

Montanuniversität Leoben

Untersuchung der Hillockbildung in Al-Schichten als Mechanismus zur Druckspannungsrelaxation



*Diplomarbeit
Ines Goldgruber*

Die vorliegende Arbeit wurde am Departement für Materialphysik der Montanuniversität Leoben und dem Erich Schmid Institut für Materialwissenschaft der Österreichischen Akademie der Wissenschaften durchgeführt.

Leoben, 05. September 2009

EIDESSTATTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel nicht benutzt und mich auch sonst keiner unerlaubten Hilfsmittel bedient habe.

AFFIDAVIT

I declare in lieu of oath, that I wrote this thesis and performed the associated research myself, using only literature cited in this volume.

Leoben, 05. September 2009

Für Papa

DANKSAGUNG

Mein Studium und die Erstellung dieser Arbeit wären ohne die Hilfe und Unterstützung einiger Personen nicht möglich gewesen. Allen voran bedanke ich mich bei meinem Betreuer Prof. Gerhard Dehm für die Ermöglichung dieser Arbeit und seine stets motivierende Betreuung.

Ich bedanke mich bei allen Freunden und Kollegen des Erich Schmid Institutes, die mir unterstützend zur Seite gestanden sind und mich herzlich in ihrer Familie aufgenommen haben. Mein besonderer Dank gilt hierbei meinem „kleinen“ Betreuer DI Walther Heinz, Prof. Ingomar Jäger, DI Matthias Bartosik, Franz Hubner und Herwig Felber.

Herzlich bedanke ich mich bei all meinen Freunden, die mich durch mein Studium begleitet und Leoben zu meinem zweiten Zuhause gemacht haben. Ich möchte die gemeinsamen Stunden, unseren Zusammenhalt und eure Freundschaft nicht missen.

Mein besonderer Dank gilt meinen Eltern und meiner Schwester, ihr habt mich auf meiner bisherigen Reise unterstützt und begleitet, meine Wünsche ermöglicht und mir immer einen tollen Rückhalt gegeben. Ohne euch wäre vieles nicht möglich!

Nicht zuletzt bedanke ich mich herzlich bei meinem Christoph, du hast stets an mich geglaubt, mir als bester Freund zur Seite gestanden und mein Leben mit Liebe erfüllt.

ZUSAMMENFASSUNG

Aluminiumschichten werden in ihrer Verwendung als Leiterbahnmaterial bei der Herstellung von integrierten Schaltungen verschiedenen thermischen Behandlungen unterworfen. Dabei kommt es durch Unterschiede in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten der verschiedenen Materialien zu Spannungen in der Aluminiumschicht, die – im Fall von Druckspannungen – über die Bildung von Hillocks abgebaut werden können. Derartige Materialauswürfe an der Schichtoberfläche führen oftmals zu elektrischen Kurzschlüssen und in weiterer Folge zum Versagen der elektronischen Bauteile. Eine Untersuchung der Hillockbildung und der dafür verantwortlichen Mechanismen ist daher von besonderem Interesse.

In dieser Arbeit wurden über Magnetronspütern hergestellte Al-Schichten unterschiedlicher Schichtdicke mittels Rasterelektronen- (REM) und Rasterkraftmikroskopie (AFM) bezüglich ihrer Oberflächenstruktur charakterisiert. Um das thermomechanische Verhalten der dünnen Schichten zu untersuchen, wurden anschließend bei gleichzeitiger Messung der Schichtspannungen mit Hilfe der Substratkrümmungsmethode verschiedene Temperaturbehandlungen – Thermozyklen und isotherme Glühbehandlungen – durchgeführt. Aufgrund der beim Heizen entstehenden Druckspannungen in der Schicht kommt es zur Bildung von Hillocks. Dieses neugewachsene Hillockvolumen wurde mit Hilfe einer Focused Ion Beam- (FIB) und REM-Analyse unter Verwendung verschiedener Softwareprogramme in Abhängigkeit der Schichtdicke und Glühtemperatur ermittelt. Aus dem neugebildeten Hillockanteil konnte die Spannungsrelaxation abgeschätzt und die Aktivierungsenergie der Hillockbildung bestimmt werden.

ABSTRACT

Aluminum thin films are frequently used as an interconnect material in integrated circuits. During the fabrication of semiconductor devices the Al interconnects are subjected to a number of thermal cycles. In this process the difference in the thermal expansion coefficients between the various materials induces thermal stresses in the Al film, which – in the case of compressive stresses – may be released by hillock formation. Such protrusions on the film surface can penetrate through dielectric layers leading to electrical shorts, thus producing a potential failure mechanism in electronic devices. Therefore a detailed understanding of hillock formation and its underlying mechanisms is of particular interest.

Aluminum films of various film thicknesses were deposited on Si substrates by magnetron sputtering and the surface morphology was characterized using Scanning Electron Microscopy (SEM) and Atomic Force Microscopy (AFM). To investigate the thermo mechanical behavior of the films different heat treatments – thermal cycling and isothermal annealing – with simultaneous stress measurements have been accomplished using a wafer curvature system. During heating compressive stresses occur and result in hillocking. This new grown hillock volume has been investigated as a function of temperature and film thickness by means of SEM and Focused Ion Beam (FIB) microscopy using various analysis programs. Finally the stress relief by hillock formation was estimated and the activation energy for hillocking determined.

INHALTSVERZEICHNIS

1.	Einleitung und Motivation	1
2.	Theoretische Grundlagen dünner Al-Schichten	2
2.1	Schichtspannungen	2
2.2	Verformungsmechanismen	4
2.3	Thermomechanisches Verhalten	6
2.4	Hillockbildung	7
3.	Experimentelle Grundlagen	12
3.1	Probenherstellung	12
3.2	Spannungsmessung	13
3.3	Van-der-Pauw Widerstandsmessung	18
4.	Ergebnisse und Interpretation	21
4.1	Charakterisierung des Ausgangszustandes	21
4.2	Untersuchung des thermomechanischen Verhaltens	24
4.3	Hillockbildung als Mechanismus zur Druckspannungsrelaxation	30
4.4	FIB Querschnittspräparation	48
4.5	Widerstandsmessung mittels Van-der-Pauw-Methode	50
5.	Diskussion	53
6.	Anhang	55
6.1	Ausgewählte Bilder	55
6.2	Ausgewählte Diagramme	57
6.3	Berechnung des Hillockvolumens	62
6.4	Source-Code zum Erkennen neuer Hillocks*	63
6.5	Geräteeinstellungen	64
7.	Verzeichnisse	65
7.1	Abbildungsverzeichnis	65
7.2	Tabellenverzeichnis	67
7.3	Abkürzungsverzeichnis	67
8.	Literatur	69

1. EINLEITUNG UND MOTIVATION

Aufgrund ihrer hervorragenden elektrischen Eigenschaften gehören Aluminiumschichten zu den am meisten eingesetzten Leiterbahnmaterialien in der Mikroelektronik. Während des Herstellungsprozesses von integrierten Schaltungen unterlaufen die Schichten verschiedene thermische Behandlungen. Dabei führt der Unterschied im thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Aluminium und dem darunterliegenden Si-Substrat zum Entstehen von thermischen Spannungen in den Al-Schichten. In Abhängigkeit vom Temperaturwechsel entwickeln sich Spannungen im Druck- oder Zugbereich, wobei Druckspannungen in den Aluminiumschichten über die Bildung von sogenannten Hillocks abgebaut werden können [1-5]. Darunter versteht man Materialauswürfe an der Oberfläche einer dünnen Schicht, die ein erhebliches Aufrauen der Oberfläche zur Folge haben [2]. Solche Hillocks können in Mikroelektronikbauteilen elektrische Kurzschlüsse hervorrufen und somit zu deren Versagen führen. Ein genaues Verständnis für dieses vor allem in dünnen (Mikrometer- und Submikrometerbereich) Al-Schichten auftretende Phänomen zur Druckspannungsrelaxation ist deshalb von besonderem Interesse.

Die Hillockbildung ist ein in der Literatur viel untersuchtes und diskutiertes aber nach wie vor nicht vollständig verstandenes Problem. Für den dominierenden Mechanismus der Hillockbildung gibt es in der Literatur verschiedene Modelle basierend auf Grenzflächendiffusion [1], Korngrenzdifusion [6-9], Oberflächendiffusion [10] oder plastischer Verformung [11, 12].

Ziel dieser Arbeit ist es die Hillockbildung in Abhängigkeit von Schichtdicke und Temperaturbehandlung zu untersuchen und über die dadurch ermittelte Aktivierungsenergie den zugrunde liegenden Mechanismus zu klären. Die dafür notwendigen Untersuchungen sollen vor allem mittels Substratkrümmungsmethode zur Spannungsmessung und Rasterelektronenmikroskopie zur Oberflächencharakterisierung durchgeführt werden.

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN DÜNNER AL-SCHICHTEN

2.1 SCHICHTSPANNUNGEN

Die in einem Schicht-Substrat-Verbund herrschenden Schichtspannungen σ_f sind im Fall von polykristallinen bzw. isotropen Schichten äquibiaxial, d.h. die in der Schichtebene liegenden Hauptspannungskomponenten σ_{xx} und σ_{yy} sind gleich groß, alle anderen Spannungskomponenten dagegen null:

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_f \quad (1)$$

$$\sigma_{zz} = \sigma_{xy} = \sigma_{yz} = \sigma_{xz} = 0. \quad (2)$$

Die elastische Schichtspannung berechnet sich dann zu:

$$\sigma_f = M_f \cdot \varepsilon \quad (3)$$

mit
$$M_f = \frac{E_f}{1 - \nu_f}, \quad (4)$$

wobei ε die äquibiaxiale Dehnung, M_f den biaxialen Modul, E_f den E-Modul und ν_f die Poissonzahl der Schicht bezeichnen. [3, 14]

Die Werte der elastischen Konstanten für Al und Si sind in Tab. 1 aufgelistet.

Tab. 1: Elastische Konstanten von Aluminium und Silizium [15, 16].

Material	E-Modul [GPa]	Poissonzahl [-]	Biaxialer Modul [GPa]
Aluminium (polykristallin)	70	0.33	104.5
Silizium (100)	130	0.28	180.6
Silizium (111)	185	0.26	250.0

Im mechanischen Gleichgewicht ist die Summe aller im Schicht-Substrat-Verbund wirkenden Kräfte gleich null. Die durch die Schichtspannungen hervorgerufenen Kräfte in der Schicht müssen also, wie in Abb. 1 dargestellt, durch eine entgegengesetzte Kraft im

Substrat aufgewogen werden. Die außermittig angreifende Kraft im Substrat resultiert in einem Biegemoment, welches eine Biegung des Substrates zur Folge hat. [15]

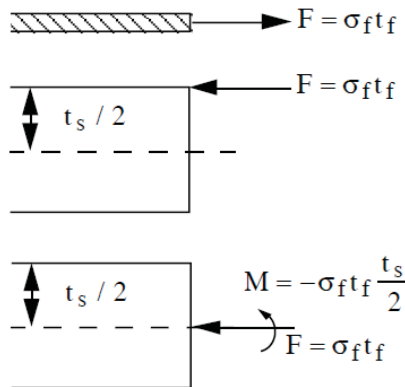


Abb. 1: Im Schicht-Substrat-Verbund wirkende Kräfte und Momente [15].

Die Substratkrümmung κ aufgrund dieses Biegemoments M lässt sich folgendermaßen beschreiben:

$$\kappa = -\frac{(1-\nu_s)}{E_s} \frac{12M}{t_s^3} = -\frac{(1-\nu_s)}{E_s} \frac{12}{t_s^3} \left(-\sigma_f t_f \frac{t_s}{2}\right) \quad (5)$$

$$\kappa = \frac{(1-\nu_s)}{E_s} \frac{6\sigma_f t_f}{t_s^2}. \quad (6)$$

Daraus ergibt sich die Schichtspannung mit

$$\sigma_f = \frac{E_s}{(1-\nu_s)} \frac{t_s^2}{6t_f} \kappa = \frac{E_s}{(1-\nu_s)} \frac{t_s^2}{6t_f R_C}, \quad (7)$$

wobei E_s , ν_s und t_s den E-Modul, die Poisson-Zahl und die Dicke des Substrats bezeichnen, t_f die Schichtdicke und R_C den Biegeradius beschreiben. Diese Beziehung zwischen Schichtspannung und Biegeradius wurde 1909 von Stoney gefunden und ist deshalb unter dem Namen *Stoney Formel* bekannt. [3, 14, 15]

Prinzipiell können die in einem Schicht-Substrat-Verbund herrschenden Schichtspannungen auf zwei verschiedene Arten generiert werden. So unterscheidet man zwischen Wachstums- bzw. intrinsischen Spannungen und thermischen oder extrinsischen Spannungen. Intrinsische Spannungen entstehen durch Ungleichgewichtsprozesse während

der Schichtherstellung wie zum Beispiel Koagulation von Inseln, Leerstellenannihilation, Einbau von Misfitversetzungen oder Kornwachstum und werden sehr stark von den Herstellungsparametern beeinflusst. Die Entstehungsursache für thermische Spannungen liegt, wie durch die Gleichungen (3) und (8) beschrieben, in den unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Schicht und Substrat. Die thermisch induzierte Dehnung $\varepsilon_{f,th}$ der Schicht berechnet sich wie folgt:

$$\varepsilon_{f,th} = (\alpha_f - \alpha_s) \cdot \Delta T, \quad (8)$$

wobei α_f und α_s die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Schicht und Substrat und ΔT die Temperaturdifferenz bezeichnen. [3, 14]

Tabelle 2 zeigt die thermischen Ausdehnungskoeffizienten für Al und Si bei Raumtemperatur.

Tab. 2: Thermische Ausdehnungskoeffizienten von Al und Si bei Raumtemperatur [13].

Material	α bei RT [$10^{-6}/K$]
Aluminium	23.6
Silizium	3.0

Beim Aufheizen des Al-Si-Verbundes entstehen, bedingt durch den größeren thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Al gegenüber Si, Druckspannungen, beim Abkühlen dagegen Zugspannungen in der Schicht. In Kap. 2.3 wird darauf näher eingegangen.

2.2 VERFORMUNGSMECHANISMEN

Beim Erreichen der Fließgrenze beginnt sich ein metallischer Werkstoff plastisch zu verformen. Diese Verformung erfolgt je nach Spannungszustand und Temperatur über unterschiedliche Mechanismen, wie z.B. Versetzungsgleiten, Versetzungsklettern, Korngrenzdifusion, Volumendiffusion, oder Korngrenzgleiten. Die in einem bestimmten Spannungs- und Temperaturbereich dominierenden Verformungsmechanismen können durch die Konstruktion von sogenannten Verformungsmechanismen-Diagrammen

(Deformation-Mechanism-Maps, DMMs) [16] dargestellt werden und sind im Fall von Massivaluminium bekannt.

Sowohl die geometrische Einengung durch die kleinen Abmessungen in Dickenrichtung, als auch die Behinderung durch die Bindung zum Substrat führen bei dünnen Schichten jedoch zu einem veränderten plastischen Verformungsverhalten gegenüber einem Massivmaterial [1]. Trotz intensiver Forschungsarbeiten auf diesem Gebiet [17-20] ist die Art und Weise der Verformung dünner Schichten noch nicht vollständig geklärt. Dieses veränderte Verformungsverhalten führt bei dünnen Schichten zur Erhöhung der Raumtemperaturfließgrenze gegenüber einem Massivmaterial [17, 18, 21-23]. Wie in Abb. 2 dargestellt, beobachten Dehm et al. [17] sowohl bei polykristallinen als auch bei epitaktischen Al und Cu Schichten einen Anstieg der Fließspannung mit abnehmender Schichtdicke. Die polykristallinen Schichten erreichen ab Schichtdicken von ungefähr 400nm ein Fließspannungsplateau.

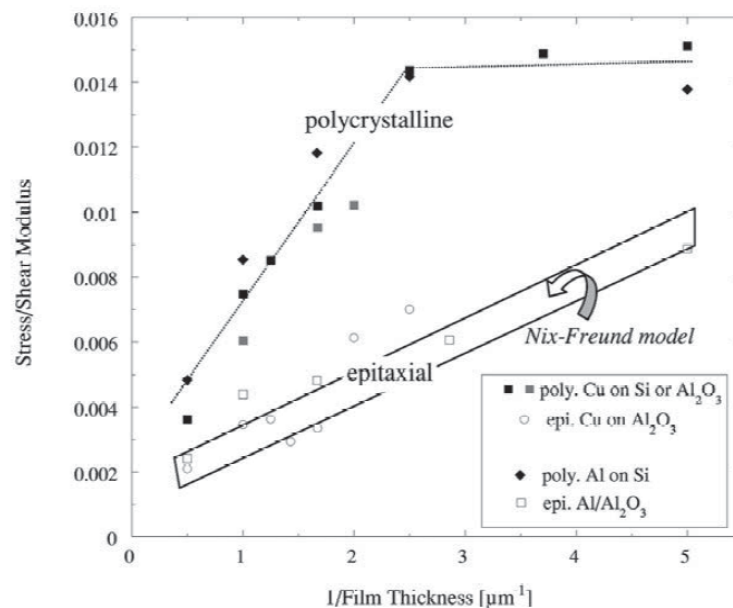


Abb. 2: Anstieg der Raumtemperatur-Fließgrenze mit abnehmender Schichtdicke für polykristalline und epitaktische Schichten; bei einer Schichtdicke von 400nm erreichen polykristalline Schichten ein Plateau [17].

2.3 THERMOMECHANISCHES VERHALTEN

Aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Schicht und Substrat (siehe Tab. 1) führt eine Temperaturänderung des Schicht-Substrat-Verbundes zu einer Änderung der Schichtspannung (Kap. 2.1). Eine gezielte Variation der Temperatur ermöglicht somit – bei gleichzeitiger Messung der Schichtspannung mittels beispielsweise der Substratkrümmungsmethode (Kap. 3.2.1) – die elastischen und plastischen Eigenschaften von dünnen Schichten zu untersuchen. [24]

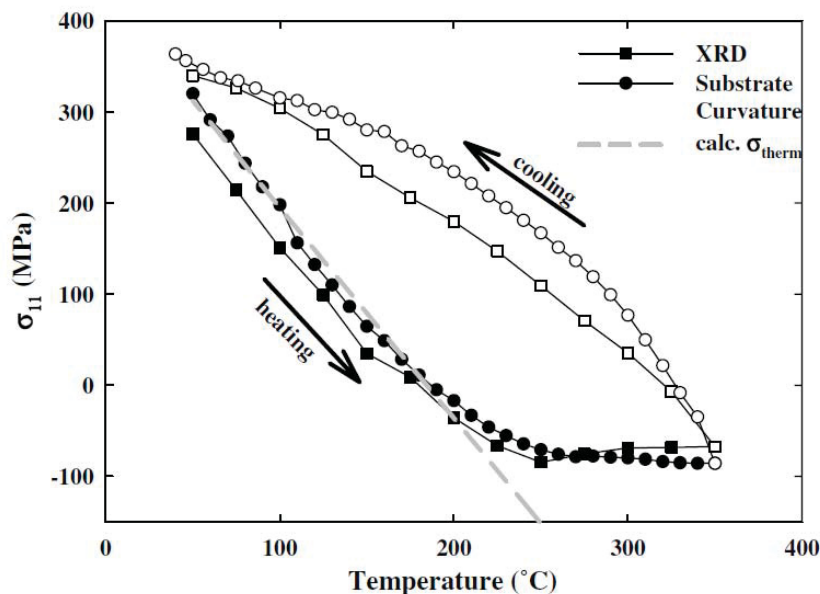


Abb. 3: Thermozyklus einer 600nm dicken {111}-fasertexturierten Al-Schicht; die quadratischen Messpunkte wurden mittels Substratkrümmungsmethode, die Kreise hingegen mit Hilfe von Röntgendiffraktion ermittelt [21].

Abbildung 3 zeigt den äquibiaxialen Spannungsverlauf einer 600nm dicken Al-Schicht in Abhängigkeit der Temperatur. Beim Ausgangspunkt des Thermozyklus (50°C) herrschen Zugspannungen in der Schicht, die im ersten Teil des Aufheizvorganges der thermoelastischen Gerade folgend abgebaut werden. Die Steigung m dieser Gerade kann dabei folgendermaßen beschrieben werden:

$$m = \frac{d\sigma_f}{dT} = -(\alpha_f - \alpha_s) \cdot M_f. \quad (9)$$

Bei ungefähr 180°C wechselt die Schichtspannung in den Druckspannungsbereich. Sobald die biaxiale Spannung von der thermoelastischen Gerade abweicht (bei ~200°C), tritt plastisches Fließen im Druckbereich (ca. -50MPa) ein. Weiteres Heizen bis 450°C führt nur noch zu einer geringen Spannungsänderung in der Schicht. Beim anschließenden Abkühlen zieht sich die Schicht stärker zusammen als das Substrat, wodurch die Druckspannungen in der Schicht wieder abgebaut werden und bei ungefähr 320°C in Zugspannungen übergehen. Der Thermozyklus folgt im ersten Teil der Abkühlkurve wieder der thermoelastischen Gerade. Das Abweichen von dieser bei weiterem Abkühlen zeigt den neuerlichen Beginn der plastischen Verformung in der Schicht, diesmal jedoch aufgrund der Zugbelastung. Dabei entsprechen die einzelnen Spannungswerte der Zugfließspannung bei der jeweiligen Temperatur. Der Spannungsanstieg im plastischen Bereich beim Abkühlen zeugt sowohl von einer ansteigenden Fließspannung mit abnehmender Temperatur als auch von einer Kaltverfestigung. [24]

Die Asymmetrie der Spannungs-Temperatur-Kurve bezüglich des Aufheiz- und Abkühlvorganges lässt auf unterschiedliche Verformungsmechanismen und Mikrostrukturveränderungen während der Heiz- und der Kühlperiode schließen [3]. Ein viel diskutiertes Phänomen [1-5] als Mechanismus zur Druckspannungsrelaxation während der Heizperiode des Thermozyklus ist dabei die Hillockbildung.

2.4 HILLOCKBILDUNG

Hillocks sind „Materialberge“ an der Oberfläche von dünnen Al-Schichten (siehe Abb. 4), deren Entstehen zur Relaxation der Druckspannungen in der Schicht beiträgt. Diese durch Hillockwachstum abgebaute Spannung kann in Al-Schichten einige hundert MPa betragen [2]. Für den dominierenden Mechanismus zur Bildung eines Hillocks gibt es in der Literatur verschiedene Theorien, allen gemein ist jedoch die Notwendigkeit von Druckspannungen in der Schicht.

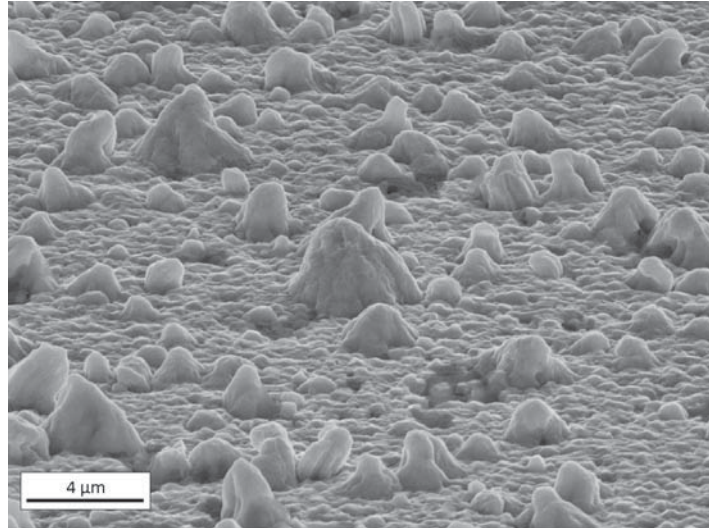


Abb. 4: REM-Aufnahme von Hillocks auf der Oberfläche einer 1µm Al-Schicht. Die Abbildung wurde unter einem Kippwinkel von 70° aufgenommen.

Laut Chaudhari [1] führen lokale Spannungsunterschiede in der Schicht und der damit verbundene Potentialgradient zu einem Massetransport entlang der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht. Das so per Grenzflächendiffusion aus der Umgebung in den lokal relaxierten Bereich angelieferte Material kann auf zwei Arten verteilt werden. Zum einen können damit die Schichtspannungsinhomogenitäten beseitigt oder zumindest reduziert werden und zum anderen kann das angelieferte Volumen als Hillock entlang der Korngrenzen aus der Schicht gedrückt werden. Unter der Annahme von Körnern mit quadratischem Querschnitt und einer Energieänderung des Systems, welche hauptsächlich von der Dehnungsenergie W der Schicht bestimmt wird, kann folgende Energiebetrachtung angeschrieben werden:

$$W = \frac{E_f}{1-\nu_f} \cdot [\varepsilon_f^2 \cdot (d_u^2 - d_r^2) \cdot t_f + \varepsilon_r^2 \cdot d_r^2 \cdot t_f], \quad (10)$$

wobei d_r und ε_r die lineare Ausdehnung und die Dehnung des relaxierten Bereiches und d_u den Durchmesser der Umgebung, aus der das Material angeliefert wird, beschreiben. Die Energieänderung der Schicht kann dann fürs Beseitigen der Schichtspannungsinhomogenitäten wie folgt:

$$\left(\frac{dW}{d\varepsilon}\right)_i d\varepsilon = \frac{E_f}{1-\nu_f} \cdot [-2\varepsilon_f (d_u^2 - d_r^2) t_f + 2\varepsilon_r \left(\frac{d_u^2 - d_r^2}{d_r^2}\right) d_r^2 t_f] d\varepsilon \quad (11)$$

berechnet werden und für die Bildung eines Hillocks mit

$$\left(\frac{dW}{d\varepsilon}\right)_H d\varepsilon = \frac{E_f}{1-\nu_f} \cdot [-2\varepsilon_f (d_u^2 - d_r^2) t_f] d\varepsilon + 4d_r \left(\frac{d_u^2}{d_r^2}\right) t_f \gamma d\varepsilon \quad (12)$$

beschrieben werden. Daraus folgt, dass für eine Oberflächenenergie γ der Schicht bis zu:

$$\gamma < \frac{1}{2} \cdot \sigma_r \cdot d_r, \quad (13)$$

die Hillockbildung bevorzugt wird. Unter der Annahme von üblichen Werten für γ und d_r ist diese Gleichung für Al-Schichten erfüllt und somit das Entstehen von Hillocks als begünstigte Form des Spannungsabbaus anzusehen. [1]

Chang und Vook [10] gehen hingegen von einem oberflächendifusionskontrollierten Prozess aus. Diese Ansicht stützen sie auf die Beobachtung, dass während einer Glühbehandlung große Hillocks wachsen und die Größe von kleinen Hillocks abnimmt, d.h. die durchschnittliche Hillockgröße zunimmt während die Hillockdichte sinkt. Grundlage dieser Behauptung ist die Annahme, dass sowohl die Abnahme der Hillockdichte als auch die Zunahme der durchschnittlichen Hillockgröße über einer Aktivierungsenergie Q thermisch aktiviert erfolgt. Die dabei zugrunde liegenden Gleichungen lauten für die Hillockdichte n wie folgt und gelten mit umgekehrtem Vorzeichen auch für die durchschnittliche Hillockgröße:

$$-\frac{dn/n}{dt} = l, \quad (14)$$

mit
$$l = l_0 \cdot \exp\left(\frac{-Q}{kT}\right) \quad (15)$$

wobei t die Zeit und l die temperaturabhängige Rate bezeichnen. Integration von Gleichung (14) liefert:

$$n = n_0 \cdot \exp(-lt) \quad (16)$$

Eine Darstellung der Daten im Arrheniusplot über Gleichung (15) zeigt sowohl für die Hillockdichte als auch die σ -größe eine Aktivierungsenergie, die der Aktivierungsenergie für Oberflächendiffusion entspricht. [10]

Ericson et al. [6] beobachten in transmissionselektronenmikroskopischen Untersuchungen, dass Hillocks bevorzugt an Korngrenztripelpunkten entstehen und schlagen deshalb Korngrenzdiffusion als ausschlaggebenden Mechanismus der Hillockbildung vor. Der so an der Schichtoberfläche entstehende Hillock ist vorerst von der ursprünglichen Oberfläche über eine korngrenzähnliche Grenzschicht getrennt und wächst dann durch weiteres Glühen mit den darunterliegenden Körnern zusammen. Korngrenzdiffusion wird auch von Gerth [7], Iwamura [8] und Kim [9] als dominierender Mechanismus für Hillockbildung angesehen.

Hwang et al. [11, 12] stellen eine lineare Abhängigkeit des pro Flächeneinheit neuentstandenen Hillockvolumens sowohl von der Temperatur als auch der Schichtdicke fest. Daraus erkennen sie eine für das Hillockwachstum notwendige kritische Schichtdicke und kritische Temperatur und schließen daraus, dass die Bildung von Hillocks von der plastischen Verformung des umgebenden Materials kontrolliert wird. Diese Schlussfolgerung untermauern sie wie folgt. Die Schichtspannungsrelaxation $\Delta\sigma_{relax}$ über Hillockbildung wird durch:

$$\Delta\sigma_{relax} = M_f \frac{V_{Hillock}^*}{2t_f} \quad (17)$$

beschrieben. Dabei bezeichnet $V_{Hillock}^*$ das pro Einheitsfläche neu entstandene Hillockvolumen. Unter der Annahme, dass die Hillockbildung den einzigen Mechanismus zur Druckspannungsrelaxation darstellt, gilt außerdem:

$$\Delta\sigma_{relax} = M_f \Delta\alpha(T - T_0), \quad (18)$$

wobei T die Glüh Temperatur und T_0 jene Temperatur, bei der die Spannung vom Zug- in den Druckbereich wechselt, angeben.

Aus den Gleichungen (17) und (18) folgt für $V_{Hillock}^*$:

$$V_{Hillock}^* = 2t_f \Delta\alpha(T - T_0) \quad (19)$$

Daraus kann zwar die lineare Abhängigkeit des neugebildeten Hillockvolumens von der Schichtdicke und der Temperatur, nicht aber die Existenz einer kritischen Schichtdicke t_{kr} und deren Abhängigkeit von der Glüh Temperatur erklärt werden. Die kritische Temperatur T_{kr} würde laut Gleichung (19) T_0 entsprechen. Um dennoch die Abhängigkeit von T_{kr} von der Schichtdicke und von t_{kr} von der Temperatur begründen zu können, wird darauf geschlossen, dass Hillockbildung nur als Folge von plastischem Fließen des Umgebungsmaterials auftreten kann. Die Spannungsrelaxation wird in diesem Fall wie folgt beschrieben:

$$\Delta\sigma_{relax} = M_f \Delta\alpha(T - T_{yield}) + \Delta\sigma_{iso} \quad (20)$$

mit

$$T_{yield} - T_0 = \frac{C_1}{t_f} \quad (21)$$

Dabei entsprechen T_{yield} der Temperatur, bei der plastisches Fließen im Druck beginnt, $\Delta\sigma_{iso}$ der während des isothermen Glühens hinzukommenden Spannungsrelaxation und C_1 einer Proportionalitätskonstante. Einsetzen der Gleichungen (20) und (21) in (17) und Einführen einer Konstante C_2 ergeben dann:

$$V_{Hillock}^* = 2\Delta\alpha t_f T - 2\Delta\alpha C_1 - 2\Delta\alpha t_f C_2, \quad (22)$$

wobei

$$C_2 = T_0 - \frac{\sigma_{iso}}{M_f \Delta\alpha} \quad (23)$$

ist. [11]

3. EXPERIMENTELLE GRUNDLAGEN

3.1 PROBENHERSTELLUNG

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden Al-Schichten von zwei verschiedenen Herstellern verwendet.

3.1.1 SCHICHTSYSTEM A

Die Beschichtung der mit $a\text{-SiN}_x$ überzogenen $\sim 300\mu\text{m}$ dicken (100)-Si-Wafer erfolgte am Institut für Festkörperphysik der TU Wien mit einer Alcatel SCM450 Magnetron-Sputteranlage. Der Beschichtungsprozess wurde unter Verwendung eines reinen Al-Targets bei Raumtemperatur und einem Ausgangsdruck in der Vakuumkammer von $< 5 \cdot 10^{-6}$ mbar durchgeführt. Der Arbeitsdruck des Argongases betrug $3.75 \cdot 10^{-3}$ mbar bei einer Leistung von 200W zur Aufrechterhaltung des Argon-Plasmas. Mit diesen Sputterparametern wurden Al-Schichten mit einer {111}-Fasertextur und Schichtdicken von 25 bis 1000nm hergestellt. Die Schichten wurden anschließend mit einem Taylor/Hobson Surtronic 3+ Profilometer bezüglich ihrer Schichtdicken vermessen.

3.1.2 SCHICHTSYSTEM B

Al-Schichten mit {111}-Fasertextur und 400, 600, 1000 bzw. 2000nm Schichtdicke wurden mittels Magnetron-Sputtern am MPI für Metallforschung (Stuttgart) hergestellt. Vor dem Beschichtungsprozess wurden die $\sim 280\mu\text{m}$ dicken (100)-Si-Wafer mit einer amorphen SiO_x Diffusionsbarriere überzogen und im Ar-Plasma mit einer Energie von 200eV gereinigt. Die Beschichtung erfolgte anschließend mit einem 99.9999% Al-Target bei Raumtemperatur und einem Ausgangsdruck in der Kammer von $\sim 2 \cdot 10^{-7}$ Pa. Der Sputterprozess wurde mit einer Leistung von 200W, was einer Wachstumsrate von 30nm min^{-1} entspricht, durchgeführt. Um Kontamination und Oxidation zu verhindern wurden die Schichten im Anschluss an die Beschichtung ohne das Vakuum zu brechen bei 450°C für 15min gegläht, wodurch eine stabile {111}-fasertexturierte, kolumnare Mikrostruktur erzielt wurde.

Diese Schichten wurden bereits bei Untersuchungen von Dehm [17] und Eipper [21] eingesetzt, genaue Angaben über die an den einzelnen Proben durchgeführten Versuche

liegen jedoch nicht vor. In der vorliegenden Arbeit wurden diese Schichten also nicht in ihrem Herstellungszustand verwendet, sondern nach vorherigen Thermozyklen.

3.2 SPANNUNGSMESSUNG

3.2.1 SUBSTRATKRÜMMUNGSMETHODE

Grundlage der Substratkrümmungsmethode zur Spannungsmessung ist die Krümmung des Schicht-Substrat-Verbundes aufgrund von Spannungen in der Schicht. Wie in Kap. 2.1 beschrieben, können mit Hilfe der *Stoney Formel* die in der Schicht herrschenden Spannungen σ_f durch Kenntnis des Biegeradius R_C ermittelt werden:

$$\sigma_f = \frac{E_s}{(1-\nu_s)} \frac{t_s^2}{6t_f R_C}. \quad (24)$$

Das Ergebnis ist dabei nur von der Schicht- und Substratdicke und den elastischen Eigenschaften des Substrats, nicht aber von den Schichteigenschaften abhängig. Dadurch können selbst bei Phasenumwandlungen oder plastischer Deformation der Schicht nur durch Messung der Substratkrümmung die Schichtspannungen bestimmt werden. [3, 15]

In dieser Arbeit wurde ein Multi-Beam Optical Sensor (MOS) der Firma k-Space Associates (kSA) zur Spannungsmessung der dünnen Al-Schichten verwendet. Abbildung 5 zeigt eine schematische Skizze des Messprinzips. In dieser Substratkrümmungs-Messanlage wird ein Diodenlaser mit einer Wellenlänge von 658nm verwendet. Ein 2D-Feld von 4x4 parallelen Laserstrahlen trifft auf die Probenoberfläche und wird von dieser reflektiert. Die Position der reflektierten Laserstrahlen wird während der Messung kontinuierlich von einer angeschlossenen CCD-Kamera aufgezeichnet. Durch die Auslenkungen der Laserspots kann dann, wie in Abb. 6 dargestellt, die Änderung der Substratkrümmung bzw. die Änderung der Schichtspannung mit (11) ermittelt werden:

$$\sigma_f \cdot t_f = \left(\frac{\delta d}{d_0}\right) \cdot \frac{M_s t_s^2 \cos \alpha}{12L}, \quad (25)$$

wobei δd den differentiellen Abstand der Laserspots vom ursprünglichen Abstand d_0 , α den Winkel zwischen Probennormale und einfallenden Laserstrahl und L die Distanz zwischen Probe und Kamera bezeichnen.

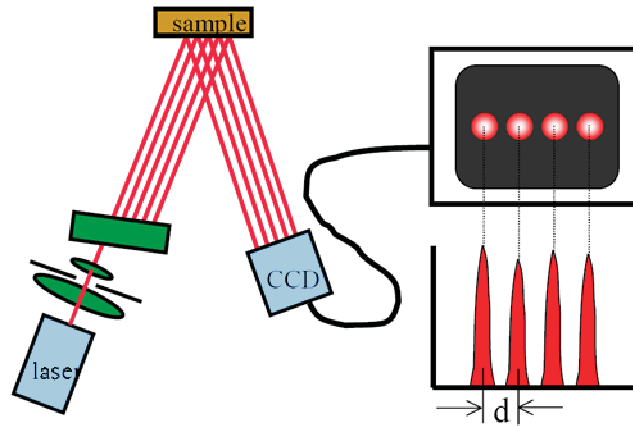


Abb. 5: Schematische Darstellung des Substratkrümmungs-Messaufbaus entnommen aus [25].

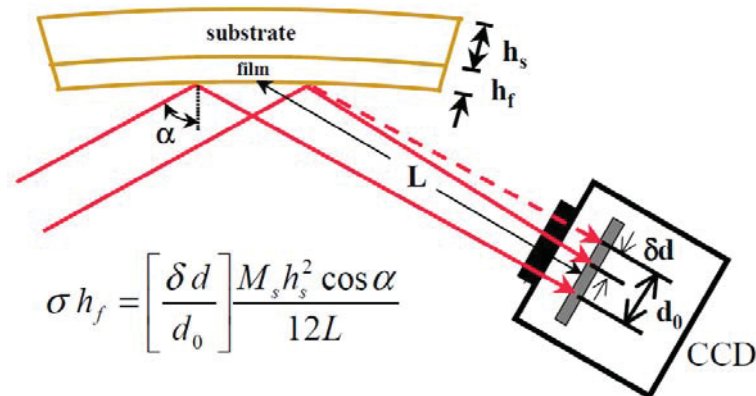


Abb. 6: Skizze zur Berechnung der Schichtspannung aus der Laserspotsverschiebung mittels Gleichung (25). Darstellung entnommen aus [25].

Beim Messaufbau, wie er in dieser Arbeit verwendet wurde, liegt die zu untersuchende Probe in einer selbstkonstruierten Kammer auf einer Heizplatte aus pyrolytischem Bornitrid der Firma tectra. Wie in Abb. 7 dargestellt, erfolgt die Temperaturmessung dabei mittels Thermoelement direkt in der Heizplatte. Während der Experimente wird die Heizkammer von Stickstoff mit 1,25 l/min durchflutet, wobei der eintretende N_2 -Strahl nicht direkt auf die Probe gerichtet ist. Mit diesem Messaufbau kann die Probe während

der in-situ Spannungsmessung verschiedenen Temperaturverläufen unterzogen werden und somit die temperaturabhängige relative Schichtspannung gemessen werden. In dieser Arbeit wurden für die in der Substratkrümmungsanlage durchgeführten Experimente Aufheiz- bzw. Abkühlraten von 10°C pro Minute verwendet.

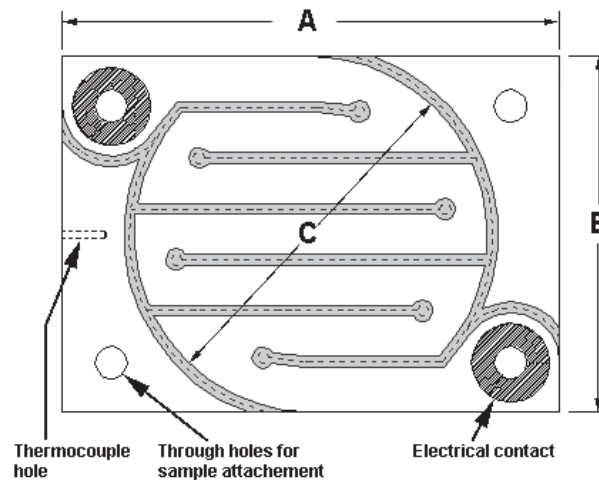


Abb. 7: Heizplatte aus pyrolytischem Bornitrid mit integriertem Thermoelement [26].

3.2.1.1 FEHLERQUELLEN SUBSTRATKRÜMMUNGSMESSUNG

Die Auflösungsgrenze der differentiellen Laserspotverschiebung $\delta d/d_0$ liegt bei etwa 0,05% [25]. Daraus ergibt sich ein maximal auflösbarer Spannungswert in Abhängigkeit der Substrat- und Schichtdicke wie er in Abb. 8 dargestellt ist.

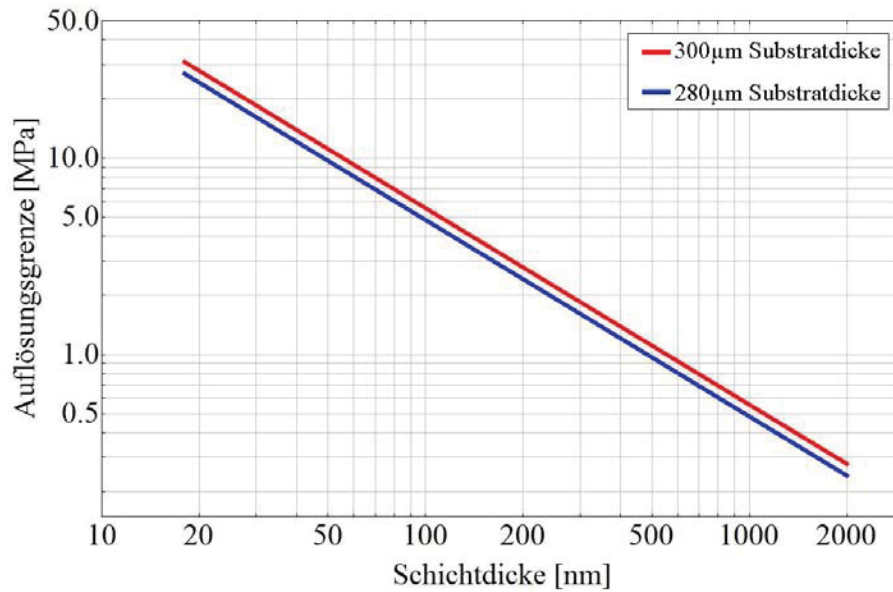


Abb. 8: Maximal auflösbare Spannung aufgrund der Auflösungsgrenze der Laserspotverschiebung von etwa 0,05% in Abhängigkeit von Schicht- und Substratdicke.

Zusätzlich zur Auflösungsgrenze der Spannung ergibt sich bei der Substratkrümmungsmethode mit dem „Rauschen“ der Daten, also der Schwingbreite der Spannungswerte bei einer Temperatur, eine weitere mögliche Fehlerquelle. Wie in Abb. 9 dargestellt, steigt dieses „Rauschen“, welches durch Luftflimmern entsteht, mit zunehmender Temperatur und abnehmender Schichtdicke an. Die Rauschamplitude wurde als Standardabweichung der Spannungsmittelwerte bei den jeweiligen Temperaturen für einen Thermozyklus ermittelt.

Die ungenauesten Ergebnisse liefert die Spannungsmessung mittels Wafer-Curvature-Methode also bei einer Kombination aus kleiner Schicht-, großer Substratdicke und hoher Temperatur.

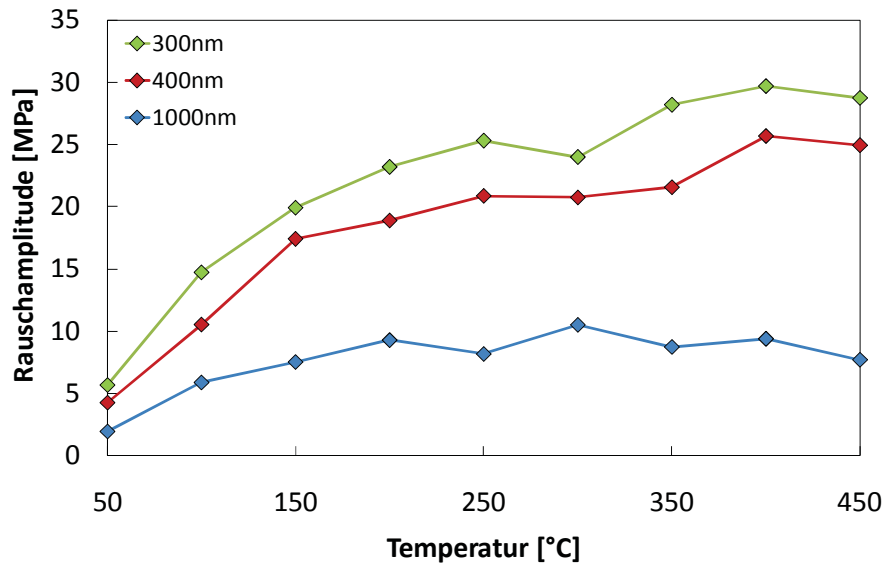


Abb. 9: „Rauschen“ der Spannungswerte in Abhängigkeit von Temperatur und Schichtdicke. Die Rauschamplitude entspricht der halben Schwingbreite der Spannungswerte und wurde als Standardabweichung des Spannungsmittelwertes bei den jeweiligen Temperaturen ermittelt.

Da bei der Substratkrümmungsmethode nur die jeweils aktuelle Substratkrümmung bzw. der damit verbundenen Schichtspannungszustand gemessen wird und die Ausgangskrümmung des unbeschichteten Substrats in unserem Fall nicht bekannt ist, können außerdem lediglich relative und keine absoluten Spannungswerte ermittelt werden!

3.2.2 $\sin^2(\psi)$ -METHODE*

Die $\sin^2(\psi)$ -Methode ermöglicht die Ermittlung von Gitterdehnungen mittels Röntgendiffraktion, welche bei Kenntnis der elastischen Moduli der Schicht in die in der Schicht herrschenden absoluten Spannungen umgerechnet werden können.

Ein polykristalliner, spannungsfreier Werkstoff hat – unabhängig von der Orientierung der einzelnen Körner – idente Gitterkonstanten in allen Kristalliten. Unter Spannung wird das Gitter allerdings dem Hookschen Gesetz folgend gedehnt, wobei die dadurch auftretende Änderung des Netzebenenabstandes d_{hkl} über eine Verschiebung der 2θ -Position des Peaks mit Hilfe der Bragg Bedingung ermittelt werden kann. Wird die Probe auf verschiedene ψ -Winkel gekippt und dabei jeweils die Peakposition des (hkl)-Reflexes bestimmt, kann der jeweilige Netzebenenabstand berechnet werden. Über die Steigung im $\sin^2(\psi)$ -Plot –

*Für die Durchführung der $\sin^2(\psi)$ -Messungen danke ich Herrn M. Bartosik.

Netzebenenabstand über $\sin^2(\psi)$ – können anschließend die Dehnungen und in weiterer Folge Absolutwerte der Spannungen ermittelt werden. [27]

Die Eigenspannungsmessungen mittels $\sin^2(\psi)$ -Methode wurden an einem Seifert 4-Kreis-Goniometer vom Typ XRD 3000 PTS bei nomineller Raumtemperatur (ca. 40°C) durchgeführt. Der Messaufbau bestand aus einer Cu-K $_{\alpha}$ Strahlenquelle, primärseitig angebrachter Polykapillare ohne Kollimator, sekundärseitig installierten Soller-Slits mit Kohlenstoffmonochromator und Szintillationsdetektor.

Für die Ermittlung der absoluten Schichtspannungen wurden die Schichten im bereits teilweise relaxierten Spannungszustand gemessen. Direkt im Anschluss an die $\sin^2(\psi)$ -Messung wurde die Spannung mittels Substratkrümmungsmethode bestimmt, um die mit Hilfe der zwei unterschiedlichen Messmethoden ermittelten Spannungswerte miteinander korrelieren zu können.

3.3 VAN-DER-PAUW WIDERSTANDSMESSUNG

Die Van-der-Pauw-Methode [28, 29, 30] ist ein in der Halbleiterindustrie weit verbreitetes Messprinzip zur Ermittlung des Flächenwiderstands und des Hall-Koeffizienten von dünnen Schichten. In dieser Arbeit wird allerdings nur auf die Messung und Berechnung des Flächenwiderstands näher eingegangen.

Van der Pauw zeigte 1958, dass der spezifische Widerstand bei dünnen Proben beliebiger Form mit vier Kontakten in beliebigen Abständen ohne Kenntnis derselben unter folgenden Bedingungen ermittelt werden kann:

- Die Kontaktierung erfolgt am Umfang der Probe
- Die Kontakte sind ausreichend klein
- Die Dicke der Probe ist homogen
- Die Probenoberfläche ist verbunden, es sind also keine Löcher in der Probe vorhanden

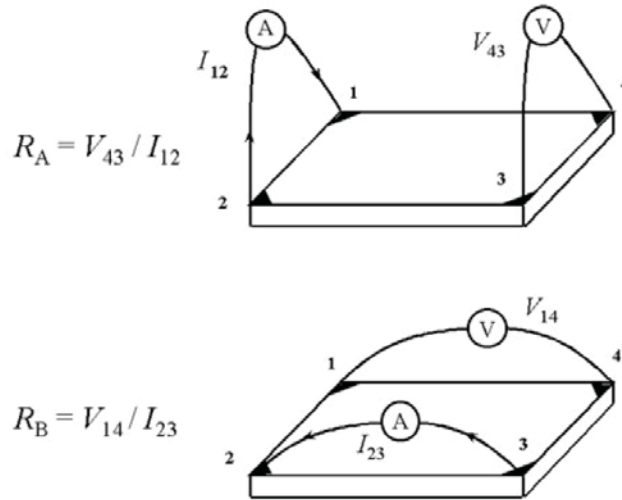


Abb. 10: Schematischer Messaufbau zum Bestimmen des Flächenwiderstands mit Hilfe der Van-der-Pauw-Methode [30].

Um den Flächenwiderstand R_S zu bestimmen, müssen vorerst die beiden charakteristischen Widerstände R_A und R_B ermittelt werden. Dazu wird, wie in Abb. 10 oben dargestellt, eine Spannung zwischen den Kontakten 1 und 2 angelegt, wodurch ein Strom (I_{12}) fließt. Parallel dazu wird die an den Kontakten 3 und 4 abfallende Spannung (V_{43}) gemessen und daraus der Widerstand R_A bestimmt. Analog zu R_A wird anschließend der charakteristische Widerstand R_B , wie in Abb. 10 unten gezeigt, mit Hilfe des Stroms I_{23} und der Spannung V_{14} ermittelt. Die charakteristischen Widerstände lassen sich dann wie folgt berechnen:

$$R_A = \frac{V_{43}}{I_{12}} \quad (26)$$

$$R_B = \frac{V_{14}}{I_{23}} \quad (27)$$

Im Anschluss kann der Flächenwiderstand R_S mit Hilfe der Van-der-Pauw Gleichung (28) numerisch ermittelt werden:

$$\exp\left(-\pi \frac{R_A}{R_S}\right) + \exp\left(-\pi \frac{R_B}{R_S}\right) = 1 \quad (28)$$

Daraus und mit Kenntnis der Proben- bzw. in unserem Fall Schichtdicke t_f lässt sich der spezifische Widerstand für symmetrische Proben berechnen:

$$\rho = R_S \cdot t_f \quad (29)$$

Bei unsymmetrischen Proben muss zusätzlich ein Korrekturfaktor f berücksichtigt werden, sodass gilt:

$$\rho_{corr} = \frac{\pi \cdot t_f}{\ln 2} \cdot \frac{(R_A + R_B)}{2} \cdot f\left(\frac{R_A}{R_B}\right), \quad (30)$$

wobei f eine Funktion von R_A/R_B ist und folgender Relation genügt:

$$\frac{R_A - R_B}{R_A + R_B} = f \cdot \frac{1}{\ln 2} \operatorname{arccosh}\left\{\frac{\exp(\ln 2 / f)}{2}\right\} \quad (31)$$

In der vorliegenden Arbeit wurde eine eigens gebaute Vorrichtung (siehe Abb. 11) zur Kontaktierung der ungefähr 10x10mm großen Proben verwendet.

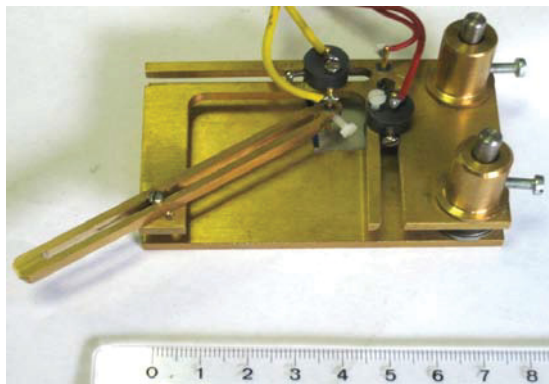


Abb. 11: Messvorrichtung zur Kontaktierung der Proben für die Van-der-Pauw Widerstandsmessung

4. ERGEBNISSE UND INTERPRETATION

4.1 CHARAKTERISIERUNG DES AUSGANGSZUSTANDES

4.1.1 SCHICHTSYSTEM A

Um die Schichten im Ausgangszustand bezüglich ihrer Oberflächenstruktur zu charakterisieren, wurden Untersuchungen mittels Licht- (Olympus BX51), Rasterelektronen- (LEO 1525) und Rasterkraftmikroskop (VEECO Dimension 3100) an den Proben des Schichtsystems A durchgeführt. Die verwendeten Geräteeinstellungen sind im Anhang (Kap. 6.5) angegeben. Die Abb. 12-17 zeigen ausgewählte Bilder dieser Untersuchungen, wobei jeweils a) eine lichtmikroskopische, b) eine rasterelektronenmikroskopische und c) eine 3D-AFM-Aufnahme darstellt.

In der lichtmikroskopischen Aufnahme der 25nm dicken Al-Schicht (Abb. 12 a)) sind dunkle Stellen auf der Probenoberfläche zu erkennen. Diese Stellen, an denen das Substrat bzw. die a-SiN_x Diffusionsbarriere durchschimmert, zeugen von einer noch nicht vollständig geschlossenen Schicht.

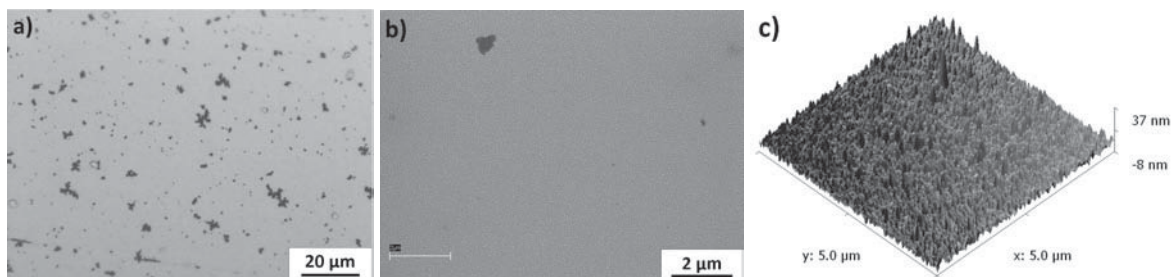


Abb. 12: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 25nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A. An den dunklen Stellen in a) schimmert das Substrat durch, diese dünnen Schichten zeigen noch keine komplett geschlossene Schicht.

In der Literatur [31] wird bei dünnen polykristallinen Proben eine Proportionalität zwischen Probendicke und Korngröße festgestellt. Eine explizite Korngrößenanalyse wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt – anhand der REM-Bilder ist aber einen Trend zu steigender durchschnittlicher Korngröße mit zunehmender Schichtdicke erkennbar.

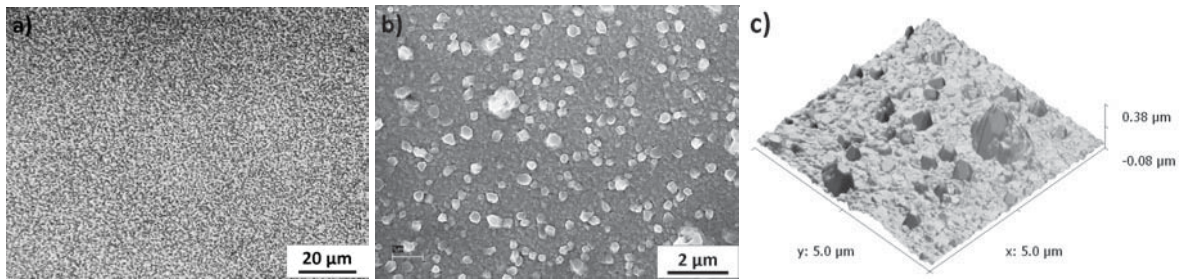


Abb. 13: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 200nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

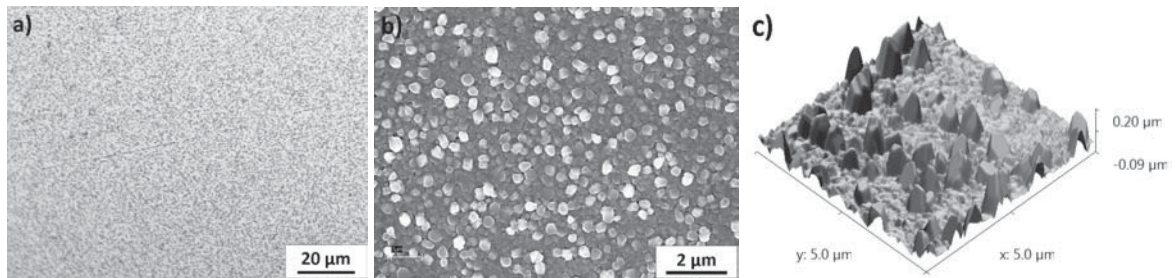


Abb. 14: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 300nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

Vergleicht man die 3D-AFM-Bilder der verschiedenen Al-Schichten miteinander, kann ein Anstieg der Rauigkeit mit wachsender Schichtdicke beobachtet werden. Des Weiteren nimmt mit steigender Schichtdicke der Anteil an präexistenten Hillocks zu. Darunter versteht man jene Hillocks, die bereits nach der Beschichtung aber noch vor jeglicher Glühbehandlung auf den Probenoberflächen vorhanden sind.

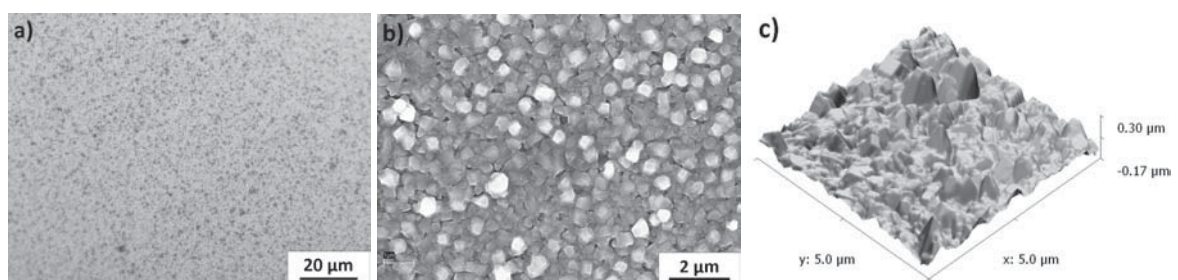


Abb. 15: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 400nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

Die Oberflächenstruktur der 600nm-Schicht (Abb. 16) unterscheidet sich grundlegend von jener der anderen Schichtdicken, die Oberfläche ist zerklüftet und zeigt – für diese Schichtdicke ungewöhnlich – keine Hillocks in ihrem Ausgangszustand. Etwaige

Abweichungen im Beschichtungsprozess sind allerdings nicht bekannt. Bei den Voruntersuchungen bezüglich Hillockwachstum konnte selbst bei hohen Glühtemperaturen kein Entstehen von Hillocks beobachtet werden. Die 600nm-Schichten wurden deshalb im weiteren Verlauf dieser Arbeit nicht berücksichtigt.

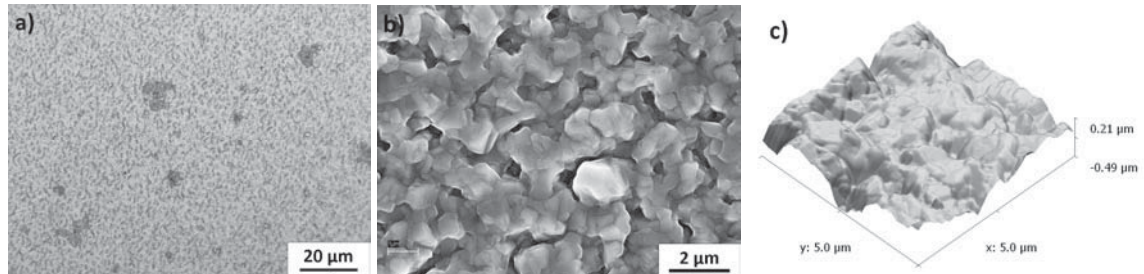


Abb. 16: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 600nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

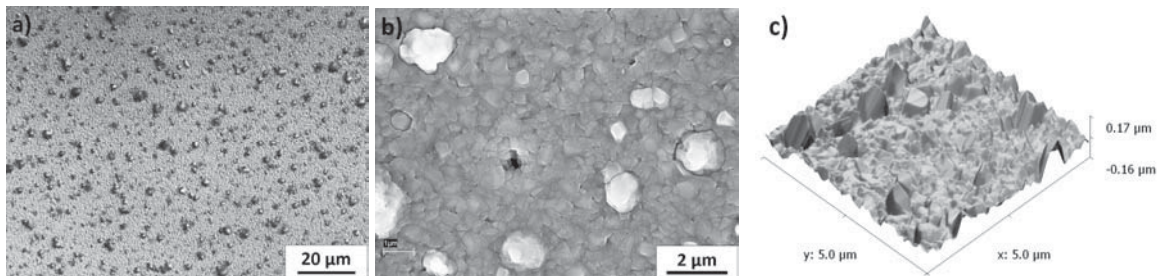


Abb. 17: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 1000nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

Weitere Abbildungen der Schichten des Systems A sind im Anhang (Kap. 6.1.1) dargestellt.

4.1.2 SCHICHTSYSTEM B

Die folgenden REM-Bilder (Abb. 18-20) zeigen exemplarisch die Oberflächenstruktur der untersuchten Schichtdicken des Systems B. Vor allem die 1µm dicke Schicht weist im Vergleich zur gleichen Schichtdicke des Systems A wesentlich größere Körner auf.

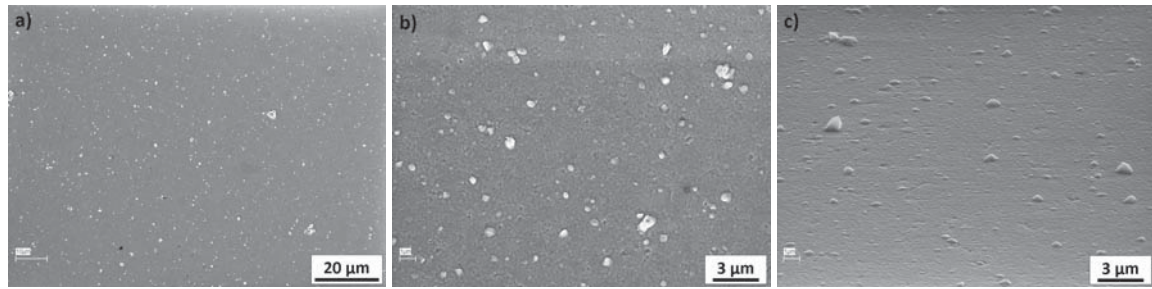


Abb. 18: REM-Aufnahmen einer 400nm Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70° .

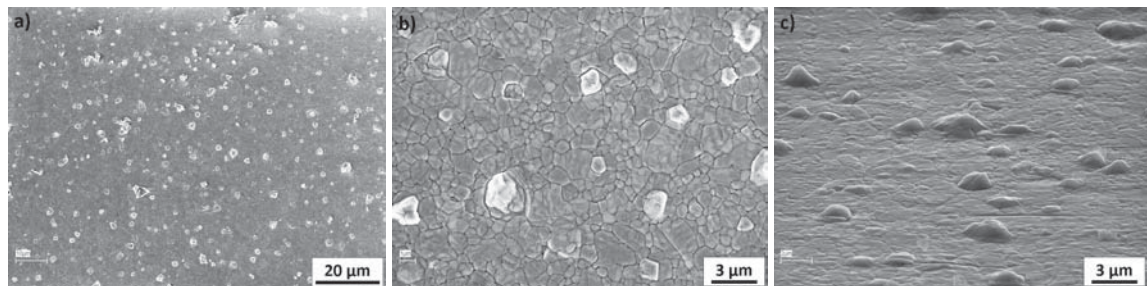


Abb. 19: REM-Aufnahmen einer $1\mu\text{m}$ Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70° .

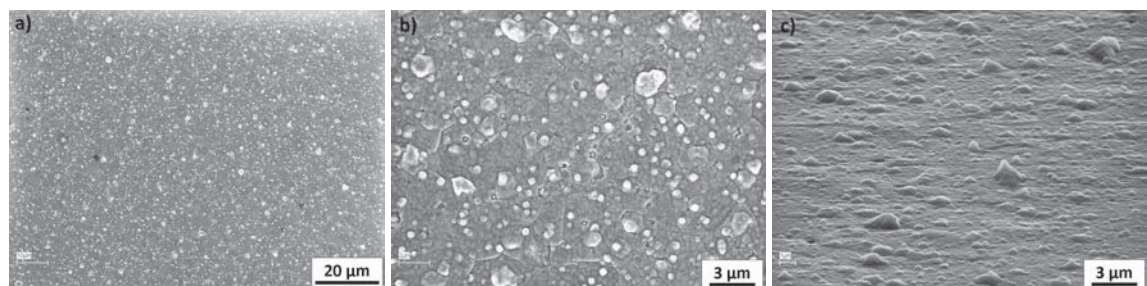


Abb. 20: REM-Aufnahmen einer $2\mu\text{m}$ Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70° .

4.2 UNTERSUCHUNG DES THERMOMECHANISCHEN VERHALTENS

4.2.1 VERSUCHSDURCHFÜHRUNG

Mittels Substratkrümmungsmethode (Kap. 3.2.1) wurden für die verschiedenen Schichtdicken der Schichtsysteme A und B Thermozyklen (Kap. 2.3) gemessen, um so die

Spannungsänderung der dünnen Al-Schichten in Abhängigkeit der Temperatur zu untersuchen. Dazu wurden die Proben von Raumtemperatur mit einer Aufheizrate von 10°C pro Minute bis 450°C geheizt, bei dieser Temperatur drei Minuten gehalten und anschließend mit der selben Geschwindigkeit wieder auf Raumtemperatur abgekühlt.

Dieses Experiment wurde erst einige Zeit nach der Beschichtung durchgeführt, wodurch den Schichten genug Zeit zur teilweisen Relaxation der herstellungsbedingten Schichtspannungen zur Verfügung stand. Die biaxialen Spannungswerte vor und nach dem ersten Thermozyklus stimmen somit, wie in Abb. 21 erkennbar, nicht überein. Um dennoch einen geschlossenen Spannungs-Temperatur-Verlauf zu erhalten, wurde anschließend an den ersten ein zweiter Zyklus durchgeführt. Als Startpunkt wurde dabei eine Temperatur von 50°C gewählt. Durch den niedrigeren Ausgangsspannungswert des ersten Thermozyklus weicht die Aufheizkurve bis ungefähr 250°C von der des zweiten Zyklus ab. Danach münden die zwei Kurven ineinander und folgen dem gleichen Verlauf. Jeder weitere Thermozyklus stimmt mit dem Spannungs-Temperaturverlauf des zweiten Zyklus überein.

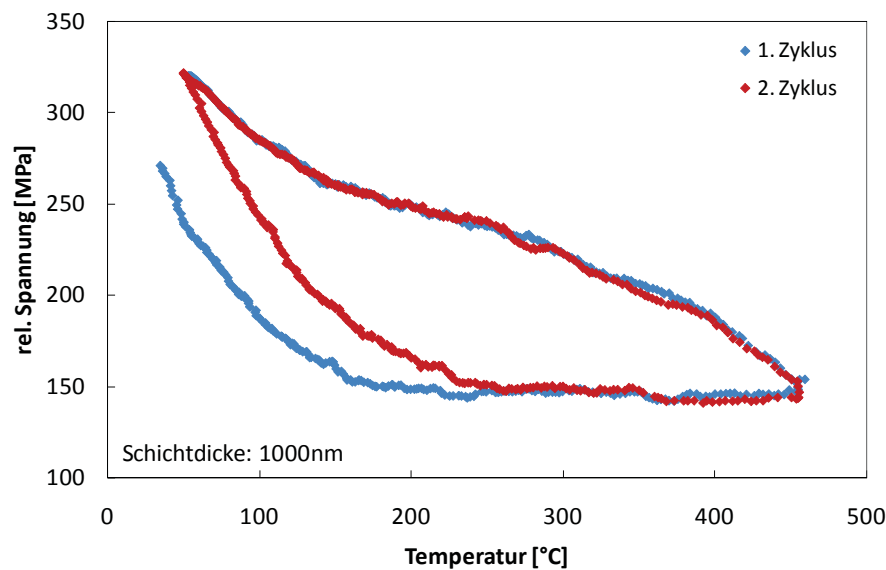


Abb. 21: Erster und zweiter Thermozyklus einer $1\mu\text{m}$ Schicht des Schichtsystems A.

4.2.2 VERGLEICH DER THERMOZYKLEN DES SCHICHTSYSTEMS A

4.2.2.1 SUBSTRATKRÜMMUNGSMETHODE

In den Abb. 22 a)-f) sind die unterschiedlichen Spannungs-Temperatur-Verläufe in Abhängigkeit der Schichtdicke des Schichtsystems A dargestellt.

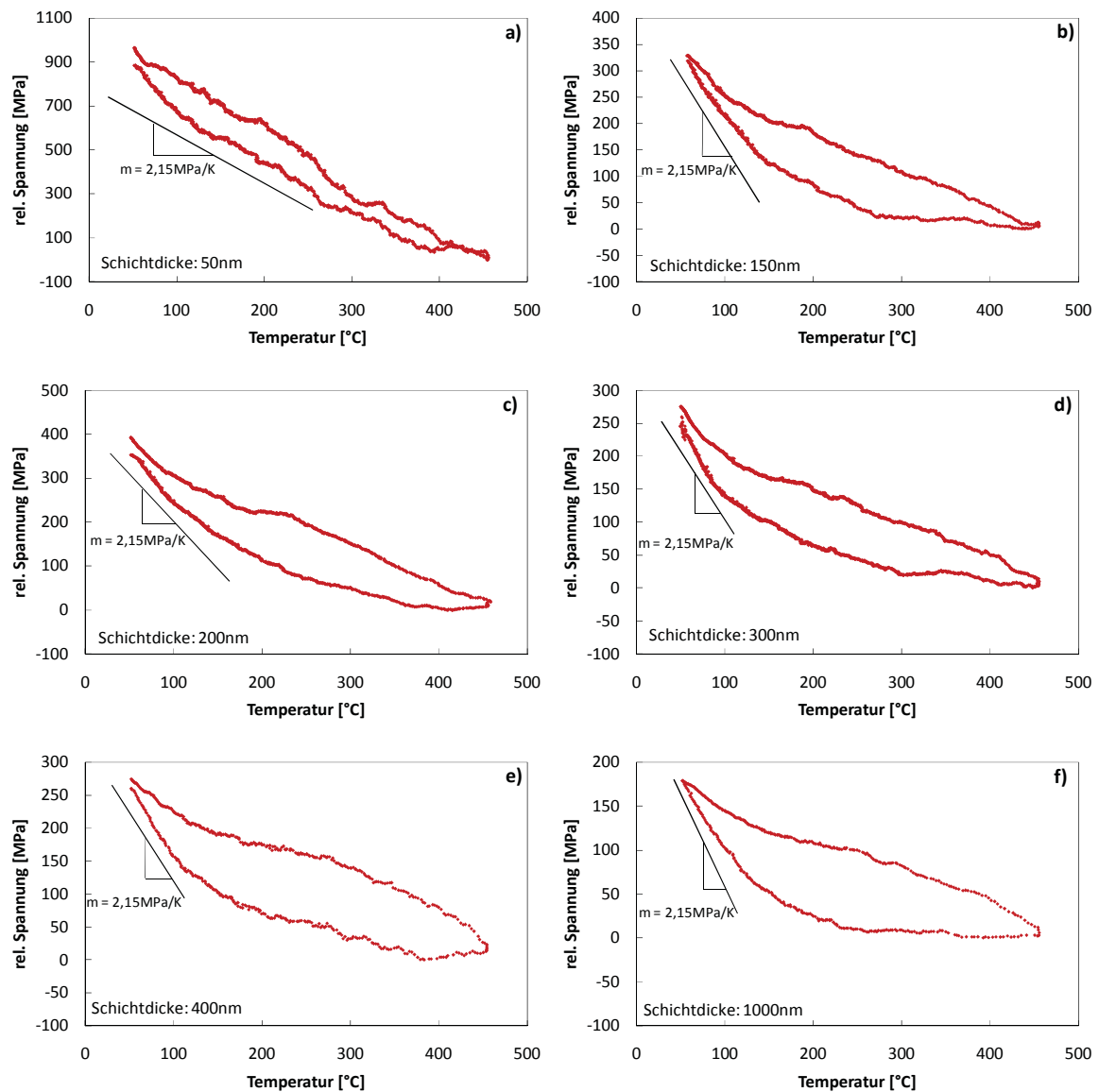


Abb. 22: Geschlossene Thermozyklen des Schichtsystems A für verschiedene Schichtdicken, a) 50nm, b) 150nm, c) 200nm, d) 300nm, e) 400nm, f) 1000nm. Die in die Diagramme eingezeichnete Linie zeigt die theoretische thermoelastische Gerade beim Aufheizen mit der Steigung m . Da die Ausgangskrümmungen der Substrate nicht bekannt waren, sind die Spannungswerte als relative Spannungswerte angegeben.

Die in die einzelnen Diagramme eingezeichnete Linie zeigt dabei die theoretische thermoelastische Gerade beim Aufheizen des Schicht-Substrat-Verbundes (siehe Kap 2.3) mit der Steigung m . Während bei kleineren Schichtdicken (Abb. 22a)) die Aufheiz- und Abkühlkurven praktisch übereinander liegen, nimmt ab 150nm die Fläche zwischen den beiden Kurven mit steigender Schichtdicke stetig zu. Daraus lässt sich das unterschiedliche Verformungsverhalten dünner Schichten in Abhängigkeit der Schichtdicke erkennen. Die dünneren Schichten verformen sich beinahe rein elastisch, mit zunehmender Schichtdicke dagegen steigt der Anteil der plastischen Deformation [21].

Weitere Thermozyklen des Systems A sind im Anhang (Kap. 6.2.2.1) angeführt.

4.2.2.2 SIN²(ψ)-METHODE

Wie bereits in Kap. 3.2.1 erwähnt, können bei der Spannungsmessung mittels Substratkrümmungsmethode ohne Vorkenntnis der Substratausgangskrümmung nur relative Spannungen detektiert werden. Ein Ansteigen der Raumtemperatur-Fließspannung mit abnehmender Schichtdicke [17, 18, 21-23] kann daher nicht direkt aus den Substratkrümmungsdaten der Thermozyklen erkannt werden. Aus diesem Grund wurde für ausgewählte Schichtdicken eine zusätzliche Spannungsmessung mittels Röntgendiffraktometrie ($\sin^2(\psi)$ -Methode) durchgeführt. Dadurch konnten die absoluten Spannungswerte der Schichten bei Raumtemperatur ermittelt, die Substratkrümmungsdaten um diesen Wert korrigiert (siehe Kap. 3.2.2) und die Spannungs-Temperatur-Verläufe der gemessenen Schichtdicken in Relation gestellt werden.

Abbildung 23 zeigt als Beispiel den $\sin^2(\psi)$ -Plot des (111)-Peaks für eine 400nm dicke Schicht vom Schichtsystems A. Aus der Steigung des linearen Fits kann, wie in Kap. 3.2.2 beschrieben, die biaxiale Schichtspannung berechnet werden. Die $\sin^2(\psi)$ -Plots der anderen gemessenen Schichtdicken befinden sich im Anhang (Kap. 6.2.2.1).

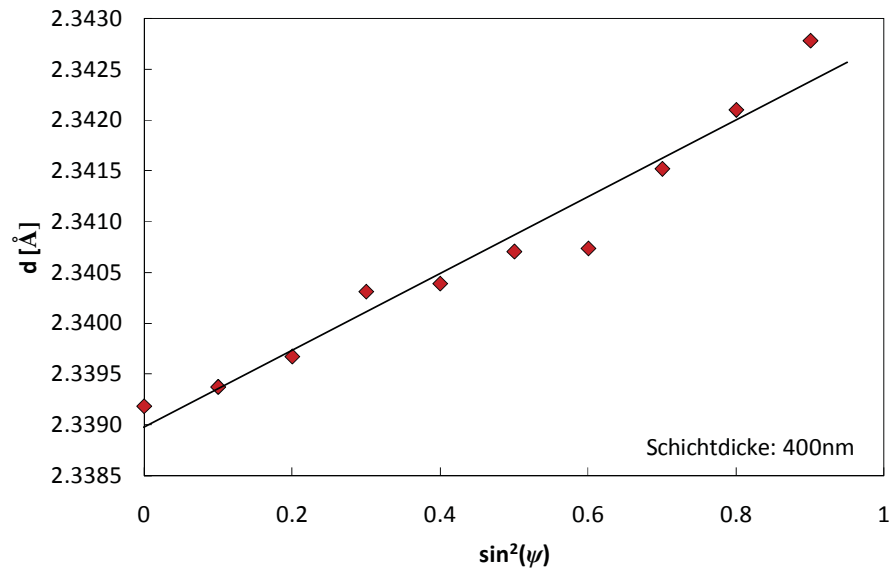


Abb. 23: $\sin^2(\psi)$ -Plot einer 400nm Schicht des Systems A zur Ermittlung der absoluten Schichtspannungen bei RT.

Ein Vergleich der absoluten Spannungsverläufe in Abhängigkeit der Temperatur, wie in Abb. 24 dargestellt, lässt – im Gegensatz zu Literaturdaten – für die Schichten des Systems A keinen ausgeprägten Anstieg der Fließtemperatur mit abnehmender Schichtdicke erkennen.

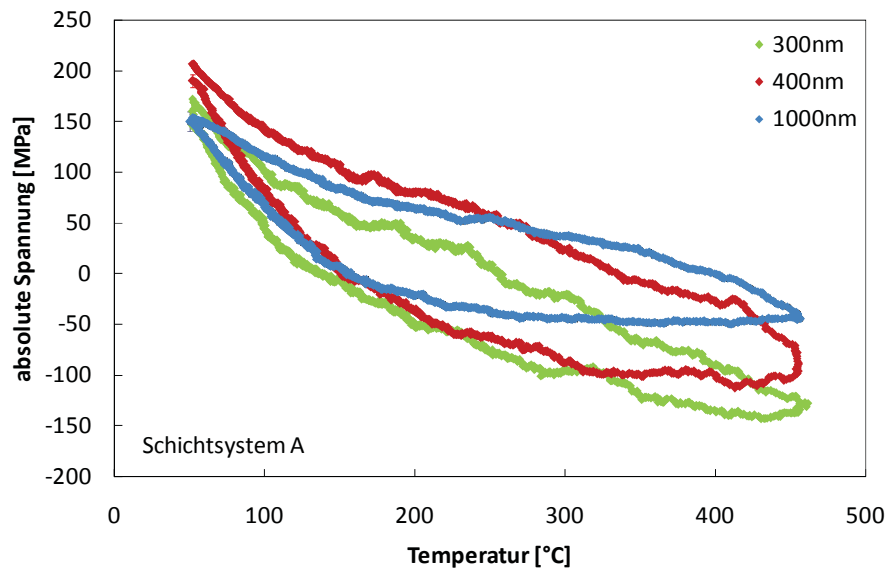


Abb. 24: Thermozyklus ausgewählter Schichtdicken des Systems A mit absoluten Spannungswerten.

4.2.3 VERGLEICH DER THERMOZYKLEN DES SCHICHTSYSTEMS B

Die in der Substratkrümmungsanlage gemessenen Spannungs-Temperatur-Verläufe des Schichtsystems B zeigten, wie in den Abb. 51 a)-c) (Anhang Kap. 6.2.2.2) zu erkennen ist, ein abnormales Verhalten. Dieses könnte auf das lange unbeobachtete Lagern der Schichten zurückzuführen sein oder aber auch mit Messungenauigkeiten der Substratkrümmungsanlage in Zusammenhang stehen. Um die Thermozyklen der Schichten dieses Systems dennoch beschreiben zu können, wurde auf Daten dieser Schichten (Abb. 25 a)-d)) von den Substratkrümmungsmessungen am MPI für Metallforschung (Stuttgart) zurückgegriffen [17].

Wie schon im Schichtsystem A beobachtet, zeigen auch die Al-Schichten des Systems B einen zunehmenden Anteil plastischer Verformung mit steigender Schichtdicke (Abb. 25 a)-d)). Außerdem ist für dieses Schichtsystem ein Anstieg der Raumtemperaturfließspannung mit abnehmender Schichtdicke, wie auch Literaturdaten [17, 18, 21-23] zeigen, festzustellen.

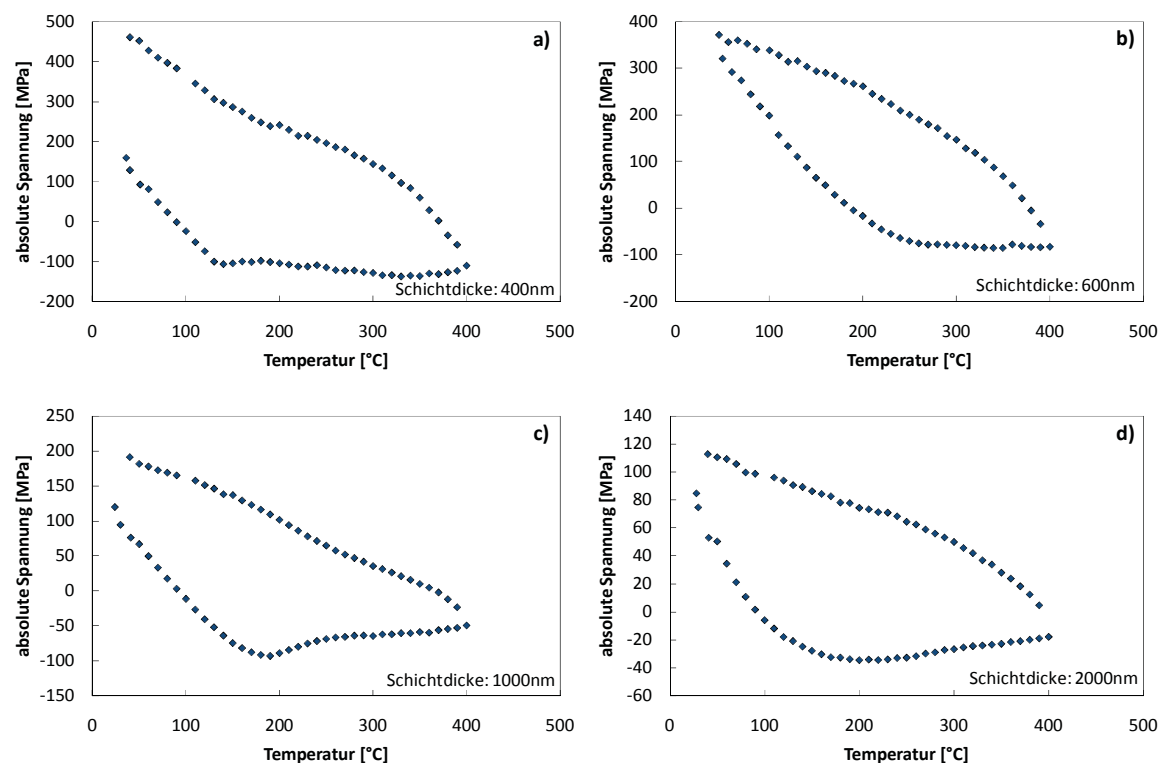


Abb. 25: Absolute Spannungs-Temperatur-Verläufe der Al-Schichten des Schichtsystems B für a) 400nm, b) 600nm, c) 1000nm und d) 2000nm. Diese Thermozyklen wurden in einer Substratkrümmungsanlage am MPI für Metallforschung (Stuttgart) gemessen [17].

4.3 HILLOCKBILDUNG ALS MECHANISMUS ZUR DRUCKSPANNUNGSRELAXATION

Wie bereits eingangs erwähnt, führen die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Schicht und Substrat beim Aufheizen des Verbundes zum Entstehen von Druckspannungen in der Schicht. Diese Druckspannungen können in dünnen Al-Schichten durch verschiedene Mechanismen wie z.B. Hillockbildung [1-5] abgebaut werden.

Der folgende Teil dieser Arbeit beschreibt die Untersuchung der Hillockneubildung in Abhängigkeit von Schichtdicke und Temperatur und deren Zusammenhang mit der Druckspannungsrelaxation.

4.3.1 PROBENVORBEREITUNG UND MESSUNG DES HILLOCKVOLUMENS

Zu Beginn der Untersuchungen wurden die Proben mit einem Kreuz auf der Probenoberfläche markiert – Schichtsystem A mittels Ritzen, Schichtsystem B mittels Permanentmarker. Dadurch konnten vier (zufällig) ausgewählte Bereiche in der Mitte der Probe leichter wieder gefunden werden.

Gibt man den dünnen Al-Schichten genug Zeit, relaxieren die Schichtspannungen, wie in Kap. 4.2.1 beschrieben, schon bei Raumtemperatur. Um die bereits durch die Beschichtung vorhandenen Hillocks dennoch bei einem bekannten Spannungszustand (Raumtemperaturfließspannung) untersuchen zu können, wurden die Proben vor jeder Ausgangszustandscharakterisierung einem Thermozyklus unterworfen. Anschließend konnte der bestehende Hillockanteil mittels Rasterelektronenmikroskopie in den vier ausgewählten Bereichen bestimmt werden. Dazu wurden Bilder mit 2500-facher Vergrößerung unter 0° und 70° Kippwinkel aufgenommen – das entspricht bei einem Kippwinkel von 0° einem Bereich von etwa $50 \times 35 \mu\text{m}^2$. Abbildungen 26 a) und b) zeigen ein Beispiel solcher REM-Aufnahmen für eine 1000nm Schicht des Systems A.

Um das Hillockwachstum in Abhängigkeit von Temperatur und Schichtdicke zu untersuchen, wurden die unterschiedlich dicken Al-Schichten anschließend bei verschiedenen Temperaturen gegläht. Die Temperaturbehandlung erfolgte in der

Substratkrümmungsanlage bei gleichzeitiger Spannungsmessung. Aufheiz- bzw. Abkühlgeschwindigkeiten betragen, wie auch bereits bei den Thermozyklen, 10°C pro Minute. Ab Erreichen der jeweiligen Glühtemperatur – 200°C , 250°C , 300°C , ..., 450°C – wurde die Probe 2 Stunden bei dieser Temperatur geüht. Um den dadurch entstandenen Unterschied im Hillockvolumen zu detektieren, wurden im Anschluss erneut REM-Bilder der jeweiligen Bereiche aufgenommen. Abbildungen 26 c) und d) zeigen den gleichen Bereich wie zuvor nach zwei Stunden Glühen bei 450°C . Die roten Kreise markieren exemplarisch zwei der beim Heizen entstandenen Hillocks bei einem Kippwinkel von 0° und 70° .

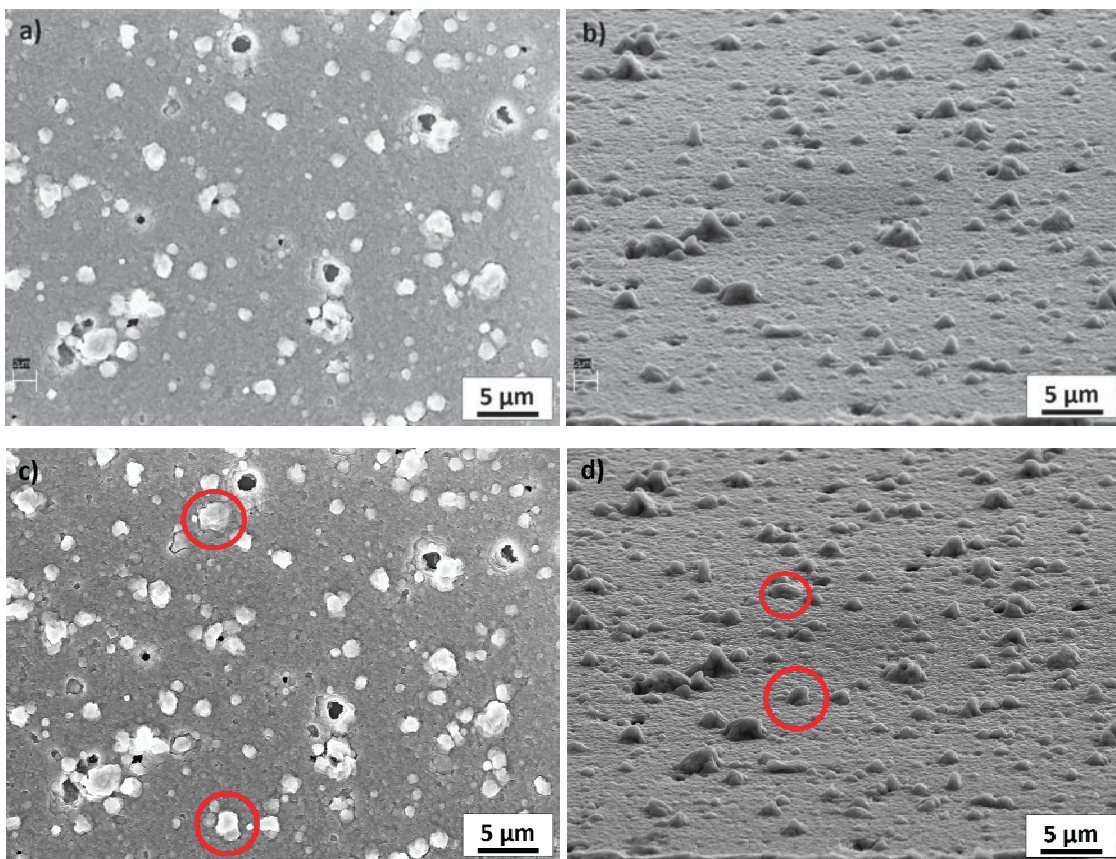


Abb. 26: REM-Aufnahmen eines ausgewählten Bereiches einer 1000nm Schicht vom System A; unter einem Kippwinkel von a) 0° , b) 70° vor dem Glühen; c) 0° , d) 70° nach 2h Glühen bei 450°C , die roten Markierungen zeigen exemplarisch zwei neugewachsene Hillocks.

Die „vorher-nachher“ Bilder unter einem Kippwinkel von 0° wurden mit Hilfe einer Mathematica-Routine (Source-Code im Anhang Kap.6.4 enthalten) auf neugebildete Hillocks untersucht. Dazu werden die zwei REM-Bilder eingelesen, übereinandergelegt

und Unterschiede in der Grauwertverteilung farblich dargestellt (siehe Abb. 27). Bereiche ohne Hillocks werden dabei schwarz abgebildet. Hillocks dagegen werden gelb im Fall von „ursprünglichen“, grün im Fall von neuen Hillocks und rot im Fall von solchen, die nur im ersten Bild auftreten, eingefärbt. Rot eingefärbte Hillocks wurden allerdings bei keiner Schichtdicke und Temperatur gefunden, ein Verschwinden oder Schrumpfen von bereits existierenden Hillocks, wie von Chang et al. [10] beschrieben, konnte also nicht beobachtet werden! Die dennoch in Abb. 27 erkennbaren roten Pixel entstehen durch Ungenauigkeiten beim Übereinanderlegen der zwei REM-Bilder. Die roten Kreise in Abb. 27 zeigen wieder die neugewachsenen Hillocks aus Abb. 26.

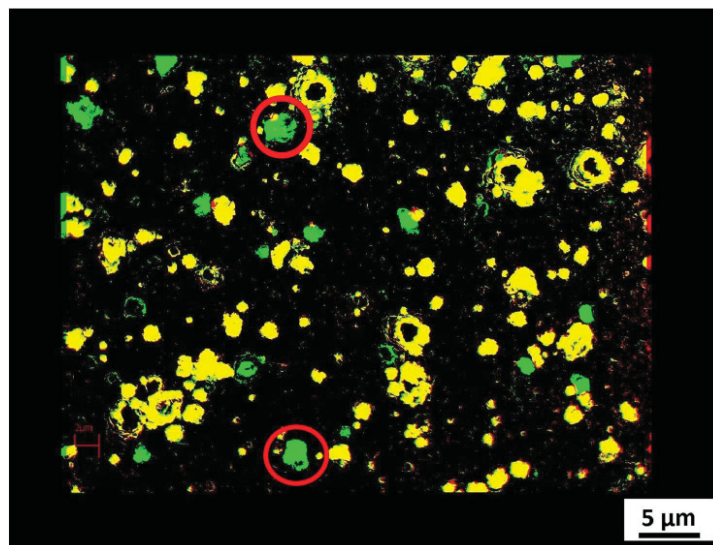


Abb. 27: Mathematica-Bild durch Übereinanderlegen und Farbcodieren der "vorher-nachher" REM-Aufnahmen einer 1000nm Schicht vom System A; gelb: alte Hillocks, grün: neue Hillocks, die roten Kreise markieren die bereits in Abb.26 exemplarisch hervorgehobenen Hillocks.

Die grünen Bereiche, welche den neu entstandenen Hillocks entsprechen, wurden im Anschluss mit Hilfe des Softwareprogramms AnalySIS detektiert und vermessen. Abbildung 28 zeigt das Ergebnis der AnalySIS-Auswertung für den oben diskutierten Bereich der 1000nm Schicht, die roten Kreise entsprechen wiederum den exemplarisch gewählten neugewachsenen Hillocks (Hillock 4 und 15).

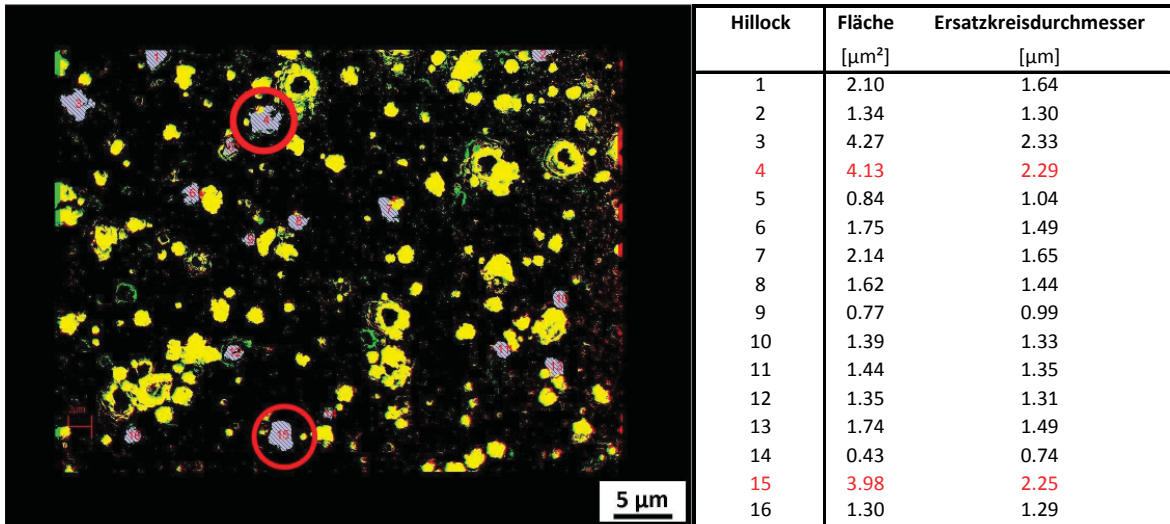


Abb. 28: Die neu gebildeten Hillocks wurden mit dem Softwareprogramm AnalySIS vermessen und die Fläche bestimmt. Aus der Fläche wird mit $(D/2)^2 \cdot \pi$ der Ersatzkreisdurchmesser D berechnet.

Das Hillockvolumen wurde anschließend unter der Annahme eines kegel- bzw. zylinderförmigen Hillocks berechnet. Dazu wurde die projizierte Hillockhöhe in der 70° gekippten REM-Aufnahme (Abb. 26 d)) gemessen, über die in Abb. 29 a) (Kegelvolumen) und b) (Zylindervolumen) dargestellten geometrischen Verhältnisse in die tatsächliche Hillockhöhe umgerechnet und schließlich das Volumen der Hillocks bestimmt. Die dafür verwendeten Gleichungen sind im Anhang (Kap. 6.3) angegeben.

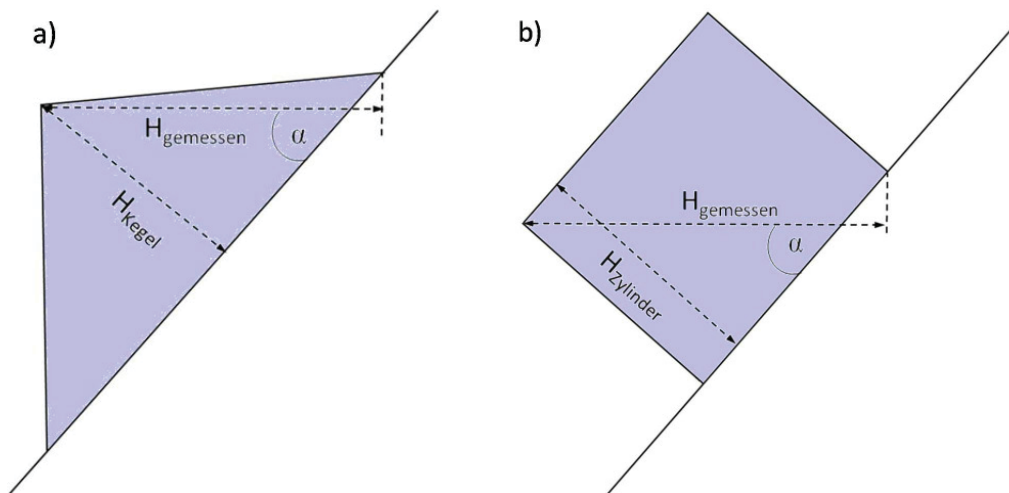


Abb. 29: Geometrische Verhältnisse zum Berechnen der tatsächlichen Hillockhöhe (H_{Kegel} bzw. H_{Zylinder}) aus der in der 70° (Kippwinkel α) gekippten Aufnahme gemessenen Höhe (H_{gemessen}); Annahme a) Kegelvolumen, b) Zylindervolumen.

4.3.2 HILLOCKVOLUMEN IN ABHÄNGIGKEIT VON SCHICHTDICKE UND TEMPERATUR

Das neu entstandene Hillockvolumen wurde, wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, unter der Annahme von kegel- bzw. zylinderförmigen Hillocks für die unterschiedlichen Schichtdicken der zwei Schichtsysteme in Abhängigkeit der Glühtemperatur bestimmt.

Für die Al-Schichten des Systems A konnte für Schichtdicken unter 300nm nach einer zweistündigen Glühbehandlung bei keiner Temperatur ein Hillockwachstum beobachtet werden. Wie bereits in Kap. 4.2.2 beschrieben, zeigen sehr dünne Schichten (<150nm) selbst bei erhöhten Temperaturen praktisch rein elastisches Verhalten. Ein plastischer Verformungsmechanismus wie Hillocking tritt somit erst bei dickeren Schichten auf. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden deshalb nur noch die 300nm, 400nm und 1000nm dicken Schichten des Schichtsystems A behandelt.

Die Ergebnisse der Hillockuntersuchung für diese Schichtdicken des Schichtsystems A sind in den Abb. 30 und 31 zusammengefasst. Sowohl mit zunehmender Temperatur als auch mit zunehmender Schichtdicke steigt das gesamte neugebildete Hillockvolumen an (Abb. 30 a) und b)). Die 300nm und 400nm dicken Al-Schichten zeigen bei Temperaturen unter 300°C bzw. 250°C allerdings kein Hillockwachstum. Wie bereits in den Thermozyklen (Abb. 22) erkennbar, kommt es bei diesen dünnen Schichten erst bei höheren Temperaturen zu einer starken Abweichung von der thermoelastischen Gerade und somit zu plastischer Verformung.

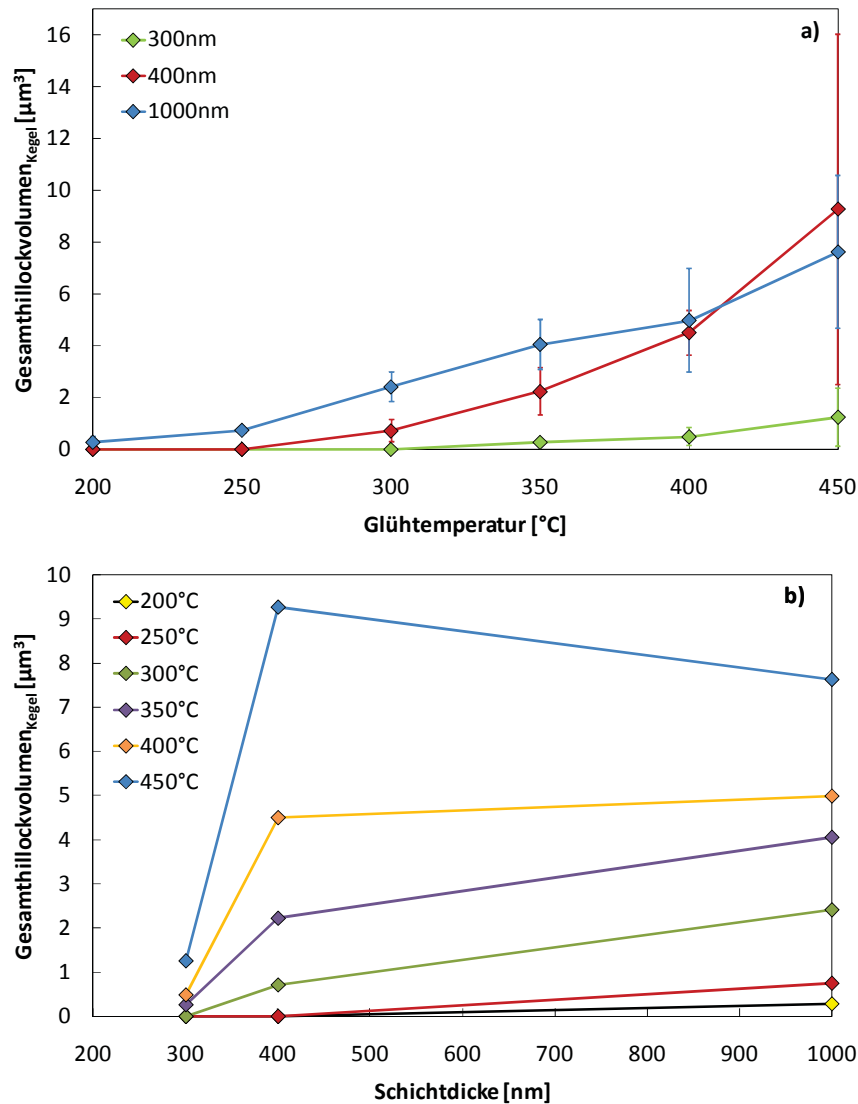


Abb. 30: Gesamtes neu gebildetes Kegelhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Glühtemperatur und b) Schichtdicke. Die Fehlerbalken in a) ergeben sich aus der Standardabweichung des Gesamthillockvolumens der vier untersuchten Bereiche und gelten auch für b).

Betrachtet man das durchschnittliche Volumen eines neu entstandenen Hillocks als Funktion der Glühtemperatur (siehe Abb. 31 a)), lässt sich eine Zunahme für alle Schichtdicken feststellen. Die 400nm Schicht zeigt dabei aber eine deutlich stärkere Abhängigkeit von der Temperatur als die beiden anderen untersuchten Schichtdicken. Bei Glühtemperaturen bis zu 300 $^{\circ}\text{C}$ nimmt das durchschnittliche Hillockvolumen mit steigender Schichtdicke zu (Abb. 31 b)), darüber allerdings zeigt eine 400nm Schicht gegenüber einer 1000nm dicken Schicht ein größeres durchschnittliches Hillockvolumen.

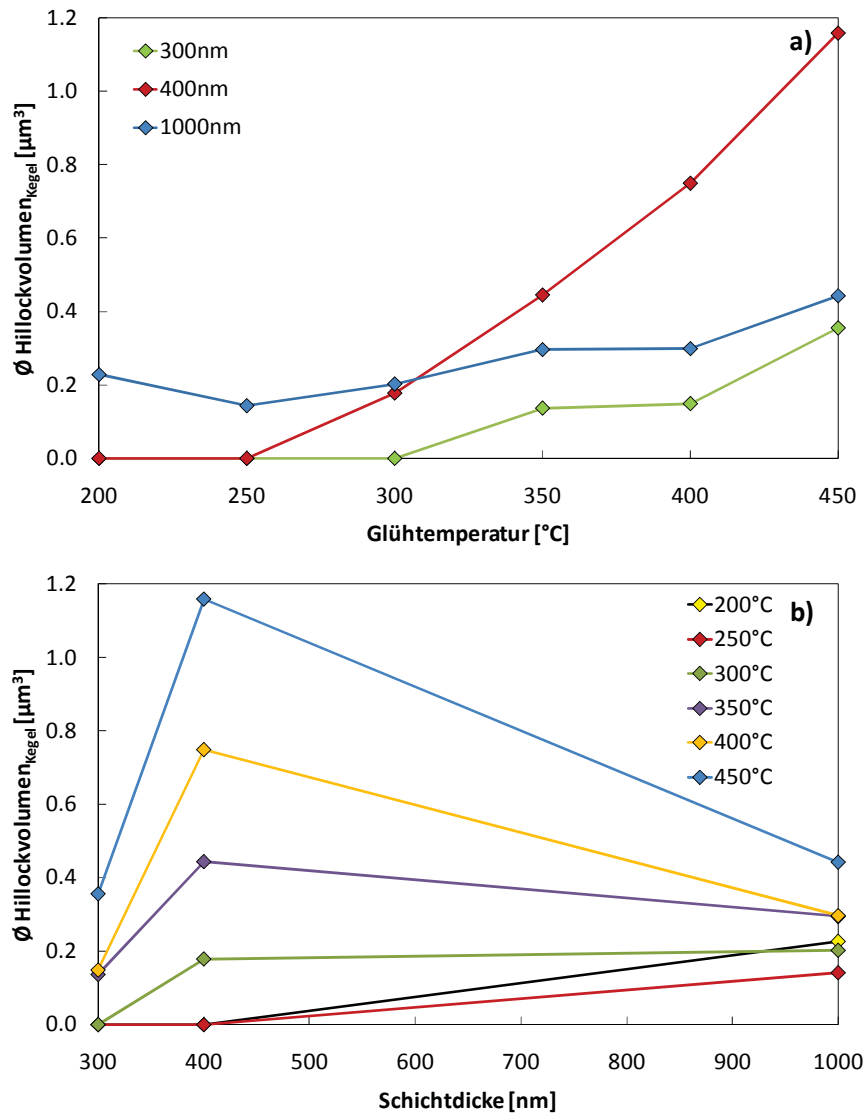


Abb. 31: Durchschnittliches Kegelhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Temperatur und b) Schichtdicke der untersuchten Schichten des Systems A.

Die Verläufe von Gesamt- und Durchschnittshillockvolumen in Abhängigkeit von Glühtemperatur und Schichtdicke unter der Annahme von zylinderförmigen Hillocks sind im Anhang (Kap. 6.2.3) abgebildet. Qualitativ ist zwischen den beiden angenommenen Hillockformen kein Unterschied in den oben gezeigten Verläufen vorhanden. In den weiteren Kapiteln werden deshalb, wenn nicht anders erwähnt, nur die Ergebnisse der als Kegel angenommenen Hillocks gezeigt und diskutiert.

Die Proben des Schichtsystems B zeigen bei keiner Glühtemperatur und Schichtdicke eine Bildung von neuen Hillocks. Wie in Kap. 3.1.2 erwähnt, wurden diese Schichten bereits für Untersuchungen von Dehm [17] und Eipper [21] verwendet und danach unbeobachtet liegen gelassen. Die Schichten haben in dieser Zeit ihre Mikrostruktur offensichtlich derart verändert, dass die Hillockbildung nicht mehr den günstigsten plastischen Verformungsmechanismus zum Abbau der Druckspannungen darstellt. Schon der Verlauf der Thermozyklen (siehe Anhang, Kap. 6.2.2.2) lässt gegenüber den Schichten des Systems A eine Abweichung der Mechanismen zur Druckspannungsrelaxation vermuten. In dieser Arbeit wurden mit den Proben des Schichtsystems B aber keine weiteren Untersuchungen bezüglich Mechanismen zum Abbau von Druckspannungen durchgeführt.

4.3.3 MESSUNG DER DRUCKSPANNUNGSRELAXATION ÜBER DIE SUBSTRATKRÜMMUNG BEI ISOTHERMER GLÜHBEHANDLUNG

Die in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Temperaturbehandlungen der Al-Schichten wurden in der Substratkrümmungsanlage bei gleichzeitiger Spannungsmessung durchgeführt. Dadurch konnte die Relaxation der Druckspannungen in der Schicht in Abhängigkeit der Schichtdicke und Glühtemperatur ermittelt werden. Bei den 300nm und 400nm dicken Schichten ist die Spannungsrelaxation meist so gering, dass sie im thermischen Rauschen (siehe Kap. 3.2.1.1) der Substratkrümmungsdaten schwer zu ermitteln ist. In Abb. 32 ist ein Beispiel für die Spannungsrelaxationsmessung einer 300nm Schicht bei einer Glühtemperatur von 450°C dargestellt. Die rote Kurve stellt den Temperatur-, die blaue den simultan gemessenen Spannungsverlauf dar.

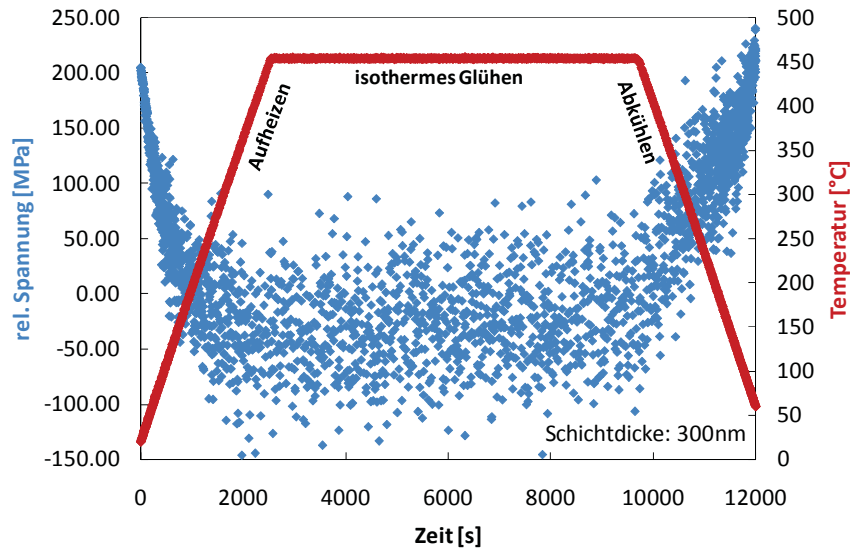


Abb. 32: Druckspannungsrelaxation einer 300nm Schicht während einer zweistündigen isothermen Glühbehandlung bei 450°C; die rote Kurve zeigt den Temperatur-, die blaue den dazugehörigen Spannungsverlauf.

Die Abb. 33 a) und b) zeigen die mittels Substratkrümmungsmethode gemessene Druckspannungsrelaxation einer 1000nm Schicht bei minimaler (200°C) bzw. maximaler (450°C) Glüh Temperatur. Bei einer Glüh Temperatur von 200°C ist eine Spannungsabnahme von etwa 18MPa zu beobachten, wobei es zu einer schnellen Relaxation von ungefähr 12MPa ab Erreichen der Haltetemperatur kommt. Der weitere Abbau der Druckspannungen erfolgt in den restlichen 93% der Glühzeit. Eine solche zeitabhängig unterschiedlich schnelle Spannungsrelaxation wurde auch von Hwang et al. [4] beobachtet. Heizt man eine 1000nm Probe auf 450°C auf (Abb. 33 b)), beginnt die Schicht bereits ab circa 200°C die Druckspannungen abzubauen. Bei Erreichen der Glüh Temperatur ist der Druckspannungsabbau beinahe abgeschlossen, die Schicht relaxiert nur noch wenig bis zu einer Spannungsabnahme von etwa 25MPa. Wiederum wird der Großteil der Spannung in – verglichen mit der gesamten Glühbehandlungsdauer – sehr kurzer Zeit abgebaut.

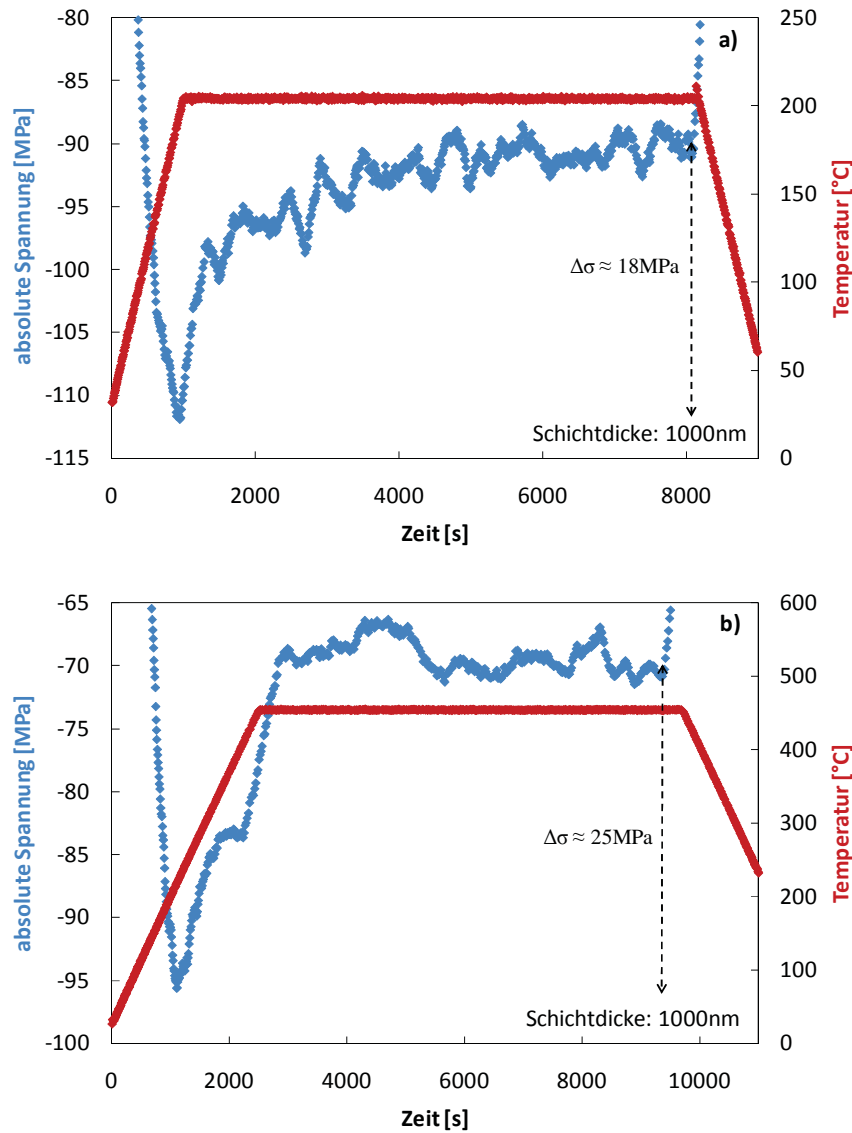


Abb. 33: Temperatur- (rot) und Spannungsverlauf (blau) einer 1000nm Schicht während eines zweistündigen isothermen Glühens bei a) 200°C und b) 450°C.

In Abb. 34 ist die mit Hilfe der Substratkrümmungsmethode gemessene Druckspannungsrelaxation der 1000nm dicken Al-Schicht des Systems A in Abhängigkeit der Temperatur dargestellt. Dabei ist eine nur geringe, annähernd lineare Zunahme der Spannungsrelaxation mit steigender Temperatur erkennbar.

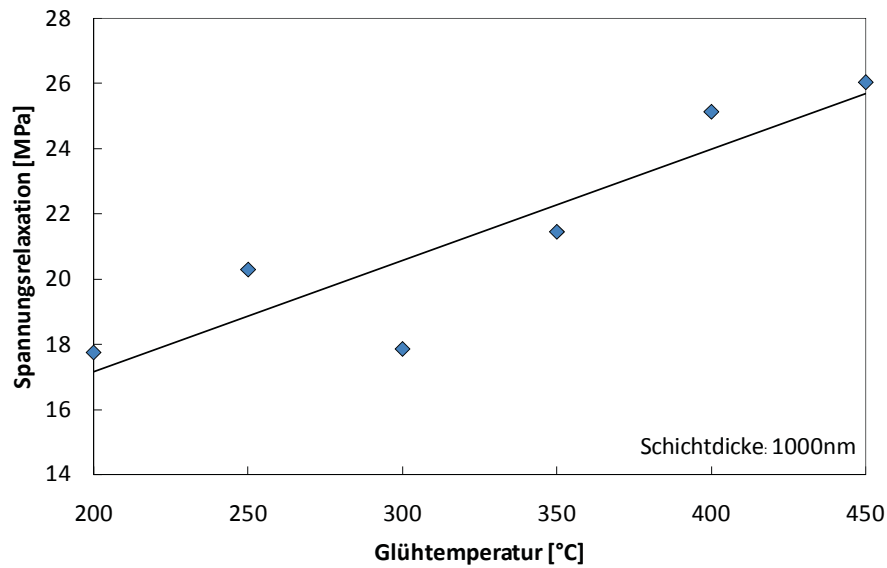


Abb. 34: Abhängigkeit der Druckspannungsrelaxation von der Glühtemperatur beim isothermen Glühen einer 1000nm Schicht.

Die bisher beschriebene Druckspannungsrelaxation entspricht nur der Spannungsabnahme während der Haltetemperatur (siehe Abb. 35 a)). Will man die Druckspannungsrelaxation allerdings mit der plastischen Deformation der dünnen Al-Schichten vergleichen, muss der gesamte Spannungsabbau ausgehend vom rein thermoelastischen Verhalten berücksichtigt werden. Dazu wird der thermoelastische Bereich des Thermozyklus durch eine Gerade angenähert, diese bis zu einer Temperatur von 450°C verlängert und dann die Spannungs­differenz zwischen thermoelastischer Gerade und der gemessenen relaxierten Druckspannung ermittelt. Abbildung 35 b) zeigt die Gesamtdruckspannungsrelaxation für eine 1000nm dicke Al-Schicht bei einer Glüh­temperatur von 450°C.

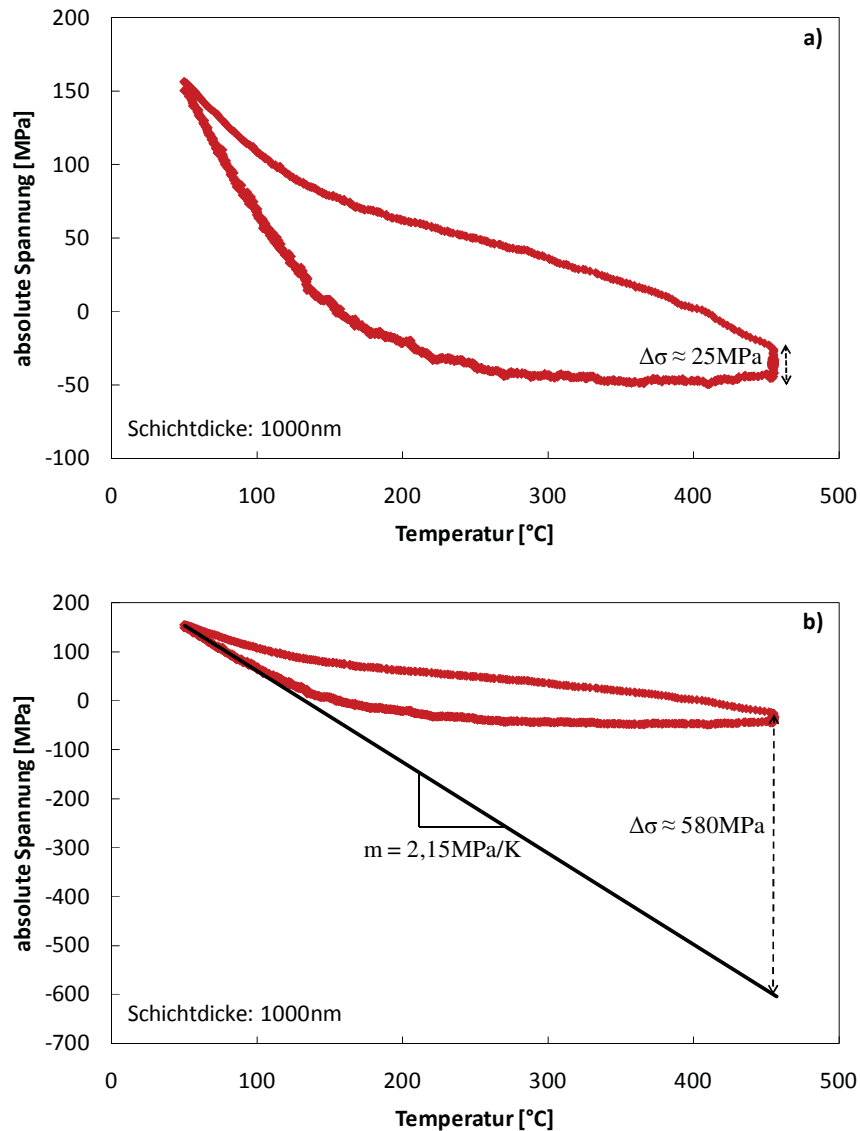


Abb. 35: Druckspannungsrelaxation einer 1000nm Schicht aufgrund einer zweistündigen, isothermen Glühbehandlung bei 450°C; a) mit Hilfe der Substratkrümmungsmethode ermittelter Spannungsabbau, b) Gesamtspannungsrelaxation als Abweichung vom linear thermoelastischem Verhalten.

Über die Messung der Gesamtspannungsrelaxation kann der Spannungsabbau durch plastische Verformung der dünnen Al-Schichten ermittelt werden. Dabei ist, wie in Abb. 36 für die 1000nm Schicht dargestellt, eine starke lineare Abhängigkeit von der Temperatur festzustellen. Das lässt sich dadurch erklären, dass die in der Schicht herrschenden Druckspannungen ab circa 200°C annähernd konstant bleiben und auch die mittels Substratkrümmungsmethode gemessene Druckspannungsrelaxation im Vergleich zur Gesamtrelaxation quasi keine Temperaturabhängigkeit zeigt. Die

Gesamtspannungsrelaxation entspricht also der Differenz zwischen einem ungefähr konstanten Wert und der linear thermoelastischen Gerade.

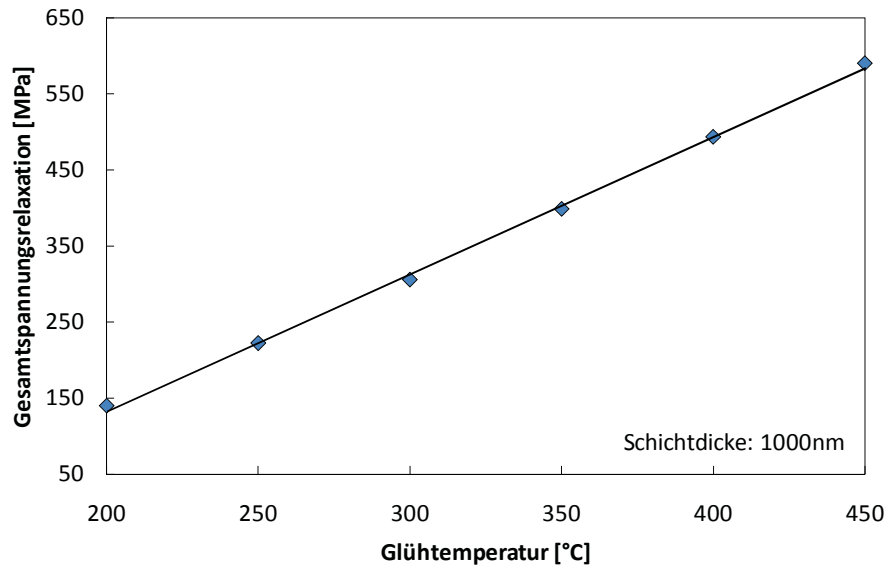


Abb. 36: Gesamtspannungsrelaxation der 1000nm Schicht in Abhängigkeit der Glühtemperatur.

4.3.4 ABSCHÄTZUNG DER DRUCKSPANNUNGSRELAXATION AUFGRUND DES NEUGEBIETEN HILLOCKVOLUMENS

In der Literatur [2, 4] wird ein Zusammenhang zwischen Druckspannungsrelaxation und Hillockwachstum beschrieben. Dieses Kapitel beschäftigt sich deshalb mit der Ermittlung der durch Hillockneubildung bewirkten Spannungsrelaxation.

Der Spannungsabbau $\Delta\sigma$, welcher durch die Bildung neuer Hillocks verursacht wird, kann laut Kim et al. [2] folgendermaßen abgeschätzt werden:

$$\Delta\sigma = \frac{M_f \cdot \Delta V}{2 \cdot t_f \cdot A}, \quad (32)$$

dabei bezeichnet ΔV das neugebildete Hillockvolumen, A die Fläche pro Hillock und M_f und t_f den biaxialen Modulus und die Dicke der Schicht.

Mittels Gleichung (32) wurde für die in Kap. 4.3.1 ermittelten Hillockvolumina die daraus resultierende Druckspannungsabnahme bestimmt. Die Ergebnisse für die einzelnen Schichtdicken in Abhängigkeit der Temperatur sind in Abb. 37 graphisch dargestellt. Dabei ist eine Zunahme der Druckspannungsrelaxation sowohl mit steigender Schichtdicke als auch mit steigender Glüh Temperatur zu beobachten. Die durch Hillockbildung verursachte Spannungsrelaxation der 300nm dicken Al-Schicht bleibt aber selbst bei hohen Temperaturen vernachlässigbar klein. Bei 400nm und vor allem bei 1000nm Schichtdicke steigt die Spannungsabnahme ab Glüh Temperaturen von 350°C verstärkt an.

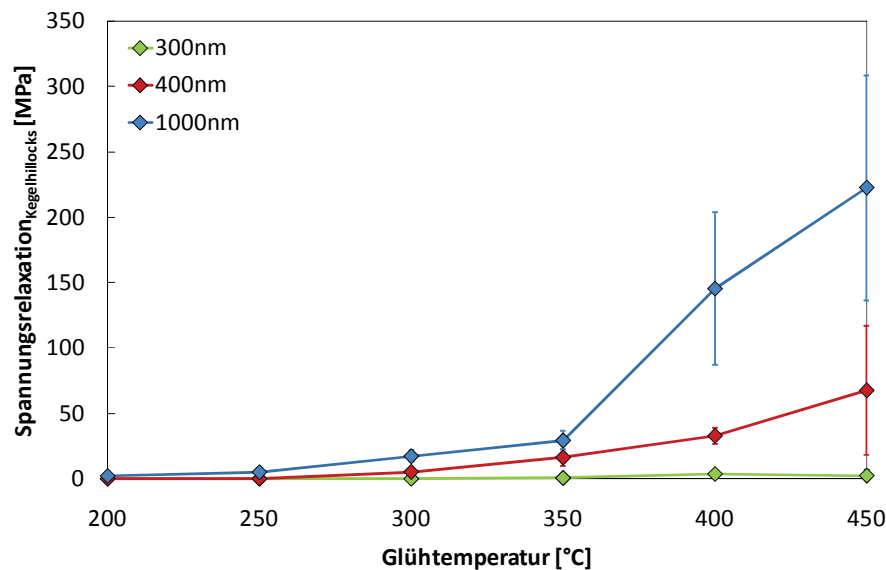


Abb. 37: Durch Hillockneubildung abgeschätzte Druckspannungsrelaxation in Abhängigkeit der Temperatur, die Fehlerbalken ergeben sich aus der Standardabweichung der vier untersuchten Bereiche.

4.3.5 VERGLEICH DER GEMESSENEN UND DURCH HILLOCKBILDUNG ABGESCHÄTZTEN DRUCKSPANNUNGSRELAXATION

Kim et al. [2] beobachten eine übers Hillockvolumen abgeschätzte Spannungsrelaxation, die mit den gemessenen Relaxationsdaten (siehe Abb. 36) vergleichbar ist. Die Hillockbildung wird als der vorherrschende Mechanismus für den Spannungsabbau im Druckspannungsbereich der dünnen Al-Schichten angesehen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit bezüglich der gemessenen Gesamtspannungsrelaxation – als Abweichung von der thermoelastischen Gerade – und dem übers neugebildete Hillockvolumen berechneten Spannungsabbau sind in Abb. 38 für eine 1000nm Schicht graphisch gegenübergestellt. Die durch Hillockneubildung verursachte Spannungsabnahme liegt dabei für beide angenommenen Hillockformen bei deutlich niedrigeren Werten als die gemessene Gesamtdruckspannungsrelaxation. Unter der Annahme von kegel- bzw. zylinderförmigen Hillocks und der Verwendung von Gleichung (32) zur Abschätzung des Spannungsabbaus kann die Hillockbildung für die Schichten des Systems A daher nicht als dominierender plastischer Verformungsmechanismus im Druckspannungsbereich angesehen werden. Der Anstieg der Spannungsrelaxation durch Hillockbildung ab 350°C lässt darauf schließen, dass bei niedrigen Temperaturen (<350°C) ein anderer Relaxationsmechanismus tätig ist, mit zunehmender Temperatur allerdings ein immer größerer Anteil der Druckspannung über Hillockbildung abgebaut wird. Die 300nm und 400nm dicken Schichten des Systems A zeigen ein ähnliches Verhalten, die Ergebnisse dieser Schichtdicken sind im Anhang (Kap. 6.2.4) dargestellt.

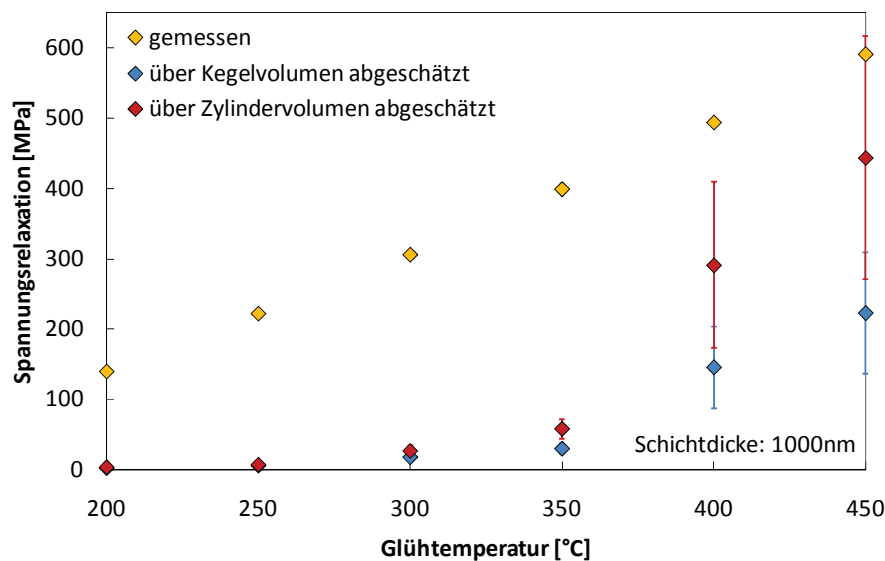


Abb. 38: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen (Kegel bzw. Zylinder) abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 1000nm dicke Al-Schicht.

4.3.6 AKTIVIERUNGSENERGIE ZUR HILLOCKBILDUNG

Der für die Hillockbildung verantwortliche Mechanismus ist, wie bereits eingangs erwähnt, noch nicht vollständig geklärt und in der Literatur viel diskutiert. Verschiedene Modelle basierend auf Korngrenz- [6-9], Grenzflächen- [1], Oberflächendiffusion [10] oder plastischer Deformation [11, 12] versuchen das Hillockwachstum in dünnen Al-Schichten zu erklären.

Um den für die Schichten dieser Arbeit verantwortlichen Mechanismus zu untersuchen, wurde die Aktivierungsenergie der Hillockbildung bestimmt und diese mit Werten aus der Literatur verglichen. Dazu wurden die vorher diskutierten Ergebnisse – also die aus dem neugebildeten Hillockvolumen abgeschätzte Spannungsrelaxation – in einem Arrheniusplot (siehe Abb. 39) aufgetragen und aus der Steigung m schließlich über die Gleichungen (33)-(35) die Aktivierungsenergie Q berechnet.

$$\Delta\sigma = C \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (33)$$

$$\ln \Delta\sigma = \ln C - \frac{Q}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad (34)$$

$$m = -\frac{Q}{R} \quad (35)$$

wobei $\Delta\sigma$ die Spannungsrelaxation durch Hillockbildung, C einen konstanten Faktor, R die Gaskonstante und T die Temperatur bezeichnen.

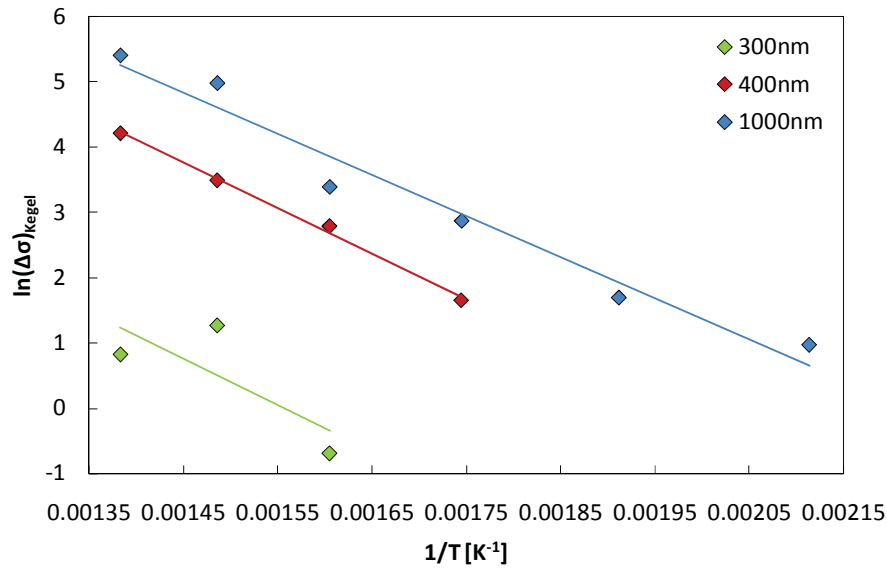


Abb. 39: Arrheniusplot zum Ermitteln der Aktivierungsenergie der Hillockbildung mittels der aus dem neugebildeten Kegelhillockvolumen berechneten Spannungsrelaxation.

Für alle gemessenen Schichtdicken ergibt sich unabhängig von der angenommenen Hillockgestalt eine ähnliche Steigung und somit Aktivierungsenergie, der Fehler bei der 300nm Schicht ist allerdings so groß, dass für diese Schichtdicke keine vernünftige Aussage getroffen werden kann. In Tabelle 3 sind die berechneten Aktivierungsenergien für die zwei unterschiedlichen Annahmen bezüglich Hillockform zusammengefasst.

Tab. 3: Aktivierungsenergien für Hillockwachstum in den untersuchten Schichtdicken unter der Annahme von kegel- bzw. zylinderförmigen Hillocks

Schichtdicke	Aktivierungsenergie [kJ/mol]	
	Kegel	Zylinder
300nm	58.78 ±49.41	55.38 ±51.48
400nm	58.16 ±2.68	60.47 ±2.83
1000nm	52.50 ±5.03	58.43 ±5.29

Ein Vergleich mit Literaturdaten (siehe Tab. 4) zeigt, dass die Aktivierungsenergie für Hillockbildung in den Schichten des Systems A jener für Korngrenzdiffusion entspricht.

Tab. 4: Literaturwerte für Aktivierungsenergien verschiedener Diffusionsarten (Selbstdiffusion) in Aluminium

Diffusionsart	Temperaturbereich [°C]	Aktivierungsenergie [kJ/mol]	Literatur
Volumendiffusion	85-209	126.4	[32]
Volumendiffusion	240-550	120.4	[32]
Korngrenzdifffusion	-	60.3	[33]
Korngrenzdifffusion	-	53.1	[34]

4.4 FIB QUERSCHNITTSPRÄPARATION

Zum Untersuchen der Hillockmikrostruktur wurden Querschnittspräparationen an den 1000nm Schichten sowohl vom Schichtsystem A als auch vom System B mittels FIB (LEO 1540XB) hergestellt. Dazu wurden die Proben in flüssigem Stickstoff gebrochen und anschließend an den Bruchstellen Querschnitte mit 30kV Beschleunigungsspannung und einer 2nA-Blende präpariert. Um die Kornstruktur sichtbar zu machen, wurden die präparierten Stellen schließlich mit Ionen bei 30kV und 50pA abgebildet. Die Abb. 40-42 zeigen ausgewählte Bilder dieser Untersuchungen. Ein Vergleich der 1000nm Schichten (Abb. 40, 41) bezüglich ihrer Kornstruktur lässt kolumnare Körner bei beiden Schichtsystemen erkennen, die sich in ihrer Korngröße jedoch wesentlich unterscheiden. Die Körner im Schichtsystem B (Abb. 41) entsprechen in ihrer Größe in etwa der doppelten Schichtdicke, das Schichtsystem A (Abb. 40) dagegen zeigt bedeutend kleinere Korngrößen.



Abb. 40: FIB-Schnitte zum Sichtbarmachen der Kornstruktur in einer 1000nm Schicht des Systems A

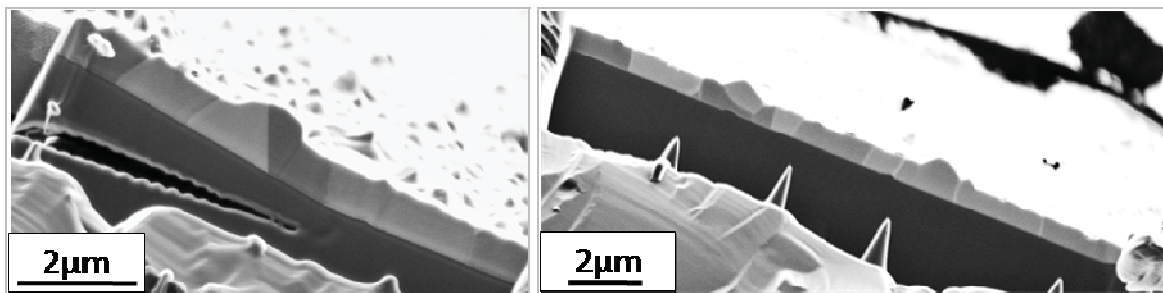


Abb. 41: FIB-Schnitte zum Sichtbarmachen der Kornstruktur in einer 1000nm Schicht des Systems B

Um auch die Kornstruktur der Hillocks in der 1000nm Schicht des Systems A zu charakterisieren, wurden gezielt Querschnittspräparationen von Hillocks angefertigt. Die Abb. 42 a)-f) zeigen exemplarisch unterschiedliche Formen und Strukturen, wie sie bei dieser Untersuchung gefunden wurden. Allen gemein ist die erheblich größere Korngröße

in und zum Teil auch in der Nähe eines Hillocks gegenüber der restlichen Schicht, die untersuchten Hillocks bestehen größtenteils aus nur einem Korn bzw. aus Zwillingen (Abb. 42 a), b)). Des Weiteren werden nahe (Abb. 42 d), f)) und teilweise auch unterhalb von Hillocks (Abb. 42 c)) immer wieder Löcher (siehe weiße Pfeile) beobachtet.

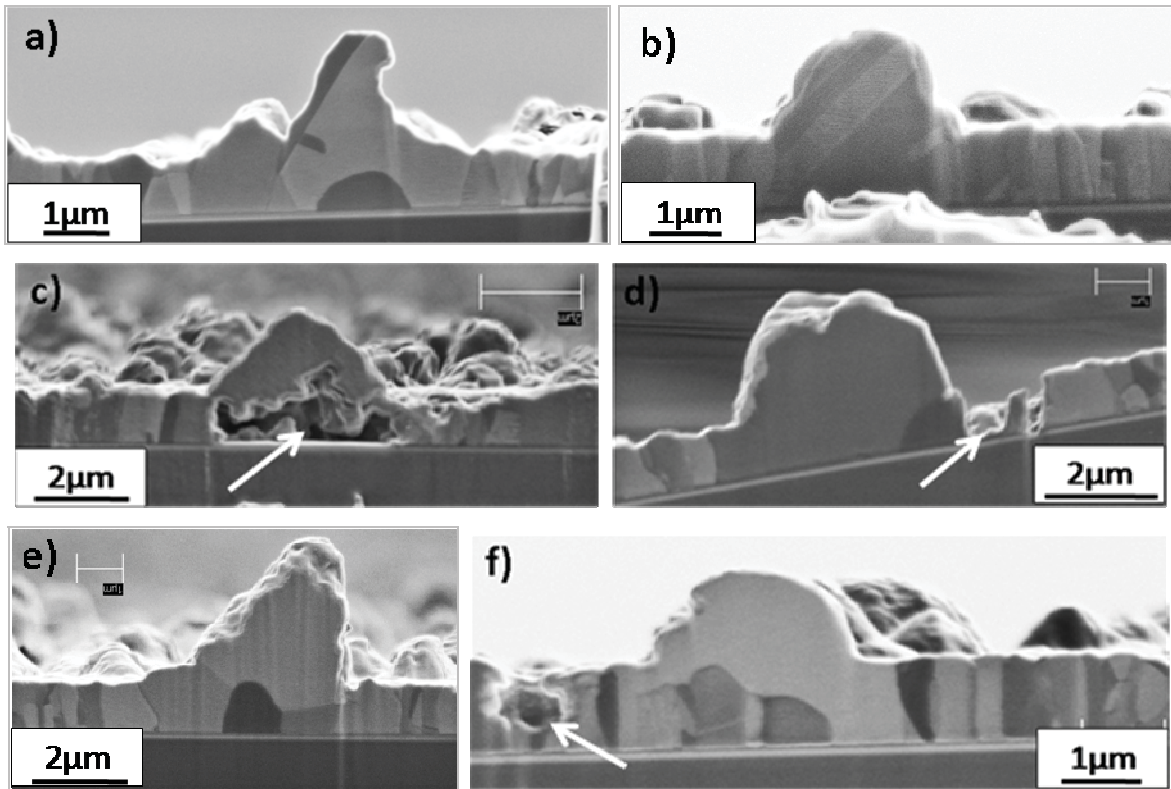


Abb. 42: Mittels FIB präparierte Hillockquerschnitte einer 1000µm Schicht des Schichtsystems A; a)-f) zeigen verschiedene mögliche Formen und Kornstrukturen bei Hillocks. Die weißen Pfeile markieren Löcher bzw. Poren.

Die mittels FIB präparierten Hillocks zeigen eine große Vielfalt bezüglich ihrer Form, eine einheitliche Hillockgestalt, wie sie in dieser Arbeit angenommen wurde, kann deshalb nicht bestätigt werden. Die für die Berechnungen dieser Arbeit verwendeten Hillockvolumina – Kegel bzw. Zylinder – beschreiben aber die Extrema der beobachteten Hillockformen und können somit als Grenzen der jeweiligen Berechnungen angesehen werden.

4.5 WIDERSTANDSMESSUNG MITTELS VAN-DER-PAUW-METHODE

Al-Schichten werden in der Halbleiterindustrie aufgrund ihrer hervorragenden elektrischen Eigenschaften als Leiterbahnmaterial eingesetzt. Die Änderung der elektrischen Leitfähigkeit bzw. des elektrischen Widerstandes dieser Schichten aufgrund mikrostruktureller Veränderungen (Leerstellenannihilation, Hillockbildung, Kornwachstum,...) ist also von besonderem Interesse. Mittels Van-der-Pauw-Methode (Kap. 3.3) sollte deshalb der Flächenwiderstand in Abhängigkeit unterschiedlicher Glühbehandlungen und den damit zusammenhängenden Mikrostrukturveränderungen (v.a. Hillockbildung) ermittelt werden.

Wie in Kap. 4.3.1 beschrieben wurden die Proben des Schichtsystems A mittels Ritzen markiert. Eine Widerstandsmessung mit Hilfe der Van-der-Pauw-Methode kann an diesen Schichten aufgrund der Forderung nach homogener Schichtdicke und einer verbundenen Probenoberfläche (siehe Kap. 3.3) nicht mehr durchgeführt werden. An diesen Proben durchgeführte Messungen zeigen keine reproduzierbaren Ergebnisse!

Die Schichten des Systems B wurden jeweils vor und nach einer zweistündigen Glühbehandlung bei 450°C bezüglich ihres Widerstandes vermessen. Die dabei erhaltenen Ergebnisse für den Flächen- bzw. spezifischen Widerstand sind in Abb. 43 zusammengefasst.

Bei den drei untersuchten Schichtdicken ist keine erwähnenswerte Veränderung bezüglich ihrer elektrischen Eigenschaften erkennbar. Wie auch schon in den vorhergehenden Kapiteln diskutiert, zeigen diese Schichten keine oberflächlichen mikrostrukturellen Veränderungen (z.B. Hillocking) bei isothermen Glühbehandlungen. Da die Proben auch für frühere Untersuchungen [17, 21] verwendet wurden, kann davon ausgegangen werden, dass etwaige Gefügeänderungen wie Leerstellenannihilation oder Kornwachstum bereits abgeschlossen sind. Eine Veränderung des elektrischen Widerstandes in Folge einer Glühbehandlung wäre deshalb unerwartet. Der spezifische Widerstand ist für die gemessenen Schichten unterschiedlicher Schichtdicke sehr ähnlich. Ein Vergleich mit Literaturdaten (siehe Tab. 5) zeigt einen erhöhten spezifischen Widerstand für die in dieser Arbeit untersuchten Schichten gegenüber jenem für Massivaluminium. Dieser Unterschied des spezifischen Widerstandes ist auf die kleineren Korngrößen, die höhere

Leerstellenkonzentration, mögliche Verunreinigungen durchs Si-Substrat usw. in den Al-Schichten zurückzuführen. Die Van-der-Pauw-Methode stellt also ein solides Werkzeug zur qualitativen und auch quantitativen Widerstandsmessung in dünnen Aluminiumschichten dar.

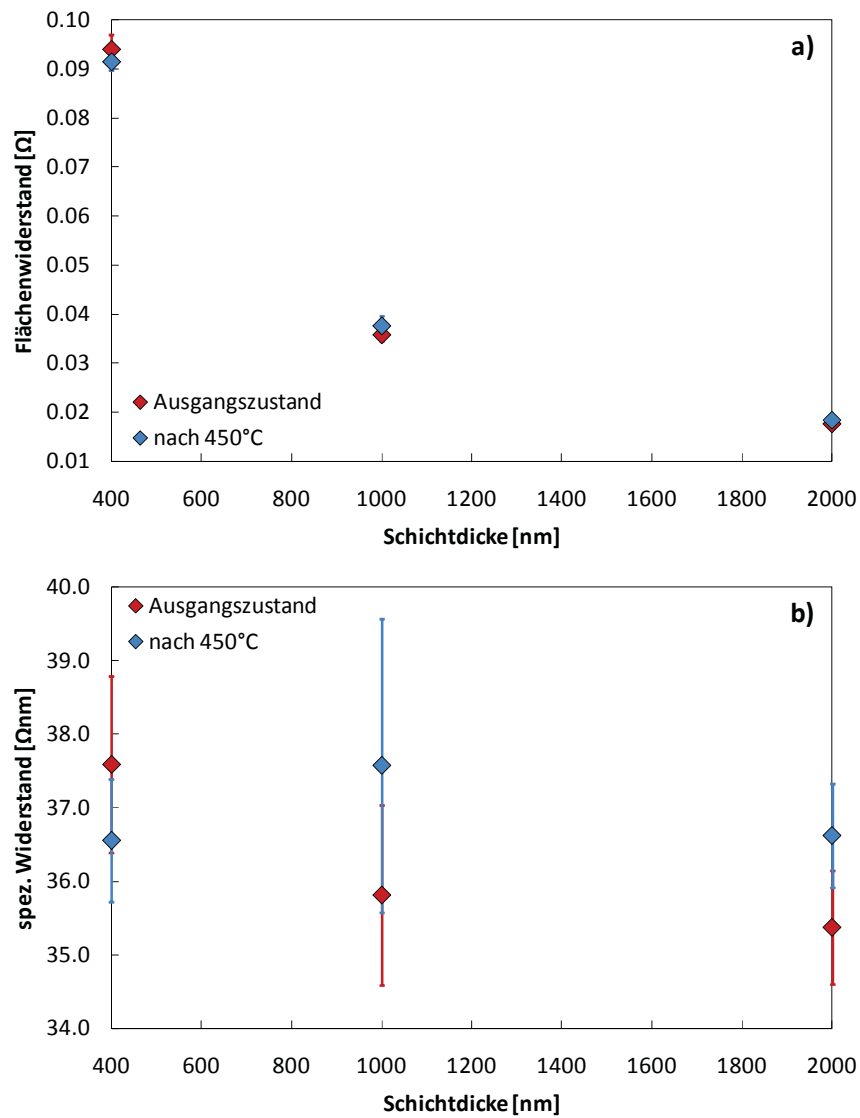


Abb. 43: Änderung der elektrischen Eigenschaften der Schichten des Systems B nach zweistündigem isothermen Glühen bei 450°C; a) Flächenwiderstand, b) spezifischer Widerstand.

Tab. 5: Vergleich des spezifischen Widerstandes von Massivaluminium aus Literaturdaten [35] mit jenem – mittels Van-der-Pauw-Methode bestimmten – der Al-Schichten des Systems B.

	spezifischer Widerstand bei RT [Ωnm]
Massivaluminium [35]	28
Al-Schichten (gemessen)	37

5. DISKUSSION

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen bezüglich Hillockwachstum zeigen einen Anstieg des neugebildeten Hillockvolumens sowohl in Abhängigkeit der Schichtdicke als auch der Glüh­temperatur. Eine lineare Abhängigkeit und eine daraus resultierende kritische Temperatur und kritische Schichtdicke, wie von Hwang et al. [12] beobachtet, konnte jedoch nicht gefunden werden. Das von dieser Gruppe vorgeschlagene Modell [11], wonach die plastische Verformung der Umgebung die Hillockbildung bestimmt, stellt somit keine geeignete Beschreibung für die Entstehung von Hillocks in den Schichten des Systems A dar.

Die teilweise großen Unterschiede des entstandenen Hillockvolumens in den einzelnen Bereichen (siehe Fehlerbalken Abb. 30) lassen auf ein gebietsweise sehr unterschiedliches Hillockwachstumsverhalten schließen. Lokale Spannungsunterschiede aufgrund von Mikrostrukturungleichheiten in der Schicht, wie sie auch von Chaudhari [1] beschrieben werden, bevorzugen die Hillockbildung an bestimmten Stellen. Dadurch kann das hier beobachtete, unregelmäßige Auftreten neuer Hillocks in einer Schicht erklärt werden.

Chang und Vook [10] stellen bei ihren Schichten ein Schwinden des Hillockvolumens bei kleinen Hillocks fest und schließen deshalb auf oberflächendifusionsgesteuerte Prozesse. Bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Schichten konnte kein Schrumpfen von existenten Hillocks, sondern nur Entstehen neuer und Wachsen bereits vorhandener Hillocks (Schichtsystem A) bzw. im Fall der Schichten des Systems B überhaupt keine Veränderung der Hillocks nachgewiesen werden. Auch dieses Modell kann also nicht für die Beschreibung des Hillockwachstums im System A herangezogen werden.

Die durchschnittliche Größe eines neugebildeten Hillocks übersteigt in den Schichten des Systems A üblicherweise sowohl die laterale Korngröße als auch die Schichtdicke. Eine, wie von Ericson et al. [6] beobachtete, bevorzugte Hillockbildung an Korngrenztripelpunkten ist somit in den untersuchten Aluminiumschichten ex-situ nicht feststellbar. Dennoch werden die hier gefundenen Daten sowohl durch das Modell von Ericson [6] als auch durch die Modelle von Gerth [7], Iwamura [8] und Kim [9], die Korngrenzdif­fusion als den zentralen Transportmechanismus bei der Hillockbildung

ansehen, beschrieben: Die in dieser Arbeit ermittelte Aktivierungsenergie für Hillockbildung entspricht jener von Korngrenzdiffusion in Aluminium.

Verschiedene Gruppen beobachten oft ein sehr unterschiedliches Verhalten von Aluminiumschichten in Bezug auf Hillockbildung [1, 6-12], als einzige gemeinsame Grundlage für das Entstehen von Hillocks wird die Notwendigkeit von in der Schicht herrschenden Druckspannungen genannt. Das Phänomen der Hillockbildung wird also anscheinend sehr stark von der Mikrostruktur der Schichten beeinflusst. Da die Mikrostruktur der Al-Schichten vor allem von den Parametern der Schichtherstellung abhängt, ist der Vergleich von Ergebnissen unterschiedlicher Schichtherstellungsprozesse sehr schwierig. Auch die Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht, welche eine weitere Möglichkeit für Diffusionsprozesse bietet, darf in den Betrachtungen nicht außer Acht gelassen werden.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen für die untersuchten Schichten des Systems A eine Aktivierungsenergie für Hillockbildung, die jener für Korngrenzdiffusion entspricht. Der dominierende Mechanismus der Hillockbildung scheint hier also Korngrenzdiffusion zu sein. Aus den Resultaten ist des Weiteren erkennbar, dass für den Abbau der Druckspannungen nicht nur das Entstehen neuer Hillocks verantwortlich sein kann. Erst bei höheren Temperaturen liefert das Hillockwachstum einen beachtlichen Beitrag zur Druckspannungsrelaxation. Vor allem bei tiefen Temperaturen muss jedoch ein weiterer Mechanismus (z.B. Versetzungsplastizität) zum Abbau der Druckspannungen aktiv sein, der mit steigender Temperatur seinen Einfluss verliert.

6. ANHANG

6.1 AUSGEWÄHLTE BILDER

6.1.1 AUSGANGSZUSTAND SCHICHTSYSTEM A

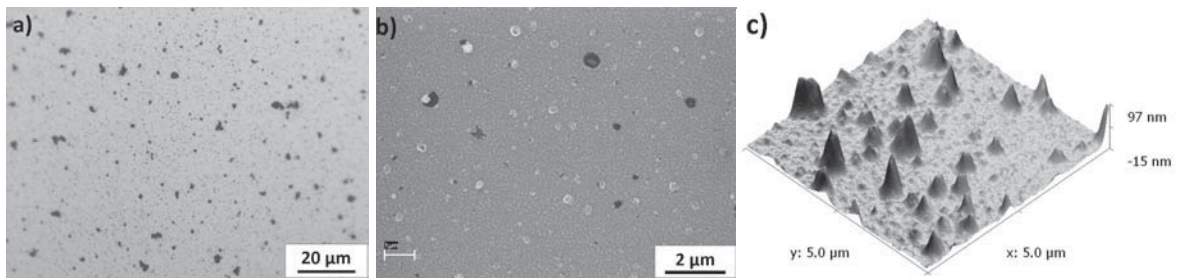


Abb. 44: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 50nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

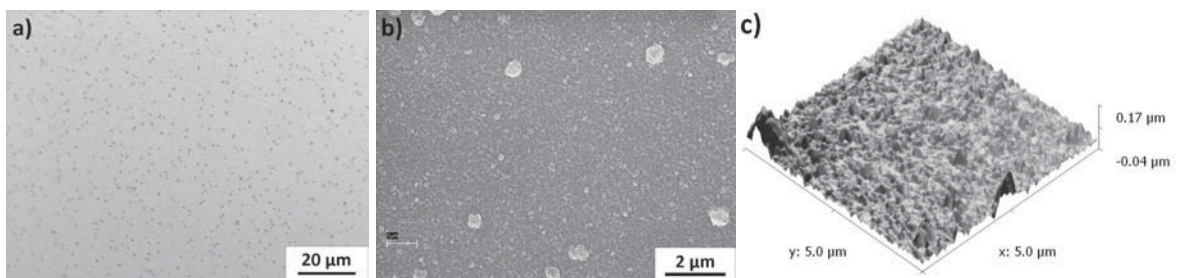


Abb. 45: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 100nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

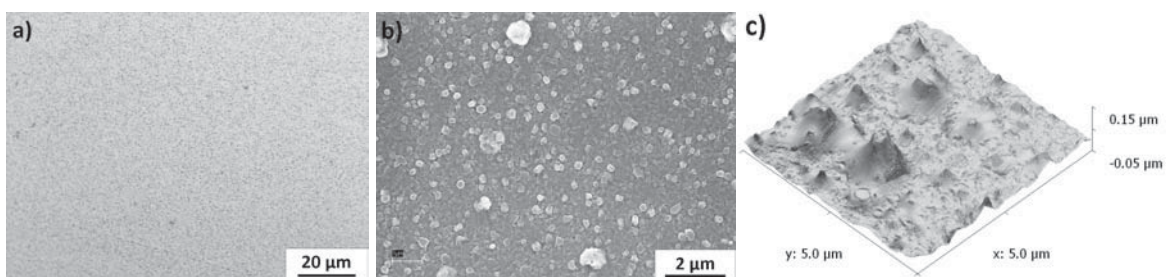


Abb. 46: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 150nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.

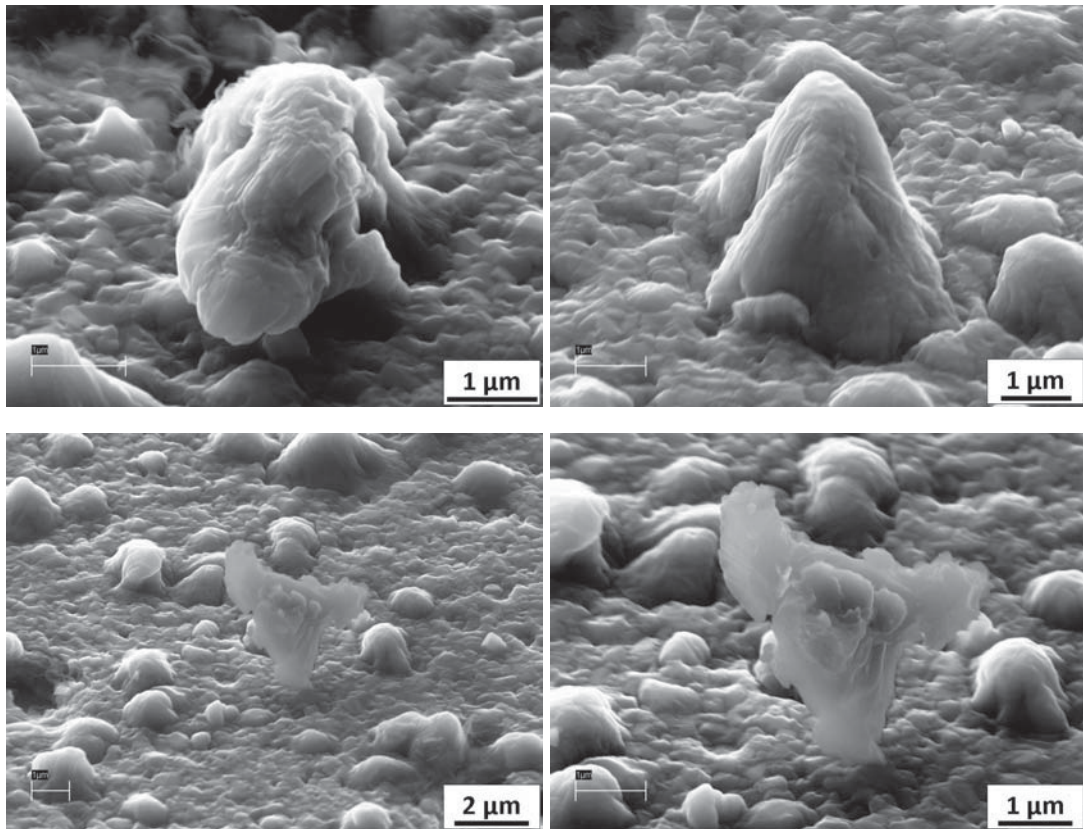
6.1.2 HILLOCKS

Abb. 47: REM-Aufnahmen verschiedener Hillocks einer 1000nm Schicht vom System A.

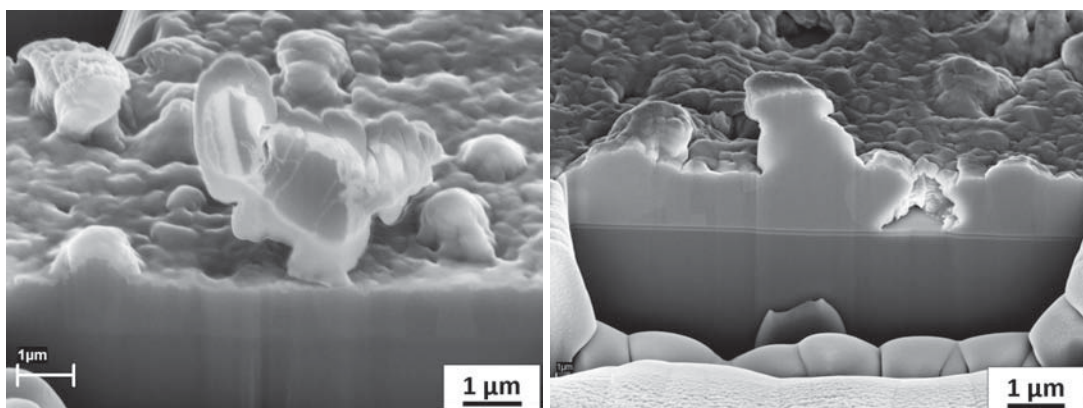


Abb. 48: REM-Bilder von FIB-Querschnittspräparationen an Hillocks einer 1000nm Schicht des Systems A.

6.2 AUSGEWÄHLTE DIAGRAMME

6.2.1 $\text{SIN}^2(\Psi)$ -PLOTS

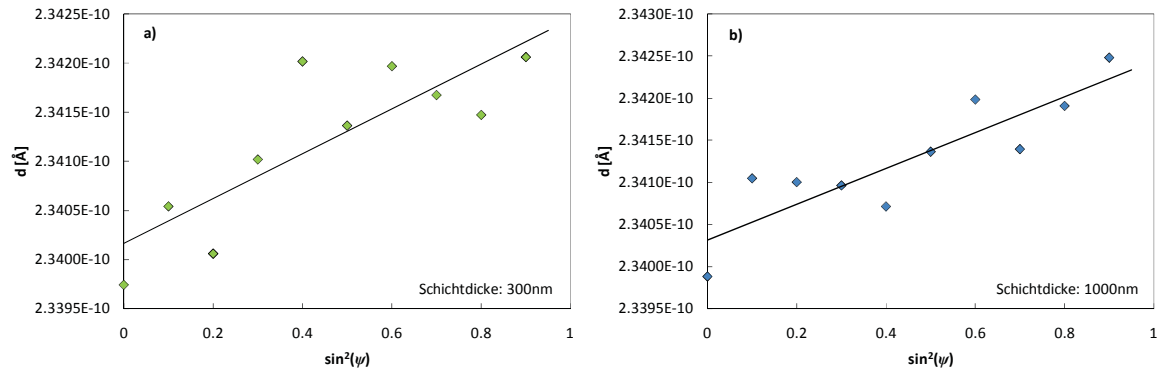


Abb. 49: $\text{sin}^2(\psi)$ -Plots zur Ermittlung der absoluten Schichtspannungen bei RT von einer a) 300nm und b) 1000nm dicken Al-Schicht des Systems A.

6.2.2 THERMOZYKLEN

6.2.2.1 SCHICHTSYSTEM A

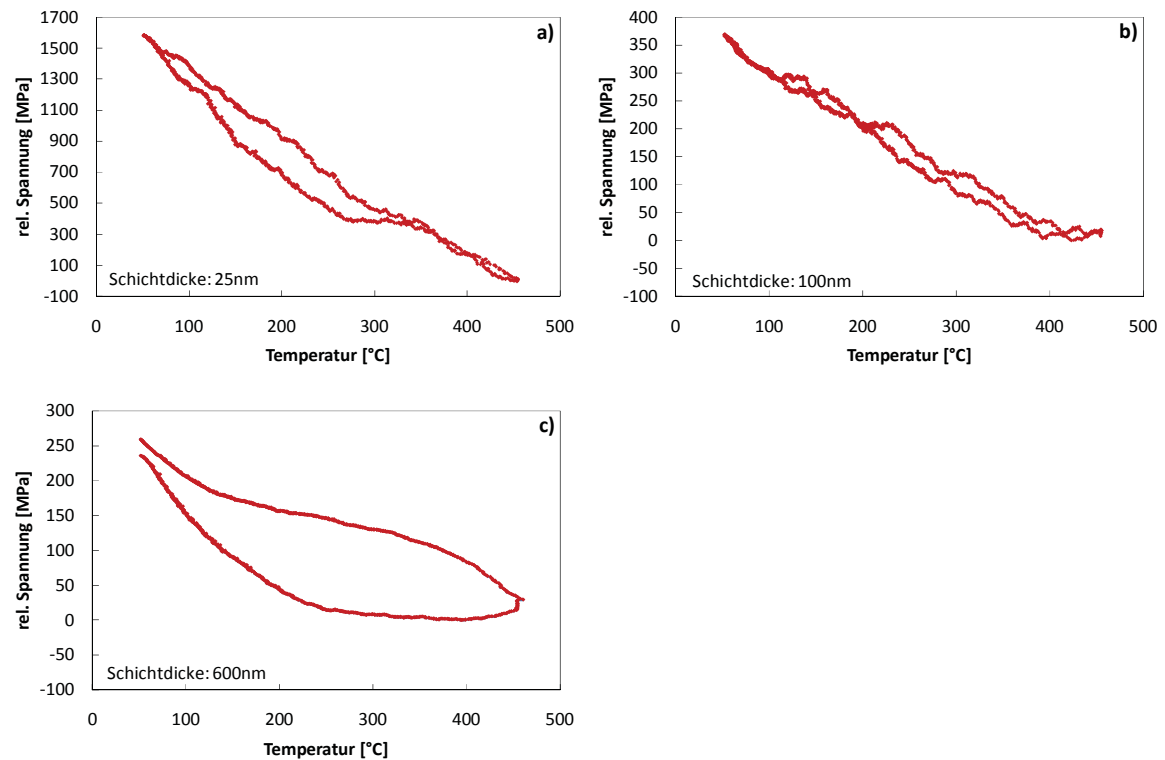


Abb. 50: Thermozyklen des Schichtsystems A für unterschiedliche Schichtdicken, a) 25nm, b) 100nm, c) 600nm.

6.2.2.2 SCHICHTSYSTEM B

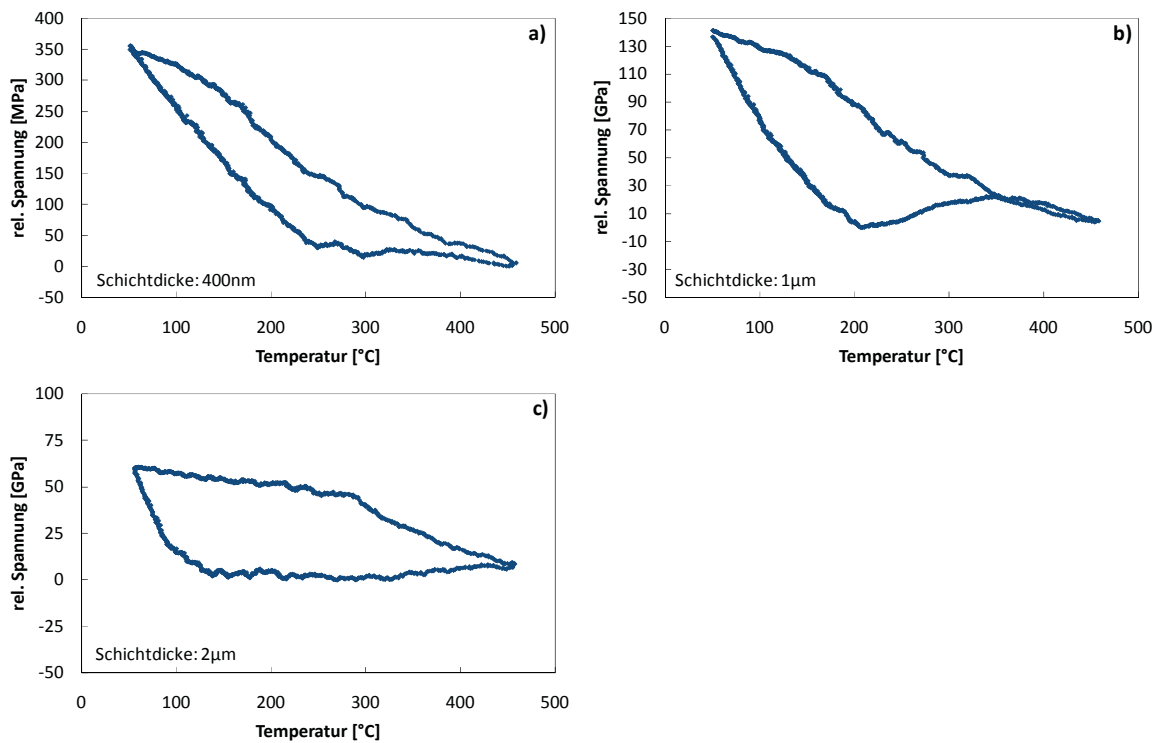


Abb. 51: Thermozyklen des Schichtsystems B für unterschiedliche Schichtdicken, a) 400nm, b) 1µm, c) 2µm.

6.2.3 ERGEBNISSE FÜR ZYLINDERFÖRMIGE HILLOCKS

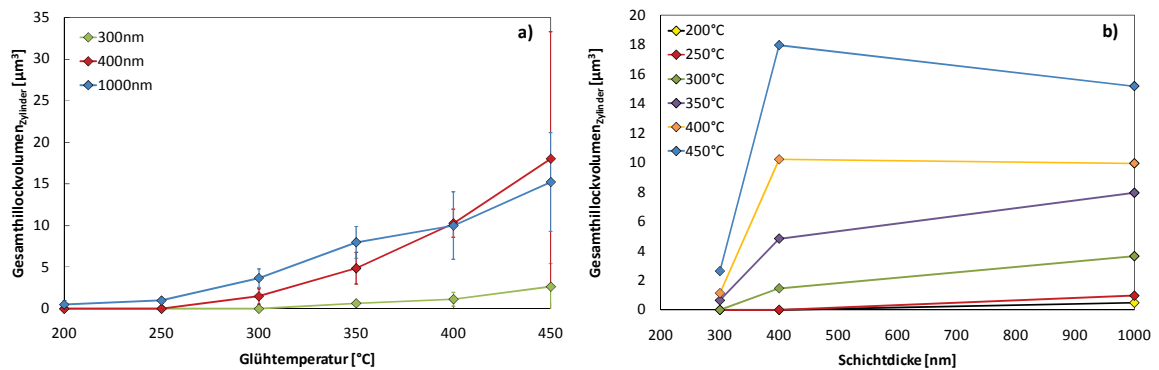


Abb. 52: Gesamtes neu gebildetes Zylinderhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Glühtemperatur und b) Schichtdicke für die Proben des Schichtsystems A.

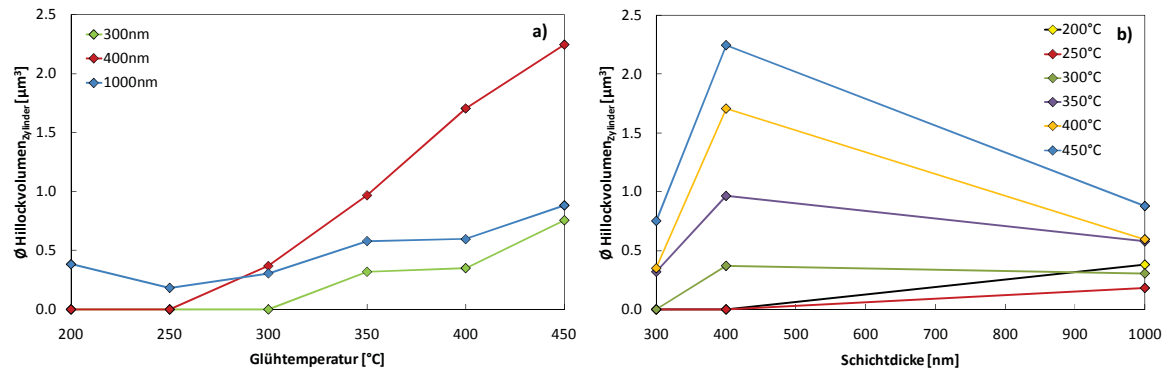


Abb. 53: Durchschnittliches Zylinderhillockvolumen in Abhängigkeit a) der Temperatur und b) der Schichtdicke für die Proben des Schichtsystems A.

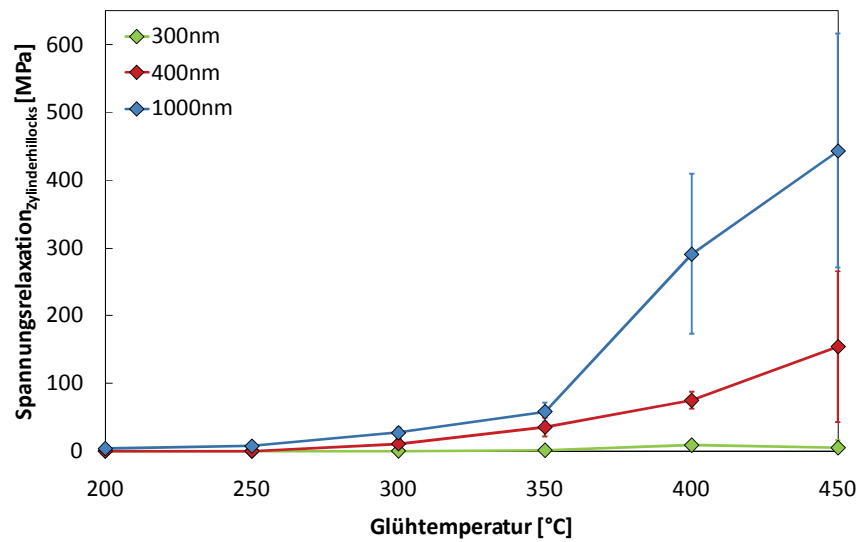


Abb. 54: Durch Hillockneubildung (Annahme zylinderförmige Hillocks) abgeschätzte Druckspannungsrelaxation in Abhängigkeit der Temperatur für die Proben des Schichtsystems A.

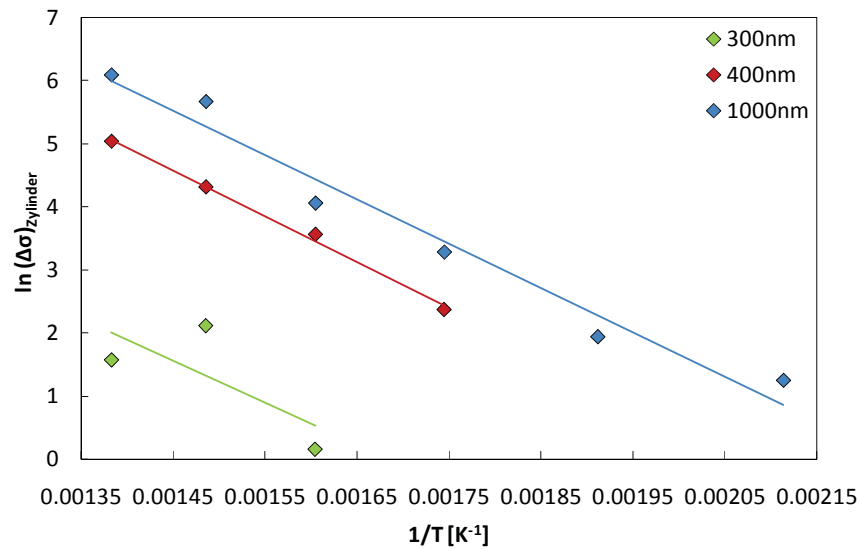


Abb. 55: Arrheniusplot zum Ermitteln der Aktivierungsenergie der Hillockbildung mittels der aus dem Zylinderhillockvolumen berechneten Spannungsrelaxation für die Proben des Schichtsystems A.

6.2.4 ERGEBNISSE FÜR 300NM UND 400NM SCHICHTEN

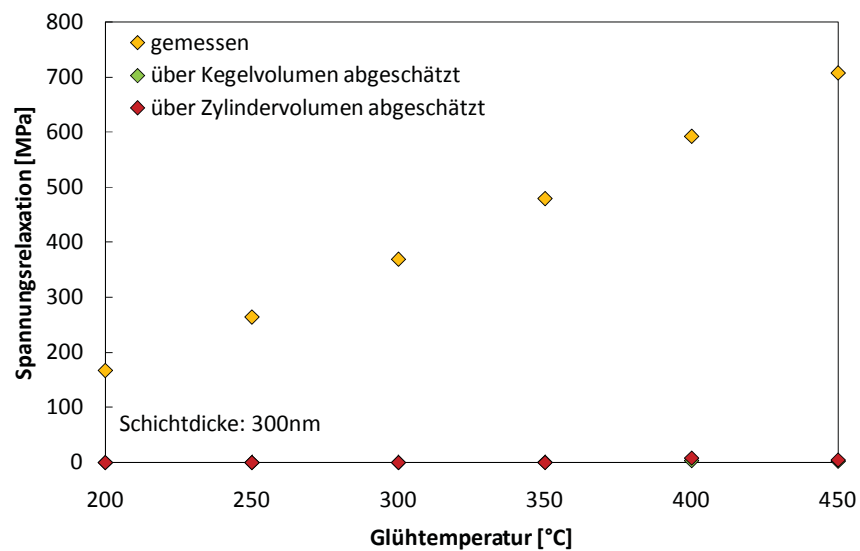


Abb. 56: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 300nm dicke Al-Schicht des Systems A.

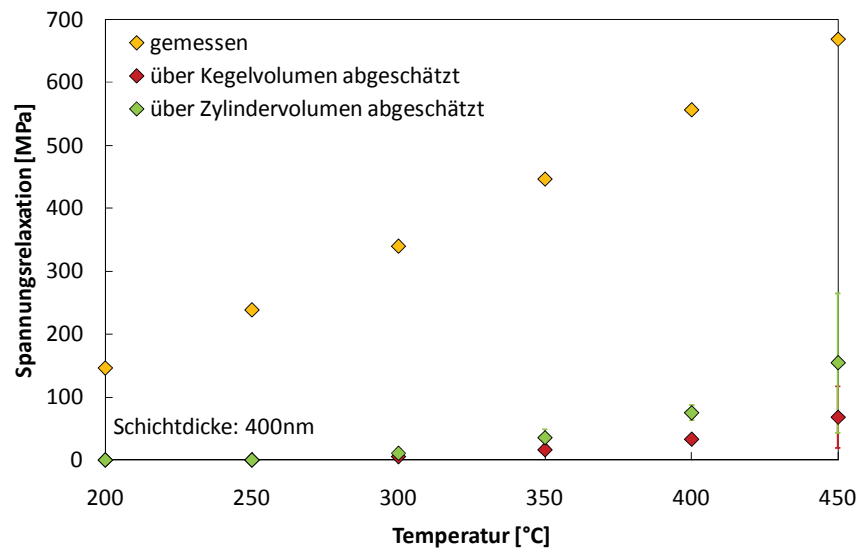
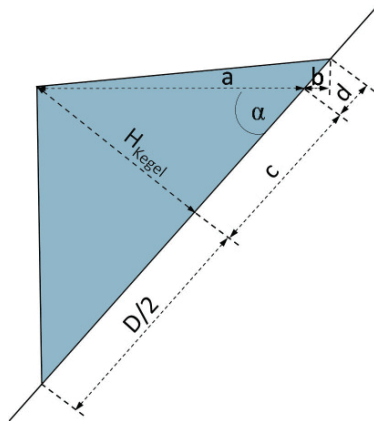


Abb. 57: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 400nm dicke Al-Schicht des Systems A.

6.3 BERECHNUNG DES HILLOCKVOLUMENS

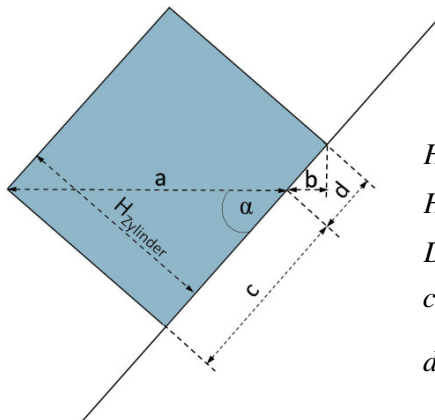
6.3.1 KEGELHILLOCKVOLUMEN



$$\left. \begin{aligned} H_{\text{gemessen}} &= a + b \\ H_{\text{Kegel}} &= a \cdot \sin(\alpha) \\ c &= a \cdot \cos(\alpha) \\ d &= \frac{D}{2} - c \\ d &= \frac{b}{\cos(\alpha)} \end{aligned} \right\} \begin{aligned} a &= -\frac{D - 2 \cdot H_{\text{gemessen}} \cdot \sec(\alpha)}{2 \cdot (-\cos(\alpha) + \sec(\alpha))} \\ b &= -\frac{D - 2 \cdot H_{\text{gemessen}} \cdot \cos(\alpha)}{2 \cdot (\cos(\alpha) - \sec(\alpha))} \end{aligned}$$

$$V_{\text{Kegel}} = \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{D}{2}\right)^2 \cdot \pi \cdot H_{\text{Kegel}} \quad (36)$$

6.3.2 ZYLINDERHILLOCKVOLUMEN



$$\left. \begin{aligned} H_{\text{gemessen}} &= a + b \\ H_{\text{Zylinder}} &= a \cdot \sin(\alpha) \\ D &= c + d \\ c &= a \cdot \cos(\alpha) \\ d &= \frac{b}{\cos(\alpha)} \end{aligned} \right\} \begin{aligned} a &= -\frac{-D + H_{\text{gemessen}} \cdot \sec(\alpha)}{\cos(\alpha) - \sec(\alpha)} \\ b &= -\frac{D - H_{\text{gemessen}} \cdot \cos(\alpha)}{\cos(\alpha) - \sec(\alpha)} \end{aligned}$$

$$V_{\text{Zylinder}} = \left(\frac{D}{2}\right)^2 \cdot \pi \cdot H_{\text{Zylinder}} \quad (37)$$

6.4 SOURCE-CODE ZUM ERKENNEN NEUER HILLOCKS*

Darstellen von neugebildeten Hillocks

Filenamen eingeben

```
Bild1 = Import["C:\\1000_3_6.Zyklus_3_2500x_06.tif"]
Bild2 = Import["C:\\1000_3_450°C_3_2500x_26.tif"]
```

Ausgabe eines Histogramms

```
histoGrammBild1 = Table[0, {i, 0, 256}];
histoGrammBild2 = Table[0, {i, 0, 256}];

For[zeile = 1, zeile ≤ Length[Bild1][[1, 1]], zeile++,
  For[spalte = 1, spalte ≤ Length[Bild1][[1, 1]], spalte++,

    histoGrammBild1[[Bild1[[1, 1, zeile, spalte]]]] = histoGrammBild1[[Bild1[[1, 1, zeile, spalte]]]] + 1;
    histoGrammBild2[[Bild2[[1, 1, zeile, spalte]]]] = histoGrammBild2[[Bild2[[1, 1, zeile, spalte]]]] + 1;
  ];
];

Block[{$DisplayFunction = Identity},
  g1 = ListPlot[histoGrammBild1, PlotStyle → {PointSize[0.01], RGBColor[1, 0, 0]}, Frame → True,
    PlotRange → {{0, 255}, {0, Max[histoGrammBild2] * 1.1}}];
  g2 = ListPlot[histoGrammBild2, PlotStyle → PointSize[0.01]];
]

Show[g1, g2]
```

Setzen der Grenzen und Übereinanderlegen der Bilder

```
untereGrenzeBild1 = 90;
obereGrenzeBild1 = 210;

versatzZeile = -1;
versatzSpalte = -7;

drehWinkel = 0.12;

untereGrenzeBild2 = 85;
obereGrenzeBild2 = 210;

auswerteBild = Import["C:\\Users\\Ines\\Documents\\Diplomarbeit\\Mathematica\\Templates\\Auswertebild2.tif"];

For[zeile = 1, zeile ≤ Length[Bild1][[1, 1]] - 1, zeile++
  For[spalte = 1, spalte ≤ Length[Bild1][[1, 1]], spalte++,
    auswerteBild[[1, 1, zeile + 100, spalte + 100, 1]] = If[Bild1[[1, 1, zeile, spalte]] ≥ untereGrenzeBild1,
      If[Bild1[[1, 1, zeile, spalte]] ≥ obereGrenzeBild1, 256, 1], 1];

    abstand = (zeile^2 + spalte^2)^0.5;
    winkel = ArcTan[zeile / spalte] + drehWinkel / 180 * Pi;

    auswerteBild[[1, 1, IntegerPart[abstand * Sin[winkel] + versatzZeile + 100],
      IntegerPart[abstand * Cos[winkel] + versatzSpalte + 100], 2]] = If[Bild2[[1, 1, zeile, spalte]] ≥ untereGrenzeBild2,
      If[Bild2[[1, 1, zeile, spalte]] ≥ obereGrenzeBild2, 256, 1], 1];
  ];
];

auswerteBild

Filename = "1000_3_450_3";
g1 = Bild1;
g2 = auswerteBild;
g3 = Bild2;

g4 = GraphicsArray[{g1, g2, g3}];
g5 = GraphicsArray[{g2}];
Export["C:\\Users\\Ines\\Documents\\Diplomarbeit\\Mathematica\\" <> ToString[Filename] <> "_vergleich.jpg", g4]
Export["C:\\Users\\Ines\\Documents\\Diplomarbeit\\Mathematica\\" <> ToString[Filename] <> "_unterschied.jpg", g5]
```

*Für das Erstellen des Mathematica Source-Codes danke ich Herrn C. Kirchlechner.

6.5 GERÄTEEINSTELLUNGEN

6.5.1 REM (LEO 1525)

0° KIPPWINKEL

Schichtsystem A: InLens-Detektor, 30µm-Blende, 10kV Beschleunigungsspannung,
4mm Arbeitsabstand

Schichtsystem B: InLens-Detektor, 60µm-Blende, 5kV Beschleunigungsspannung,
4mm Arbeitsabstand

70° KIPPWINKEL

Schichtsystem A+B: SE-Detektor, 30µm-Blende, 10kV Beschleunigungsspannung, 10mm
Arbeitsabstand

6.5.2 FIB (LEO 1540XB)

Schneiden: 2nA-Blende, 30kV Beschleunigungsspannung

Abbilden: SE-Detektor, 50pA-Blende, 30kV Beschleunigungsspannung

7. VERZEICHNISSE

7.1 ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abb. 1: Im Schicht-Substrat-Verbund wirkende Kräfte und Momente [15].	3
Abb. 2: Anstieg der Raumtemperatur-Fließgrenze mit abnehmender Schichtdicke für polykristalline und epitaktische Schichten; bei einer Schichtdicke von 400nm erreichen polykristalline Schichten ein Plateau [17].	5
Abb. 3: Thermozyklus einer 600nm dicken {111}-fasertexturierten Al-Schicht; die quadratischen Messpunkte wurden mittels Substratkrümmungsmethode, die Kreise hingegen mit Hilfe von Röntgendiffraktion ermittelt [21].	6
Abb. 4: REM-Aufnahme von Hillocks auf der Oberfläche einer 1µm Al-Schicht. Die Abbildung wurde unter einem Kippwinkel von 70° aufgenommen.	8
Abb. 5: Schematische Darstellung des Substratkrümmungs-Messaufbaus entnommen aus [25].	14
Abb. 6: Skizze zur Berechnung der Schichtspannung aus der Laserspotverschiebung mittels Gleichung (25). Darstellung entnommen aus [25].	14
Abb. 7: Heizplatte aus pyrolytischem Bornitrid mit integriertem Thermoelement [26].	15
Abb. 8: Maximal auflösbare Spannung aufgrund der Auflösungsgrenze der Laserspotverschiebung von etwa 0,05% in Abhängigkeit von Schicht- und Substratdicke.	16
Abb. 9: „Rauschen“ der Spannungswerte in Abhängigkeit von Temperatur und Schichtdicke. Die Rauschamplitude entspricht der halben Schwingbreite der Spannungswerte und wurde als Standardabweichung des Spannungsmittelwertes bei den jeweiligen Temperaturen ermittelt.	17
Abb. 10: Schematischer Messaufbau zum Bestimmen des Flächenwiderstands mit Hilfe der Van-der-Pauw-Methode [30].	19
Abb. 11: Messvorrichtung zur Kontaktierung der Proben für die Van-der-Pauw Widerstandsmessung	20
Abb. 12: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 25nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A. An den dunklen Stellen in a) schimmert das Substrat durch, diese dünnen Schichten zeigen noch keine komplett geschlossene Schicht.	21
Abb. 13: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 200nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	22
Abb. 14: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 300nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	22
Abb. 15: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 400nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	22
Abb. 16: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 600nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	23
Abb. 17: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 1000nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	23
Abb. 18: REM-Aufnahmen einer 400nm Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70°.	24
Abb. 19: REM-Aufnahmen einer 1µm Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70°.	24
Abb. 20: REM-Aufnahmen einer 2µm Schicht des Schichtsystems B bei a) 1000-facher und b) 5000-facher Vergrößerung unter Kippwinkel 0° und c) 5000-fach unter 70°.	24
Abb. 21: Erster und zweiter Thermozyklus einer 1µm Schicht des Schichtsystems A.	25
Abb. 22: Geschlossene Thermozyklen des Schichtsystems A für verschiedene Schichtdicken, a) 50nm, b) 150nm, c) 200nm, d) 300nm, e) 400nm, f) 1000nm. Die in die Diagramme eingezeichnete Linie zeigt die theoretische thermoelastische Gerade beim Aufheizen mit der Steigung m .	26
Abb. 23: $\sin^2(\psi)$ -Plot einer 400nm Schicht des Systems A zur Ermittlung der absoluten Schichtspannungen bei RT.	28

Abb. 24: Thermozyklus ausgewählter Schichtdicken des Systems A mit absoluten Spannungswerten.	28
Abb. 25: Absolute Spannungs-Temperatur-Verläufe der Al-Schichten des Schichtsystems B für a) 400nm, b) 600nm, c) 1000nm und d) 2000nm. Diese Thermozyklen wurden in einer Substratkrümmungsanlage am MPI für Metallforschung (Stuttgart) gemessen [17].	29
Abb. 26: REM-Aufnahmen eines ausgewählten Bereiches einer 1000nm Schicht vom System A; unter einem Kippwinkel von a) 0°, b) 70° vor dem Glühen; c) 0°, d) 70° nach 2h Glühen bei 450°C, die roten Markierungen zeigen exemplarisch zwei neugewachsene Hillocks.	31
Abb. 27: Mathematica-Bild durch Übereinanderlegen und Farbcodieren der "vorher-nachher" REM-Aufnahmen einer 1000nm Schicht vom System A; gelb: alte Hillocks, grün: neue Hillocks, die roten Kreise markieren die bereits in Abb.26 exemplarisch hervorgehobenen Hillocks.	32
Abb. 28: Die neu gebildeten Hillocks wurden mit dem Softwareprogramm AnalySIS vermessen und die Fläche bestimmt. Aus der Fläche wird mit $(D/2)^2 \cdot \pi$ der Ersatzkreisdurchmesser D berechnet.	33
Abb. 29: Geometrische Verhältnisse zum Berechnen der tatsächlichen Hillockhöhe (H_{Kegel} bzw. H_{Zylinder}) aus der in der 70° (Kippwinkel α) gekippten Aufnahme gemessenen Höhe (H_{gemessen}); Annahme a) Kegelvolumen, b) Zylindervolumen.	33
Abb. 30: Gesamtes neu gebildetes Kegelhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Glüh Temperatur und b) Schichtdicke. Die Fehlerbalken in a) ergeben sich aus der Standardabweichung des Gesamthillockvolumens der vier untersuchten Bereiche und gelten auch für b).	35
Abb. 31: Durchschnittliches Kegelhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Temperatur und b) Schichtdicke der untersuchten Schichten des Systems A.	36
Abb. 32: Druckspannungsrelaxation einer 300nm Schicht während einer zweistündigen isothermen Glühbehandlung bei 450°C; die rote Kurve zeigt den Temperatur-, die blaue den dazugehörigen Spannungsverlauf.	38
Abb. 33: Temperatur- (rot) und Spannungsverlauf (blau) einer 1000nm Schicht während eines zweistündigen isothermen Glühens bei a) 200°C und b) 450°C.	39
Abb. 34: Abhängigkeit der Druckspannungsrelaxation von der Glüh Temperatur beim isothermen Glühen einer 1000nm Schicht.	40
Abb. 35: Druckspannungsrelaxation einer 1000nm Schicht aufgrund einer zweistündigen, isothermen Glühbehandlung bei 450°C; a) mit Hilfe der Substratkrümmungsmethode ermittelter Spannungsabbau, b) Gesamtspannungsrelaxation als Abweichung vom linear thermoelastischem Verhalten.	41
Abb. 36: Gesamtspannungsrelaxation der 1000nm Schicht in Abhängigkeit der Glüh Temperatur.	42
Abb. 37: Durch Hillockneubildung abgeschätzte Druckspannungsrelaxation in Abhängigkeit der Temperatur, die Fehlerbalken ergeben sich aus der Standardabweichung der vier untersuchten Bereiche.	43
Abb. 38: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen (Kegel bzw. Zylinder) abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 1000nm dicke Al-Schicht.	44
Abb. 39: Arrheniusplot zum Ermitteln der Aktivierungsenergie der Hillockbildung mittels der aus dem neugebildeten Kegelhillockvolumen berechneten Spannungsrelaxation.	46
Abb. 40: FIB-Schnitte zum Sichtbarmachen der Kornstruktur in einer 1000nm Schicht des Systems A.	48
Abb. 41: FIB-Schnitte zum Sichtbarmachen der Kornstruktur in einer 1000nm Schicht des Systems B.	48
Abb. 42: Mittels FIB präparierte Hillockquerschnitte einer 1000nm Schicht des Schichtsystems A; a)-f) zeigen verschiedene mögliche Formen und Kornstrukturen bei Hillocks. Die weißen Pfeile markieren Löcher bzw. Poren.	49
Abb. 43: Änderung der elektrischen Eigenschaften der Schichten des Systems B nach zweistündigem isothermen Glühen bei 450°C; a) Flächenwiderstand, b) spezifischer Widerstand.	51
Abb. 44: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 50nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	55
Abb. 45: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 100nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	55
Abb. 46: a) lichtmikroskopische, b) REM-, c) AFM-Aufnahme einer 150nm dicken Al-Schicht des Schichtsystems A.	55
Abb. 47: REM-Aufnahmen verschiedener Hillocks einer 1000nm Schicht vom System A.	56
Abb. 48: REM-Bilder von FIB-Querschnittspräparationen an Hillocks einer 1000nm Schicht des Systems A.	56

Abb. 49: $\sin^2(\psi)$ -Plots zur Ermittlung der absoluten Schichtspannungen bei RT von einer a) 300nm und b) 1000nm dicken Al-Schicht des Systems A.	57
Abb. 50: Thermozyklen des Schichtsystems A für unterschiedliche Schichtdicken, a) 25nm, b) 100nm, c) 600nm.....	57
Abb. 51: Thermozyklen des Schichtsystems B für unterschiedliche Schichtdicken, a) 400nm, b) 1 μ m, c) 2 μ m.	58
Abb. 52: Gesamtes neu gebildetes Zylinderhillockvolumen in Abhängigkeit der a) Glühtemperatur und b) Schichtdicke für die Proben des Schichtsystems A.....	58
Abb. 53: Durchschnittliches Zylinderhillockvolumen in Abhängigkeit a) der Temperatur und b) der Schichtdicke für die Proben des Schichtsystems A.....	59
Abb. 54: Durch Hillockneubildung (Annahme zylinderförmige Hillocks) abgeschätzte Druckspannungsrelaxation in Abhängigkeit der Temperatur für die Proben des Schichtsystems A.	59
Abb. 55: Arrheniusplot zum Ermitteln der Aktivierungsenergie der Hillockbildung mittels der aus dem Zylinderhillockvolumen berechneten Spannungsrelaxation für die Proben des Schichtsystems A.	60
Abb. 56: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 300nm dicke Al-Schicht des Systems A.	60
Abb. 57: Vergleich der Gesamtdruckspannungsrelaxation (gemessen) mit der übers Hillockvolumen abgeschätzten Spannungsabnahme für eine 400nm dicke Al-Schicht des Systems A.	61

7.2 TABELLENVERZEICHNIS

Tab. 1: Elastische Konstanten von Aluminium und Silizium [15, 16].....	2
Tab. 2: Thermische Ausdehnungskoeffizienten von Al und Si bei Raumtemperatur [13].....	4
Tab. 3: Aktivierungsenergien für Hillockwachstum in den untersuchten Schichtdicken unter der Annahme von kegel- bzw. zylinderförmigen Hillocks	46
Tab. 4: Literaturwerte für Aktivierungsenergien verschiedener Diffusionsarten (Selbstdiffusion) in Aluminium	47
Tab. 5: Vergleich des spezifischen Widerstandes von Massivaluminium aus Literaturdaten [35] mit jenem – mittels Van-der-Pauw-Methode bestimmten – der Al-Schichten des Systems B.....	52

7.3 ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS

AFM	Rasterkraftmikroskop (Atomic Force Microscope)
DMM	Deformation Mechanism Map
FIB	Focused Ion Beam
MOS	Multi-Beam Optical Sensor
REM	Rasterelektronenmikroskop
α	Winkel
$\alpha_{f,s}$	thermischer Ausdehnungskoeffizient von Schicht, Substrat
γ	Oberflächenenergie
δd	differentieller Laserspotabstand
$\Delta\sigma$	Spannungsrelaxation
ε	Dehnung
θ	halber Beugungswinkel

κ	Substratkrümmung
ρ	spezifischer Widerstand
σ	mechanische Spannung
$\nu_{f,s}$	Poissonzahl
ψ	Winkel der Probenverkipfung
C	Konstante
D	Ersatzkreisdurchmesser
d_0	ursprünglicher Laserspotabstand
d_{hkl}	Netzebenenabstand
$d_{r,u}$	lineare Ausdehnung des relaxierten Bereichs/ der Umgebung
$E_{f,s}$	E-Modul
I	el. Strom
l	temperaturabhängige Rate
M	Biegemoment
m	Steigung
$M_{f,s}$	biaxialer Modul
n	Hillockdichte
Q	Aktivierungsenergie
R	Gaskonstante; 8,3145 J/Kmol
$R_{A,B}$	charakteristische Widerstände
R_C	Biegeradius
R_S	Flächenwiderstand
T	Temperatur
t	Zeit
$t_{f,s}$	Schichtdicke
V	el. Spannung
$V_{Hillock}^*$	Hillockvolumen pro Einheitsfläche
W	Dehnungsenergie

8. LITERATUR

- [1] P. Chaudhari, Hillock growth in thin films, *Journal of Applied Physics*, 45 (1974) 4339-4346)
- [2] D.-K. Kim et al., Microstructure of thermal hillocks on blanket Al thin films, *Thin Solid Films*, 371 (2000) 278-282
- [3] R. Venkatraman, Plasticity and flow stress in aluminium thin films on silicon, PhD thesis, Stanford University, 1992
- [4] S.-J. Hwang et al., In situ study of stress relaxation mechanisms of pure Al thin films during isothermal annealing, *Scripta Materialia*, 54 (2006) 1841-1846
- [5] C. Kylner, L. Mattsson, Initial development of the lateral hillock distribution in optical quality Al thin films studied in real time, *Thin Solid Films*, 307 (1997) 169-177
- [6] F. Ericson, N. Kristensen, J.A. Schweitz, U. Smith, A transmission electronmicroscopy study of hillocks in thin aluminum films, *Journal of Vacuum Science & Technology*, B9 (1991) 58
- [7] D. Gerth, D. Katzer and M. Krohn, Study of thermal behaviour of thin aluminium alloy films, *Thin Solid Films*, 208 (1992) 67-75
- [8] E. Iwamura, T. Ohnishi, K. Yoshikawa, Influence of formation and decomposition of solid-solution on resistivity and hillock suppression in sputtered Al-Ta thin films, *Journal of the Japan Institute of Metals*, 59 (1995) 673.
- [9] D.K. Kim et al., Study of the effect of grain boundary migration on hillock formation in Al thin films, *Journal of Applied Physics*, 90 (2001) 781
- [10] C. Y. Chang, R. W. Vook, Thermally induced hillock formation in Al-Cu films, *Journal of Material Research*, 4 (1989) 1172
- [11] S.J. Hwang, W.D. Nix, Y.C. Joo, A model for hillock growth in Al thin films controlled by plastic deformation, *Acta Materialia*, 55 (2007) 5297.
- [12] S.-J. Hwang, J.H. Lee, C.O. Jeong and Y.C. Joo, Effect of film thickness and annealing temperature on hillock distributions in pure Al films, *Scripta Materialia*, 56 (2007) 17-20
- [13] R.P.Vinci, E.M. Zielinski, J.C. Bravman, Thermal strain and stress in copper thin films, *Thin Solid Films*, 262 (1995) 142-153
- [14] L. B. Freund, S. Suresh, *Thin Film Materials*, Cambridge University Press, Cambridge, New York, Madrid u.a., 1. Auflage 2003

-
- [15] W. D. Nix, Mechanical properties of thin films, Department of Materials Science and Engineering, Stanford University, 2005
- [16] H.J. Frost, M. F. Ashby, Deformation-Mechanism Maps, Pergamon Press, Oxford, 1982
- [17] G. Dehm, T. Balk, H. Edongue, E. Arzt, Small-scale plasticity in thin Cu and Al films, *Microelectronic Engineering*, 70 (2003) 412-424
- [18] W. D. Nix, Mechanical properties of thin films, *Metall. Trans. A*, 20 (1989) 2217-45
- [19] V. M. Koleshko, V. F. Belitsky, I. V. Kiryushin, Stress relaxation in thin aluminium films, *Thin Solid Films*, 142 (1986) 199-212
- [20] M. J. Kobrinsky, C. V. Thompson, Activation volume for inelastic deformation in polycrystalline Ag thin films, *Acta Materialia*, 48 (2000) 3025
- [21] E. Eipper et al., Size-independent stresses in Al thin films thermally strained down to -100°C, *Acta Materialia*, 55 (2007) 1941-1946
- [22] R. Venkatraman et al., Mechanical properties and microstructural characterization of Al-0.5% Cu thin films, *Journal of Electronic Materials*, 19 (1990).1231-7
- [23] R. Venkatraman and J.C. Bravman, Separation of film thickness and grain boundary strengthening effects in Al thin films on Si, *Journal of Materials Research*, 7 (1992) 2040-2048
- [24] W. D. Nix, O. S. Leung, Thin films: Plasticity, *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*, (2008) 9262-9273
- [25] Eric Chason, Resolution and sensitivity of stress measurements with the k-Space Multi-beam Optical Sensor (MOS) System, k-Space Associates
- [26] www.tectra.de
- [27] I. C. Noyan, J. B. Cohen, Residual Stress – Measurement by Diffraction and Interpretation, Springer, New York, Berlin, Heidelberg u.a., 1987
- [28] L. J. van der Pauw, A method of measuring the resistivity and hall coefficient on lamellae of arbitrary shape, *Philips Technical Review*, 20 (1958) 220-224.
- [29] L. J. van der Pauw, A method of measuring specific resistivity and hall effect of discs of arbitrary shape, *Philips Research Reports*, 13 (1958) 1-9.
- [30] Czichos, Horst; Saito, Tetsuya; Smith, Leslie M., *Springer Handbook of Materials Measurements Methods*, Springer, Berlin Heidelberg, 2006
-

- [31] W.W Mullins, The effect of thermal grooving on grain boundary motion, Acta Metallurgica, 6 (1958) 414-427
- [32] Diffusion Data, F.H. Wöhlbier, Vol.2, No.1 (1968) 10-11
- [33] Diffusion and Defect Data, F.H. Wöhlbier, Vol.12, No.1-4 (1976) 5ff
- [34] T. Shinzawa, T. Ohta, Molecular dynamics simulation of Al grain boundary diffusion for electromigration failure analysis, IEEE 1998 International Interconnect Technology Conference
- [35] P. A. Tipler, Physik, Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, Berlin, Oxford, 2000, S. 754