать, что взаимодействуют плоские параллельные поверхности, разделенные зазором h_0. Между этими поверхностями кроме капиллярных сил действует дисперсионная сила

$$F_{\mathrm{DF}} = 2\pi R h_0 P_{\mathrm{DF}}\left(h_0\right), \qquad (4)$$

где $P_{\mathrm{DF}}\left(h_0\right)$ есть дисперсионное давление. Например, для взаимодействия Si-Au это давление составляет $P_{\mathrm{DF}}\left(h_0 = 20 \text{ нм}\right) \approx 1300$ Па и увеличивается пропорционально $h_0^{-3.5}$ с уменьшением h_0. Тогда при $h_0 = 20$ нм имеем $F_{\mathrm{DF}} \approx 8$ нН. Таким образом, на расстоянии $h_0 = 20$ нм сила между сферой и плоскостью полностью определяется капиллярным взаимодействием. Даже на расстоянии $h_0 = 10$ нм капиллярное взаимодействие все еще доминирует, если учесть, что в контакте с противоположной поверхностью находится несколько самых высоких пиков.

В случае микрокантилеверов площадь номинального контакта оценивается как 30×500 мкм^2 [12], поэтому имеем оценку $F_{\mathrm{DF}} \approx 18$ мкН при $h_0 = 20$ нм, что существенно превышает капиллярную силу для одного пика. Однако при влажности 80% все пики с высотой от 20 до 25 нм будут давать капиллярный вклад, и число таких пиков может быть значительным. В результате при высокой влажности капиллярные силы будут доминировать над дисперсионными. Для залипшего мини-кантилевера номинальная площадь контакта оценивается как 200×2000 мкм^2 [22], а сила $F_{\mathrm{DF}} \approx 520$ мкН. При этом даже значительное число высоких пиков с капиллярными мостиками будет давать лишь малый вклад в полную силу. В результате для мини-кантилеверов дисперсионные силы полностью доминируют.

Поверхностная шероховатость

Шероховатость взаимодействующих поверхностей определяет минимальное расстояние между контактирующими телами h_0. Сразу заметим, что контакт двух шероховатых поверхностей эквивалентен контакту гладкой и шероховатой поверхности, у которой топография равна сумме шероховатостей контактирующих поверхностей [30]. Это утверждение справедливо для нормального контакта при условии, что шероховатости контактирующих поверхностей не коррелируют друг с другом. В настоящей работе рассматриваются только поверхности, полученные при помощи микротехнологических операций.

На сегодняшний день наиболее продвинутым инструментом, позволяющим получить детальную информацию о поверхности, является АСМ. Он отличается высоким вертикальным разрешением, а латеральное разрешение ограничено несколькими нанометрами. Невозможно, однако, сканировать значительные площади. Удается получить сканы размером 20×20 мкм^2 с латеральным разрешением около 5 нм, что достаточно для анализа поверхностей, полученных микрообработкой. Детальное АСМ исследование шероховатости напыленных пленок проводилось в работах [27, 28], а поверхность кремния после стравливания оксида исследовалась в [22]. Наиболее важный результат этих исследований заключается в том, что поверхности, полученные в неравновесных условиях, имеют шероховатость, распределение которой сильно отличается от нормального закона. Более того, статистика высоких пиков шероховатости для разных материалов, полученных разными методами, хорошо описывается статистикой экстремальных значений или экспоненциальной статистикой [29]. Именно это свойство поверхностей в значительной степени определяет капиллярные силы между поверхностями, полученными методами микротехнологии.

АСМ скан представляет собой матрицу, у которой номер элемента ij задает координаты конкретного пикселя, а высота пикселя дается самим матричным элементом M_{ij}. Здесь $i, j = 1, 2, \ldots, J$, а полное число пикселей есть J^2. Форма записи сигнала АСМ позволяет предложить модель для описания шероховатой поверхности как набора колонн с поперечным сечением пикселя и высотой M_{ij} [31]. Анализ этой матрицы дает полную информацию о поверхности, доступную на уровне сегодняшнего технологического развития. На рис. 2 показаны плотности функции распределения шероховатости по высотам для трех разных материалов: Au (термически напыленный [27]), SiO_2 (осажденный магнетронным способом [28]) и Si (после жидкостного травления термически выращенного оксида [22]). Все поверхности демонстрируют значительное отклонение от нормального распределения, показанного штриховыми кривыми. Для каждого материала указана среднеквадратичная шероховатость w. Отметим, что оксид кремния демонстрирует очень низкую шероховатость, не превышающую типичную шероховатость кремниевой подложки 0.2–0.3 нм. С другой стороны, травление термически выращенного оксида имеет w около 1 нм, но самые высокие пики при этом достигают высоты 25 нм.

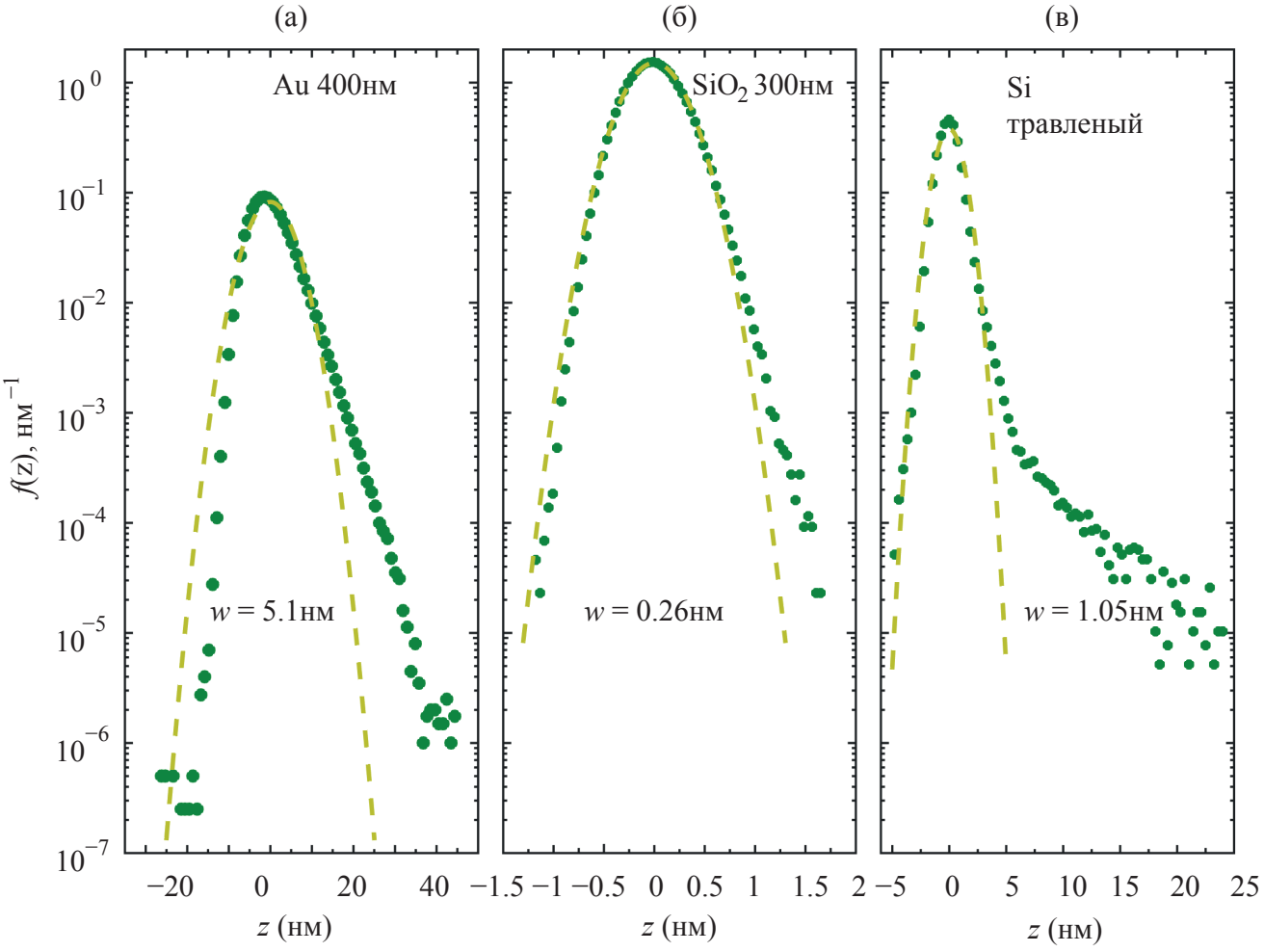


Рис. 2. Плотность функции распределения пикселей по высоте. (а) Пленка Au толщиной 400 нм, напыленная термически; скан 20×20 мкм^2, разрешение 4096 пикселей на линию. (б) Пленка SiO_2, осажденная магнетронным методом, толщина 300 нм; скан 5×5 мкм^2, разрешение 1024 пикселей на линию. (в) Поверхность Si после стравливания слоя SiO_2 толщиной 900 нм; скан 5×5 мкм^2, разрешение 1024 пикселей на линию.

Мы будем пользоваться также кумулятивной функцией распределения, которую удобно представить в виде:

$$\mathcal{P}(z) = 1 - e^{-\Phi(z)}, \quad (5)$$

где показатель экспоненты $\Phi(z)$ – неотрицательная возрастающая функция высоты колонн (пикселей) z. Такое представление удобно для анализа поведения высоких пиков, когда $z \to \infty$, а $\mathcal{P}(z) \to 0$. Плотность функции распределения получается отсюда простым дифференцированием:

$$f(z) = \frac{d\mathcal{P}}{dz} = \Phi'(z)e^{-\Phi(z)}. \quad (6)$$

Для всех металлов, напыленных в неравновесных условиях, когда подложка находится при комнатной температуре и не отжигается после напыления, показатель экспоненты $\Phi(z)$ демонстрирует характерное асимптотическое поведение при больших z [23, 27, 28]:

$$\ln \Phi = A + Bz, z \to \infty, \quad (7)$$

где A и B – некоторые параметры. Такое поведение показывает, что распределение пикселей по высотам асимптотически описывается статистикой экстремальных значений [29]. На рис. 3а показана функция $\Phi(z)$ для термически напыленной золотой пленки толщиной 400 нм (та же пленка, что и на рис. 2а), где штриховая линия показывает асимптотику при больших z. Как можно видеть, функция (7) хорошо описывает экспериментальные данные при больших z. Поскольку большие пики являются редкими событиями, то сканы, сделанные в разных местах на пленке, имеют заметный разброс данных при

самых больших z. Этим, в частности, объясняются значительные ошибки при измерении энергии [12, 21], относящиеся к одному и тому же среднему расстоянию между поверхностями h_0. В работе [22] было отмечено, что каждый акт адгезии реализуется на своем наборе высоких пиков, поэтому при каждом измерении величина h_0 является разной, что и приводит к кажущемуся разбросу энергии адгезии.

Наряду с распределением пикселей по высотам, поверхность можно описать корреляционной функцией, ответственной за латеральное распределение пиков шероховатости [32]. Корреляционная функция разности высот определяется как

$$g\left(r\right)=\frac{1}{A}\int d\mathbf{r}'\left[z\left(\mathbf{r}'+\mathbf{r}\right)-z\left(\mathbf{r}'\right)\right]^2, \qquad (8)$$

где $\mathbf{r}=\left(x,y\right)$ есть вектор в плоскости поверхности. Большинство поверхностей, полученных методами микротехнологии, демонстрируют самоафинную шероховатость, для которой корреляционная функция имеет вид

$$g\left(r\right)=\begin{cases} r^{2q}, r\ll\xi \\ 2w^2, r\gg\xi \end{cases}. \qquad (9)$$

Здесь параметр q характеризует степень изрезанности шероховатого профиля, а ξ есть характерный радиус пиков шероховатости, который можно назвать длиной корреляции. Типичное поведение корреляционной функции для пленки золота показано на рис. 3б, демонстрирующем также практический метод определения длины корреляции. Для золота показатель степени $q\approx 0.95$, что говорит о плавных профилях шероховатости. Среднее равновесное расстояние h_0 между телами при контакте является ключевым параметром, который контролирует как капиллярные, так и дисперсионные силы [31].

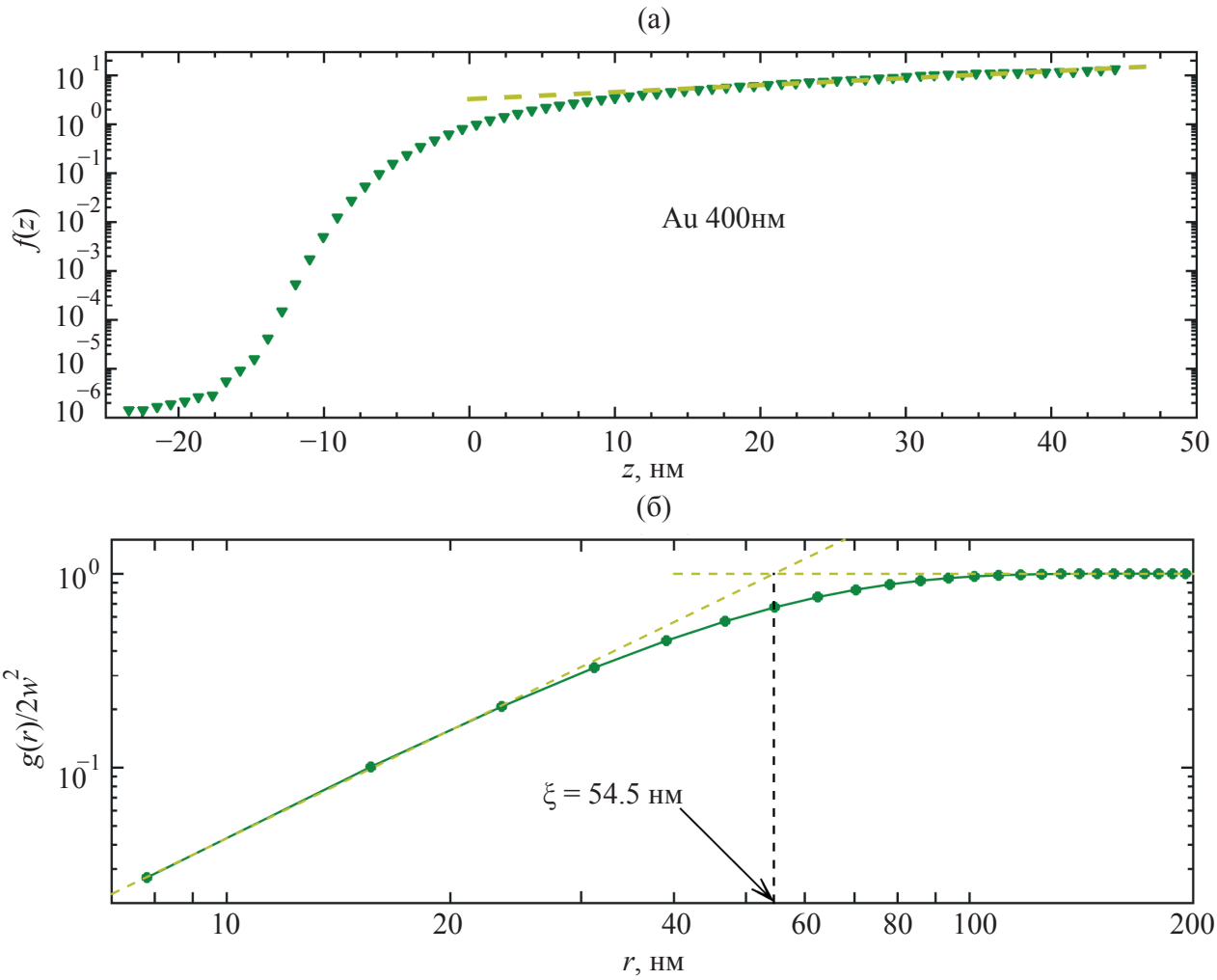


Рис. 3. (а) Показатель экспоненты в формуле (5) как функция высоты пикселей (треугольники). Штриховая линия описывает асимптотическое поведение $\Phi\left(z\right)$ при больших z. (б) Корреляционная функция как функция расстояния между точками скана. Пересечение асимптотик для малых и больших r дает корреляционную длину согласно выражению (9). Результаты представлены для пленки Au толщиной 400 нм.

В частности, этот параметр определяет площадь реального контакта S_{real} между поверхностями. Относительную площадь контакта между шероховатой и гладкой поверхностями можно определить следующим образом:

$$R\left(h_0\right) = \frac{S_{\text{real}}}{S} = \int_{h_0}^{\infty} dz f\left(z\right), \qquad (10)$$

где площадь контакта определена по отношению к номинальной площади S. По физическому смыслу соотношение (10) дает число пикселей с высотой более h_0, отнесенное к полному числу пикселей.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Характеристики пленок золота

Используя соотношение (6) для относительной площади контакта, находим из выражения (10):

$$R\left(h_0\right) = e^{-\Phi\left(h_0\right)}. \qquad (11)$$

Необходимо отметить, что величина h_0 остается неопределенной и должна вычисляться отдельно из баланса притягивающих и отталкивающих сил [31]. Соотношение (11) не позволяет вычислить число пиков, находящихся в прямом контакте с гладкой поверхностью, поскольку мы не знаем среднюю площадь контакта на один пик. Это число, однако, можно найти непосредственно из скана шероховатой поверхности. Сначала из матрицы M_{ij}, описывающей высоту пикселей, найдем все пиксели с высотой больше некоторой заданной величины h и построим бинарную матрицу с элементами $B_{ij} = 0$, если $M_{ij} < h$, и $B_{ij} = 1$ в противном случае. Число связанных компонент в матрице B_{ij} представляет собой число пиков, находящихся в прямом контакте с гладкой поверхностью, если среднее расстояние между поверхностями есть h.

Ниже в качестве примера мы используем пленки золота толщиной 120, 200 и 400 нм, напыленные термически и находящиеся в контакте с абсолютно жесткой гладкой поверхностью. Хорошим приближением к этой идеальной ситуации является контакт золотой пленки со стандартной кремниевой пластиной. В качестве исходных данных взяты сканы пленок золота, использованные в работе [27]. Число пиков $N_{\text{cont}}\left(h\right)$, которые находятся в прямом контакте с гладкой поверхностью, удобно отнести к полному числу пикселей в скане

$$N\left(h\right) = N_{\text{cont}}\left(h\right)\Big/J^2. \qquad (12)$$

Такая функция является универсальной, поскольку ее не нужно пересчитывать для скана другого размера. На рис. 4 показаны нормированное число контактирующих пиков $N\left(h\right)$ и относительная площадь контакта $\mathcal{R}\left(h\right)$ для всех трех пленок. Указаны также соответствующие среднеквадратичные шероховатости w и корреляционные длины ξ. Данные представлены для расстояний между поверхностями $h > 3w$, которые отвечают возможным равновесным средним расстояниям между поверхностями при контакте без внешней нагрузки. Наибольшее расстояние соответствует высоте наиболее высокого пика в скане. Обратим внимание, что область таких расстояний заметно зависит от шероховатости пленки.

В работе [27] был отмечен интересный эффект, демонстрирующий зависимость высоты наиболее высокого пика от исследуемой площади. Пусть размер пикселя есть Δ. Для скана размером 20×20 мкм^2 и разрешением $J = 4096$ пикселей на линию этот размер есть $\Delta = 4.88$ нм. Большие сканы позволяют вычислять различные характеристики поверхности на разных латеральных масштабах с использованием лишь одного скана. Пусть $L_{\text{n}} = J \cdot \Delta\big/2^{\text{n}}$ есть латеральный размер, на котором исследуется шероховатая поверхность. Скан размером J^2 можно разбить на $2^{2\text{n}}$ сканов размером L_{n} и вычислить интересующую нас величину для каждого из них, а затем усреднить по всем $2^{2\text{n}}$ сканам. В результате получим величину, определенную на масштабе L_{n}. Например, для пленки толщиной 200 нм среднеквадратичная шероховатость w, определенная на масштабах 1.25, 2.5, 5, 10 и 20 мкм, составляет 2.35 ± 0.09, 2.35 ± 0.06, 2.35 ± 0.05, 2.35 ± 0.04 и 2.35 нм соответственно. То есть от масштаба зависит не величина w, а лишь ее среднеквадратичное отклонение, рассчитанное по 256, 64, 16, 4 и 1 скану. Этот результат достаточно очевиден. Однако если таким же способом определить на каждом масштабе высоту наиболее высокого пика $h_{\max}$, то результат будет неожиданным. Для всех трех пленок он представлен на рис. 5. На каждом латеральном масштабе ошибки в $h_{\max}$ оказываются значительными. Это еще раз подчеркивает, что высота самых высоких пиков является сильно флуктуирующей величиной. Таким образом, каждый контакт является уникальным, поскольку реализуется на конкретном наборе высоких пиков. Это, однако, не означает, что невозможно сделать определенных выводов.

Зависимость высоты наиболее высокого пика от латерального размера можно предсказать теоретически. Условие того, что на площади L^2 имеется лишь один пиксель с высотой $h_{\max}$, можно представить в виде:

$$L^2 e^{-\Phi\left(h_{\max}\right)} = \Delta^2. \qquad (13)$$

Известно, что высокие пики описываются асимптотикой (7). Следовательно, зависимость $h_{\max}$ от L можно искать в виде [27], который непосредственно следует из (13):

$$h_{max}\left(L\right) = C_1 + C_2 \ln\left(L^2\big/\Delta^2\right), \qquad (14)$$

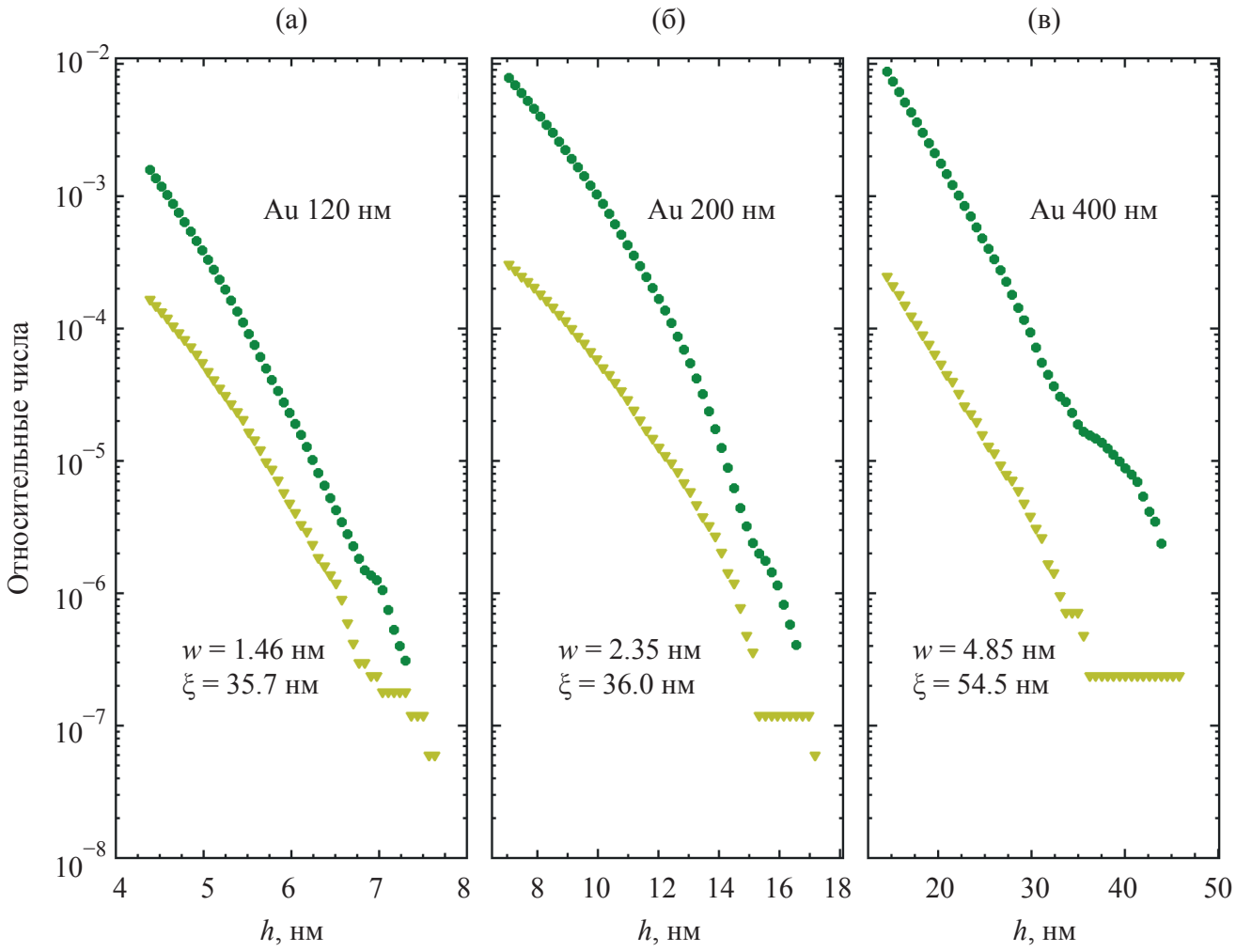


Рис. 4. Относительное число контактирующих пиков (треугольники) и относительная площадь контакта (круги) для пленок золота разной толщины. Область сканирования 20×20 мкм^2, разрешение $J = 4096$ пикселей на линию. (а) Пленка толщиной 120 нм. (б) Пленка толщиной 200 нм. (в) Пленка толщиной 400 нм.

где параметры $C_{1,2}$ можно определить из условия наилучшего согласия с $h_{\max}\left(L_{\text{n}}\right)$, определенных из сканов. Как можно видеть на рис. 5, эта зависимость хорошо описывает наблюдаемое поведение. Заметим, что выражение параметров $C_{1,2}$ через A и B в формуле (7) не вполне оправдано, поскольку последние определяются из данных, собранных в ячейки (бины) конечной ширины, и поэтому относятся не к одному, а к нескольким пикселям.

Капиллярные силы

Когда адгезионные силы измеряют с помощью АСМ кантилевера, к концу которого приклеена микросфера, эффективная площадь взаимодействия задает масштаб взаимодействия $L = \sqrt{2\pi R h_0}$. Следовательно, изменяя радиус сферы R, можно тестировать разные латеральные масштабы. При влажности 100% вокруг эффективной площади образуется сплошной мениск, а сила между сферой и подложкой определяется формулой (3). При меньшей влажности сила определяется всеми капиллярными мостиками, действующими в эффективной области взаимодействия между высокими пиками и подложкой. Взаимодействие между единичным пиком и подложкой также задается формулой (3), где в качестве R нужно взять радиус кривизны вершины пика [19]. В работе [23] установлено, что высокие пики шероховатости хорошо описываются полусфероидами высотой $2h$ и полушириной ξ. Тогда радиус кривизны вершины пика есть

$$R_{\text{a}} = \xi^2 / 2h. \qquad (15)$$

Удвоенная высота пика обусловлена тем, что номинальной поверхностью плоскости считается

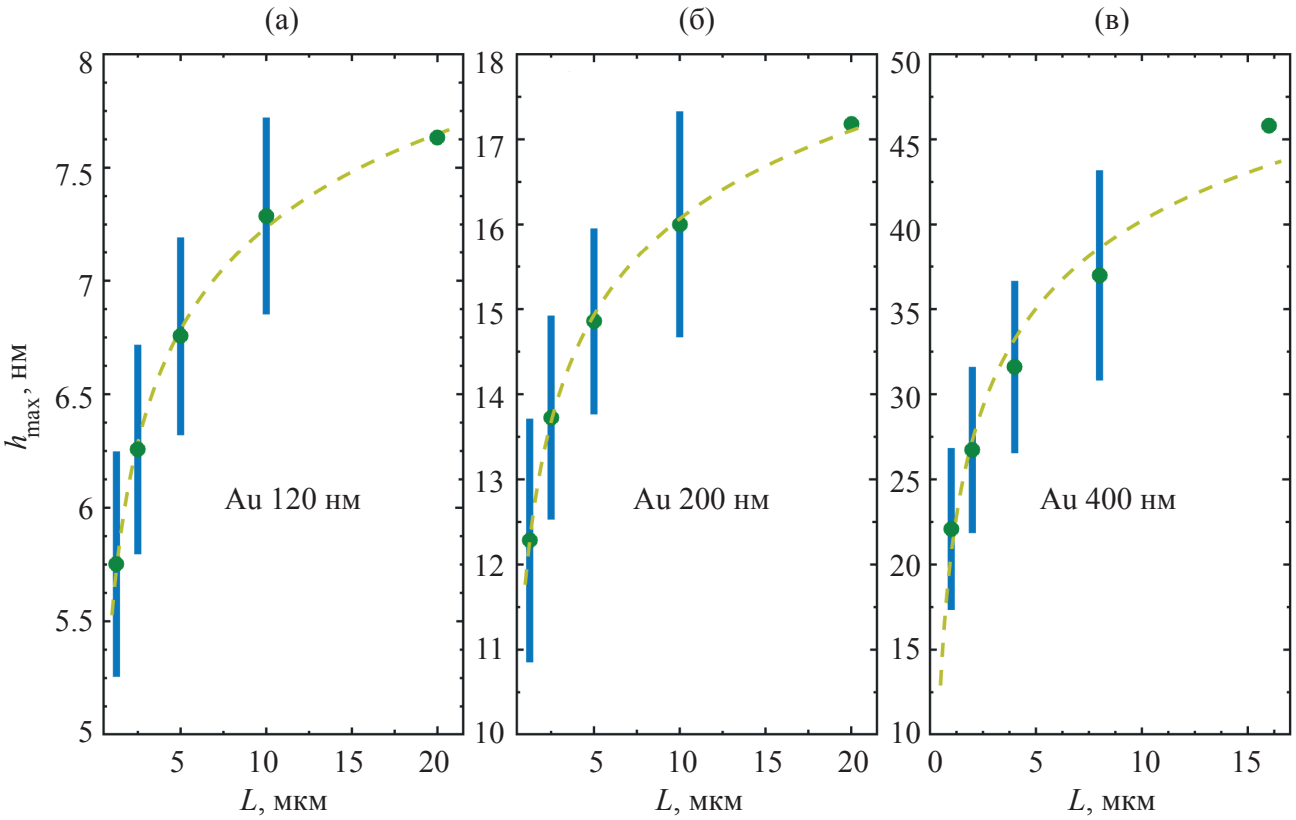


Рис. 5. Высота наиболее высокого пика как функция размера исследуемой области L. Графики (а), (б) и (в) относятся к пленкам различной толщины. Ошибки показаны синими отрезками, а ожидаемая теоретическая зависимость показана штриховой кривой.

средняя поверхность. Следовательно, пик простирается от h до $-h$, и полная высота полусфероида есть $2h$.

Необходимо также отметить, что равновесное среднее расстояние между поверхностями h_0 может быть меньше полувысоты пика, поскольку вершины пиков могут деформироваться пластически, если давление на вершину пика превышает предел текучести материала. Для золота на наномасштабах этот предел гораздо выше, чем для объемного материала, и составляет $P_f \approx 1$ ГПа [33]. В результате с подложкой может контактировать усеченный сфероид, но его радиус кривизны в месте контакта остается неизменным и определяется формулой (15).

Наряду с пластической деформацией контактирующие пики испытывают упругую деформацию. Наибольшая деформация достигается на пределе пластичности при давлении на пик $P = P_f$. В этом случае упругую деформацию δ можно оценить, используя теорию Герца:

$$\delta = R_a \left(\frac{3\pi P_f}{4E^*} \right)^2, \qquad (16)$$

где E^* – эффективный модуль Юнга, связанный с параметрами контактирующих материалов следующим образом:

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1-\nu_1^2}{E_1} + \frac{1-\nu_2^2}{E_2}. \qquad (17)$$

Здесь $E_{1,2}$ и $\nu_{1,2}$ – модуль Юнга и коэффициент Пуассона соответствующих материалов. Для золота ($E_1 = 60$ ГПа, $\nu_1 = 0.42$) и кремния ($E_2 = 169$ ГПа, $\nu_2 = 0.27$) имеем $E^* = 52$ ГПа. Оценка по формуле (16) показывает, что величина δ не превышает 0.25 нм, и этой величиной можно пренебречь.

При низкой влажности число капиллярных мостиков совпадает с числом контактирующих пиков. Для взаимодействия сферы с подложкой это число можно представить в виде:

$$N_R = \frac{2\pi R h_0}{\Delta^2} \mathcal{N}(h_0), \qquad (18)$$

где определенный ранее фактор N есть число контактирующих пиков, отнесенное к полному числу пикселей в скане. При конечной влажности пики

высотой менее h_0 также могут формировать капиллярные мостики, если их высота не меньше, чем $h_0 - H_c$. Здесь H_c есть высота мениска:

$$H_c = r_c\left(RH\right)\cdot\left(\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2\right). \qquad (19)$$

Таким образом, окончательное выражение для силы между сферой и плоскостью имеет следующий вид:

$$F_c = \left(\frac{2\pi\xi}{\Delta}\right)^2\left(\frac{h_0}{2h}\right)\sigma R\left(\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2\right)\times$$
$$\times\ \mathcal{N}\left(h_0 - H_c\right). \qquad (20)$$

Здесь H_c является функцией относительной влажности согласно (2) и (19). В качестве высоты пика h можно взять h_{max} на соответствующем латеральном масштабе. Уравнение (20) является основным результатом настоящей работы.

В уравнении (20), однако, имеется одна плохо определенная величина – равновесное среднее расстояние при контакте h_0. Этот параметр должен определяться из условий баланса притягивающих и отталкивающих сил. Основы этого подхода были заложены в классических работах [34, 35] и получили развитие в работе [36], где был разработан метод, получивший название самосогласованного подхода Дерягина. Этот подход был также адаптирован для случая слабой адгезии в работе [31]. Обсуждение уравнения баланса сил выходит за рамки настоящей работы, поскольку это уравнение также содержит ряд плохо определенных факторов.

Для оценок с помощью уравнения (20) предлагается использовать более грубый подход. Очевидно, что h_0 должно быть меньше высоты наиболее высокого пика h_{max} на латеральном масштабе L. Для золотых пленок данные для h_{max} можно получить из рис. 5. Зафиксируем некоторый уровень пластической деформации Δh высоких пиков. Положим, например, $\Delta h/2h_{max} = 0.1$. Уменьшение высоты пика связано только с его верхней половиной, поскольку средняя плоскость, определяющая номинальную поверхность пластины, остается неизменной при деформации пика. Тогда имеем:

$$h_0 = h_{max} - \Delta h, \qquad (21)$$

и для фактора $h_0/2h$ в формуле (20) находим значение 0.4. Функция $\mathcal{N}\left(h\right)$ и корреляционная длина ξ определяются из скана шероховатой поверхности. Результаты расчетов силы по формуле (20) и значения соответствующих параметров показаны в табл. 1. Интересно отметить, что среднее число контактирующих пиков есть $N_{cont}\left(h_0\right) = 6.7, 5.3$ и 1.8 для пленок толщиной 120, 200 и 400 нм соответственно.

Метод оценки равновесного среднего расстояния между поверхностями h_0 является слишком грубым, чтобы давать надежные значения силы. Однако он позволяет сравнить поверхности с разной среднеквадратичной шероховатостью. Из таблицы видно, что капиллярная сила убывает с ростом шероховатости, что наблюдалось в эксперименте [21]. Следует отметить, что величина силы существенно зависит от корреляционной длины, но эта зависимость экспериментально не исследовалась. Увеличение влажности эквивалентно уменьшению h_0, поэтому сила между поверхностями будет возрастать с увеличением RH. При низкой влажности рост является незначительным, поскольку высота мениска остается малой. С ростом RH влияние влажности становится существенным, и сила заметно возрастает, как показано на рис. 6. Штриховая линия показывает предельное значение силы, которое задается уравнением (2). При этом мениск становится сплошным, а величина предельной силы между золотом и кремнием составляет 27 мкН. Чем выше шероховатость, тем большая влажность требуется для образования сплошного мениска.

Когда номинальная площадь контакта становится большой, как в экспериментах [12, 22], число контактирующих пиков не увеличивается пропорционально площади. Это можно видеть на рис. 5, который показывает также, что самые высокие пики, по которым происходит контакт, растут с увеличением латерального размера. По этой причине с увеличением номинальной площади число контактирующих пиков меняется слабо, а роль капиллярных сил становится менее существенной. С другой стороны, роль дисперсионных сил

Таблица 1. Капиллярная сила и соответствующие параметры при низкой влажности

Пленка	w, нм	L, мкм	h_{max}, нм	h_0, нм	ξ, нм	$\mathcal{N}\left(h_0\right)$	F, нН
Au 120 нм	1.46	1.35	5.8	4.6	35.7	1.4×10^{-4}	500
Au 200 нм	2.35	2.04	13.3	10.6	36.0	4.1×10^{-5}	150
Au 400 нм	5.09	3.16	31.9	25.7	51.2	5.3×10^{-6}	40

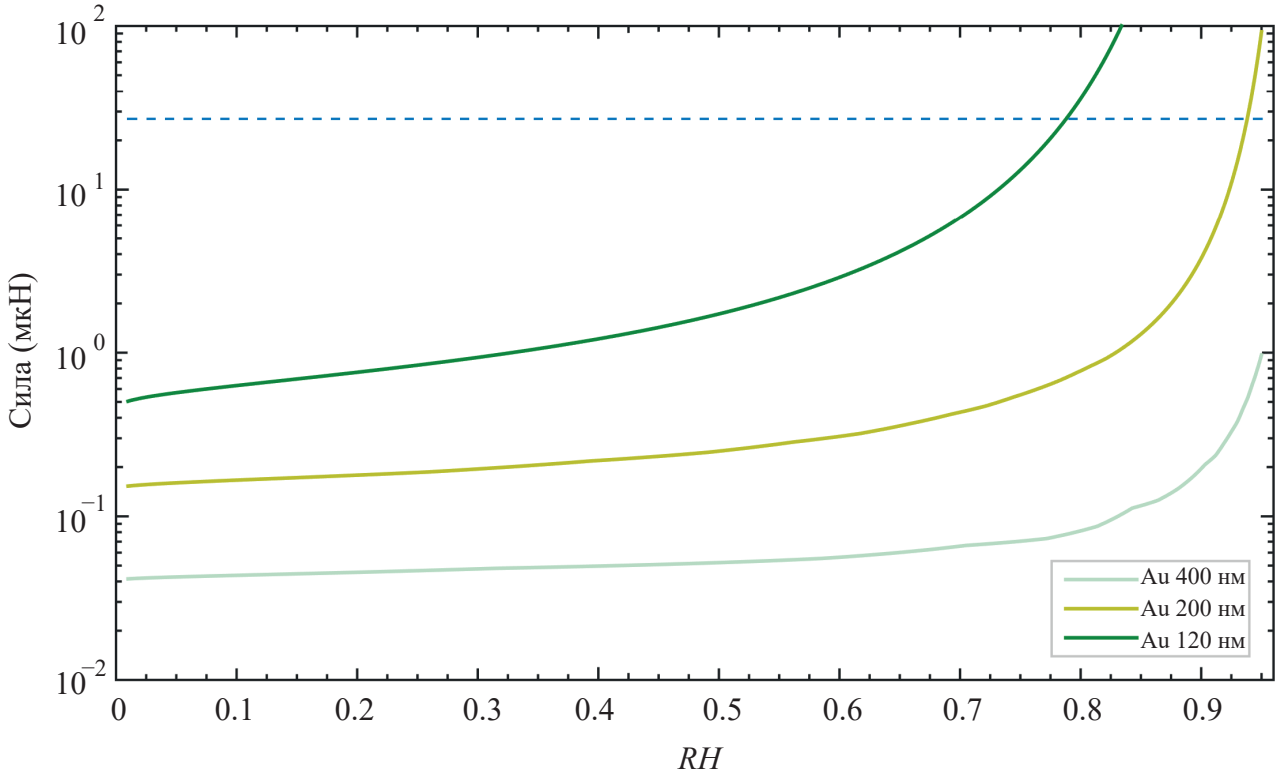


Рис. 6. Капиллярная сила как функция относительной влажности для трех пленок золота разной шероховатости. Начальные значения при $RH = 1\%$ соответствуют величинам, указанным в табл. 1.

возрастает, поскольку они пропорциональны номинальной площади контакта.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Работа посвящена развитию теоретического подхода к описанию капиллярной адгезии между гидрофильными шероховатыми поверхностями. Физическое происхождение шероховатости может быть разным, поэтому нахождение общего метода описания капиллярной адгезии представляется затруднительным. Мы ограничились поверхностями, полученными методами микротехнологии. Эти поверхности характеризуются длинами корреляции меньше или порядка 100 нм и имеют достаточно большую жесткость. Особенность шероховатости таких поверхностей состоит в том, что число высоких пиков хорошо описывается статистикой экстремальных значений, и их число значительно выше, чем предсказывает нормальное распределение шероховатости. Важность высоких пиков для задачи адгезии связана с тем, что контакт между шероховатыми поверхностями происходит именно по этим пикам. На сегодняшний день атомно-силовой микроскоп дает наиболее полную информацию о шероховатых поверхностях. В работе использованы сканы размером 20×20 мкм^2 для получения детальной информации о шероховатости золотых пленок разной толщины и, как следствие, разной среднеквадратичной шероховатости. Вся информация, необходимая для вычисления капиллярной силы между поверхностями, извлекается из этих сканов. В частности, ключевой величиной является число контактирущих пиков, между которыми возможно спонтанное образование капиллярных мостиков. Для каждого мостика сила определяется известным соотношением для сферы и плоскости, где роль сферы играет сам пик. Важным параметром является также длина корреляции, которая описывает характерный латеральный размер пика. Формула (20) позволяет оценить силу между гладкой и шероховатой пластинами, разделенными равновесным средним расстоянием h_0.

Результаты расчета силы между сферой диаметром 100 мкм и шероховатой пластиной, покрытой золотом, показали, что сила убывает с увеличением среднеквадратичной шероховатости и растет с увеличением влажности. Важно, что сила остается конечной даже при очень низкой влажности. Все эти особенности наблюдались экспериментально [21]. Важной является также номинальная площадь контакта, с увеличением которой относительная роль капиллярных сил убывает, а дисперсионные силы

становятся доминирующими. Это объясняет результат недавнего эксперимента [22], в котором роль капиллярного взаимодействия оказалась пренебрежимо мала.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ, грант 25-19-20107.

СОБЛЮДЕНИЕ ЭТИЧЕСКИХ СТАНДАРТОВ

В данной работе отсутствуют исследования человека или животных.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Legtenberg R., et al.* Stiction of surface micromachined structures after rinsing and drying: model and investigation of adhesion mechanisms // Sensors and actuators A: Physical. 1994. V. 43. № 1–3. P. 230–238. https://doi.org/10.1016/0924-4247(93)00654-M
2. *Tas N., et al.* Stiction in surface micromachining // Journal of Micromechanics and Microengineering. 1996. V. 6. № 4. P. 385. https://doi.org/10.1088/0960-1317/6/4/005
3. *Maboudian R., Howe R.T.* Critical review: Adhesion in surface micromechanical structures // Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena. 1997. V. 15. № 1. P. 1–20. https://doi.org/10.1116/1.589247
4. *Saleem M.M., Nawaz H.*A systematic review of reliability issues in RF-MEMS switches // Micro and Nanosystems. 2019. V. 11. № 1. P. 11–33. https://doi.org/10.2174/1876402911666190204113856
5. *DelRio F.W., et al.* The role of van der Waals forces in adhesion of micromachined surfaces // Nature materials. 2005. V. 4. № 8. P. 629–634. https://doi.org/10.1038/nmat1431
6. *Palasantzas G., Sedighi M., Svetovoy V.B.* Applications of Casimir forces: Nanoscale actuation and adhesion // Applied Physics Letters. 2020. V. 117. № 12. P. 120501. https://doi.org/10.1063/5.0023150
7. *Lyashenko I.A., Popov V.L.* Effect of roughness on capillary contact shapes in tangential shear: Experiments // Physical Mesomechanics. 2021. V. 24. № 5. P. 561–569. https://doi.org/10.1134/S1029959921050076
8. *Mastrangelo C.H., Hsu C.H.* Mechanical stability and adhesion of microstructures under capillary forces. I. Basic theory // Journal of Microelectromechanical systems. 1993. V. 2. № 1. P. 33–43. https://doi.org/10.1109/84.232593
9. *Mastrangelo C.H., Hsu C.H.* Mechanical stability and adhesion of microstructures under capillary forces. II. Experiments // Journal of Microelectromechanical systems. 1993. V. 2. № 1. P. 44–55. https://doi.org/10.1109/84.232594
10. *De Boer M.P., Michalske T.A.* Accurate method for determining adhesion of cantilever beams // Journal of Applied Physics. 1999. V. 86. № 2. P. 817–827. https://doi.org/10.1063/1.370809
11. *Knapp J.A., de Boer M.P.* Mechanics of microcantilever beams subject to combined electrostatic and adhesive forces // Journal of Microelectromechanical Systems. 2002. V. 11. № 6. P. 754–764. https://doi.org/10.1109/JMEMS.2002.805047
12. *DelRio F.W., et al.* Rough surface adhesion in the presence of capillary condensation // Applied Physics Letters. 2007. V. 90. № 16. P. 163104. https://doi.org/10.1063/1.2723658
13. *De Boer M.P.* Capillary adhesion between elastically hard rough surfaces // Experimental mechanics. 2007. V. 47. P. 171–183. https://doi.org/10.1007/s11340-006-0631-z
14. *Svetovoy V.B., et al.* Measuring the dispersion forces near the van der Waals–Casimir transition // Physical Review Applied. 2020. V. 13. № 6. P. 064057. https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.13.064057
15. *Harris B.W., Chen F., Mohideen U.* Precision measurement of the Casimir force using gold surfaces // Physical Review A. 2000. V. 62. № 5. P. 052109. https://doi.org/10.1103/PhysRevA.62.052109
16. *Liu M., et al.* Precision measurements of the gradient of the Casimir force between ultraclean metallic surfaces at larger separations // Physical Review A. 2019. V. 100. № 5. P. 052511. https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.052511
17. *Torricelli G., et al.* Switching Casimir forces with phase-change materials // Physical Review A – Atomic, Molecular, and Optical Physics. 2010. V. 82. № 1. P. 010101. https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.010101
18. *Sedighi M., Svetovoy V.B., Palasantzas G.* Casimir force measurements from silicon carbide surfaces // Physical Review B. 2016. V. 93. № 8. P. 085434. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.085434
19. *Ata A., Rabinovich Y. I., Singh R. K.* Role of surface roughness in capillary adhesion // Journal of Adhesion Science and Technology. 2002. V. 16. № 4. P. 337–346. https://doi.org/10.1163/156856102760067145
20. *Van Zwol P.J., Palasantzas G., De Hosson J.T.M.* Influence of random roughness on the adhesion between metal surfaces due to capillary condensation // Applied Physics Letters. 2007. V. 91. № 10. P. 101905. https://doi.org/10.1063/1.2768919

21. *Van Zwol P.J., Palasantzas G., De Hosson J.T.M.* Influence of roughness on capillary forces between hydrophilic surfaces // Physical Review E – Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics. 2008. V. 78. № 3. P. 031606. https://doi.org/10.1103/PhysRevE.78.031606
22. *Postnikov A.V., Uvarov I.V., Svetovoy V.B.* Measurement of the adhesion energy between Si and Au caused by dispersion forces // Physical Review B. 2025. V. 111. № 8. P. 085420. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.111.085420
23. *Broer W.,* et al. Roughness correction to the Casimir force at short separations: Contact distance and extreme value statistics // Physical Review B – Condensed Matter and Materials Physics. 2012. V. 85. № 15. P. 155410. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.155410
24. *Meakin P.* The growth of rough surfaces and interfaces // Physics Reports. 1993. V. 235. № 4–5. P. 189–289. https://doi.org/10.1016/0370-1573(93)90047-H
25. *Persson B.N.J.* Relation between interfacial separation and load: a general theory of contact mechanics // Physical Review Letters. 2007. V. 99. № 12. P. 125502. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.125502
26. *Parsons D.F., Walsh R.B., Craig V.S.J.* Surface forces: Surface roughness in theory and experiment // The Journal of Chemical Physics. 2014. V. 140. № 16. P. 164501. https://doi.org/10.1063/1.4871412
27. *Van Zwol P.J., Svetovoy V.B., Palasantzas G.* Distance upon contact: Determination from roughness profile // Physical Review B – Condensed Matter and Materials Physics. 2009. V. 80. № 23. P. 235401. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.235401
28. *Muravyeva T.I., et al.* Excessive number of high asperities for sputtered rough films // Physical Review B. 2021. V. 104. № 3. P. 035415. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.104.035415
29. *Гумбель Э.* Статистика экстремальных значений // Мир. Москва. 1965.
30. *Greenwood J.A., Tripp J.H.* The contact of two nominally flat rough surfaces // Proceedings of the institution of mechanical engineers. 1970. V. 185. № 1. P. 625–633. https://doi.org/10.1243/PIME_PROC_1970_185_069_02
31. *Soldatenkov I.A., Stepanov F.I., Svetovoy V. B.* Dispersion forces and equilibrium distance between deposited rough films in contact // Physical Review B. 2022. V. 105. № 7. P. 075401. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.105.075401
32. *Palasantzas G.* Roughness spectrum and surface width of self-affine fractal surfaces via the K-correlation model // Physical Review B. 1993. V. 48. № 19. P. 14472–14478. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.48.14472
33. *Islam A.Z.M.A., Klassen R.J.* Kinetics of length-scale dependent plastic deformation of gold microspheres // Journal of Materials Research. 2017. V. 32. № 18. P. 3507–3515. https://doi.org/10.1557/jmr.2017.223
34. *Johnson K.L., Kendall K., Roberts A.A.D.* Surface energy and the contact of elastic solids // Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and physical sciences. 1971. V. 324. № 1558. P. 301–313. https://doi.org/10.1098/rspa.1971.0141
35. *Derjaguin B.V., Muller V.M., Toporov Y.P.* Effect of contact deformations on the adhesion of particles // Journal of Colloid and Interface Science. 1975. V. 53. № 2. P. 314–326. https://doi.org/10.1016/0021-9797(75)90018-1
36. *Muller V.M., Yushchenko V.S., Derjaguin B.V.* On the influence of molecular forces on the deformation of an elastic sphere and its sticking to a rigid plane // Journal of Colloid and Interface Science. 1980. V. 77. № 1. P. 91–101. https://doi.org/10.1016/0021-9797(80)90419-1

CAPILLARY FORCES BETWEEN ROUGH SURFACES PRODUCED BY THE MICRO/NANOTECHNOLOGY METHODS

I. V. Uvarov, V. B. Svetovoy

Capillary forces are one of the main sources of adhesion between the elements of microtechnological devices. This phenomenon manifests itself during the fabrication or operation of a device and plays a negative or positive role. The paper describes a method that makes it possible to estimate the capillary force between hydrophilic rough surfaces as a function of the relative humidity and the nominal contact area. The method is based on counting the number of roughness asperities, which are able to form capillary bridges spontaneously. To implement the method, detailed information about the roughness of the contacting surfaces is required, which can be obtained using an atomic force microscope (AFM). The idea of the method is illustrated, using as an example, deposited gold films of different thickness that come into contact with a smooth silicon surface. AFM scans of a surface with an area of 20×20 μm^2 and a resolution of 4096 pixels per line are used. The developed theory reproduces the basic patterns observed experimentally. In particular, it is shown that the relative role of capillary forces decreases with an increase in the nominal contact area, and dispersion forces begin to play a major role in adhesion. The results of the work are important for the design of microsystems and experiments measuring dispersion forces.

Keywords: capillary forces, surface roughness, adhesion, microsystems