

Г. А. КУРОВ, Э. А. ЖИЛЬКОВ, В. М. ДУБОДЕЛ,  
Б. А. ТОРОЩЕВ, В. Н. ЦЕЛИБЕЕВА

## МАКРОСКОПИЧЕСКИЕ ДЕФЕКТЫ В ТОНКИХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ

(Представлено академиком И. М. Лифшицем 8 IV 1974)

Известно (<sup>1-3</sup>), что в тонких металлических пленках, полученных испарением в вакууме, имеется большое число неравновесных дефектов, в том числе вакансий. Как предполагается в (<sup>1-3</sup>), избыточные вакансии образуются («замуровываются») в пленке в процессе ее роста. По косвенным оценкам (<sup>2, 3</sup>) концентрация вакансий в пленках при сравнительно невысоких температурах может достигать ~0,1% и даже ~1–2%, что на много порядков превышает концентрацию равновесных вакансий в массивных образцах.

В работах (<sup>4, 5</sup>) исследовались сквозные макроскопические поры в тонких металлических пленках (Al, Cu, Ni), образование которых не может быть объяснено загрязнением на подложке, недостаточным вакуумом и другими неудовлетворительными условиями эксперимента. Было высказано предположение о диффузионно-вакансионном происхождении сквозных пор. Концентрация вакансий, образующих поры, должна быть очень высокая (~1%).

Целью настоящей работы являлось получение достаточно убедительных доказательств вакансионного механизма образования мак-

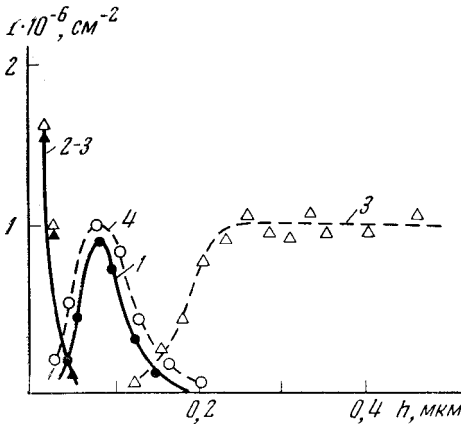


Рис. 1. Зависимость плотности пор (1, 4) и ямок (2, 3)  $I$  от толщины  $h$  в пленках алюминия, полученных при  $T=120^\circ$ ,  $w \approx 130$  Å/сек. 1, 2 — до отжига; 3, 4 — после отжига пленки при  $200^\circ\text{C}$  в течение 10 мин.

роскопических дефектов в тонких металлических пленках, полученных испарением в вакууме. Исследовались условия образования, роста и заживания макродефектов при отжиге и термоциклировании пленок алюминия.

Пленки получались на стеклянных подложках и на поверхностях склола монокристаллов NaCl методом испарения и конденсации в вакууме при давлении  $\sim 8 \cdot 10^{-6} - 1 \cdot 10^{-5}$  мм рт. ст. Образцы пленок имели форму клина размером  $90 \times 5$  мм<sup>2</sup>, толщина которого линейно возрастала от 0 до 0,6 мкм и иногда достигала 1 мкм. Для исследования макроскопических дефектов в пленках использовались металлографические микроскопы МИМ-8М и МеФ. Последний представляет собой высокотемпературный микроскоп с нагреваемой вакуумной камерой. В микроскопах были установлены дополнительные источники света, что позволяло вести наблюдения как в отраженном, так и в проходящем свете.

При микроскопическом исследовании пленок алюминия в них были обнаружены, помимо сквозных пор (<sup>4</sup>), ямки конической формы с диаметром основания ~1–2 мкм. Были исследованы зависимости плотности

сквозных пор и ямок  $I$  от толщины  $h$  пленок алюминия до и после отжига, полученных при температуре подложки во время конденсации  $T$  и скорости конденсации  $w$ .

На рис. 1 приведены типичные зависимости для пленок, полученных при  $T=120^\circ\text{C}$  и  $w=130\text{ \AA/сек}$ . В области малых толщин ( $h\sim 300\text{--}400\text{ \AA}$ ) до и после отжига плотность ямок весьма велика ( $I\sim 2\cdot 10^6\text{ см}^{-2}$ ), а плотность сквозных пор ничтожно мала. При увеличении  $h$  растет плотность сквозных пор, а число ямок резко уменьшается. Ямки полностью исчезают при толщине пленки  $h_m$ , соответствующей максимуму пористости (<sup>4</sup>).

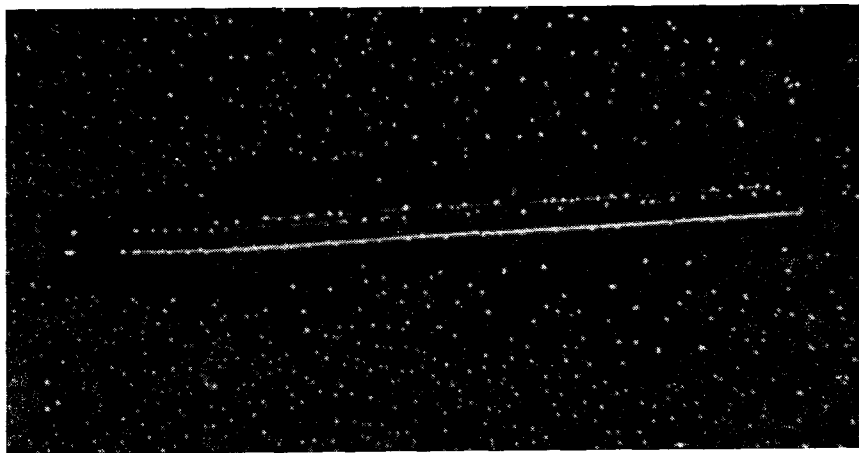


Рис. 2. Беспористая зона вокруг царапины в пленке алюминия после отжига;  $75\times$

При дальнейшем увеличении толщины плотность сквозных пор (кривая  $I$ ) уменьшается практически до нуля. До отжига в области больших толщин ( $h>h_m$ ) ямок практически не наблюдалось. После отжига плотность ямок при малых толщинах оставалась практически прежней (левая ветвь кривой  $3$ ), а плотность пор (кривая  $4$ ) несколько возросла. Однако при  $h\geq 0,2\text{ мкм}$  возникало множество ямок (правая ветвь кривой  $3$ ), имеющих плотность до  $1\cdot 10^6\text{ см}^{-2}$ . Причем с толщиной кривая  $3$  быстро достигала области насыщения.

Таким образом, после отжига наблюдался минимум плотности ямок при толщинах, соответствующих максимуму пористости. Подобная зависимость плотности сквозных пор и ямок от толщины пленки наблюдалась также и для пленок меди.

Ямки распределялись, как правило, равномерно по поверхности металлической пленки. Большинство из них имело в горизонтальном сечении форму круга (круговые ямки и поры). Причиной неравномерного распределения пор и ямок являются макроскопические дефекты подложки (трещины, царапины, загрязнения и т. д.), вокруг которых часто образуются широкие беспористые зоны. На рис. 2 приводится микрофотография в проходящем свете сквозных пор в алюминиевой пленке толщиной  $\sim 900\text{ \AA}$ , полученной при  $T=120^\circ\text{C}$  и  $w\approx 30\text{ \AA/сек}$ , после отжига при температуре  $\sim 150^\circ$  в течение 5 час. Здесь поры выстроились на трех царапинах подложки, при этом между царапинами и на расстоянии от них до  $\sim 30\text{--}50\text{ мкм}$  других пор нет. Таким образом, по обе стороны царапин и между ними образовались беспористые зоны, ширина которых в сотни раз превосходит толщину пленки. Зоны, свободные от ямок и пор, образуются и на краях пленок, в особенности при их стыжке.

С помощью микроскопа MeF было исследовано поведение сквозных пор при термоциклировании пленок Al различной толщины при низких ( $T_m < T_p$ ) и высоких ( $T_m > T_p$ ) температурах, где  $T_m$  — максимальная тем-

пература термоцикла,  $T_p$  — температура рекристаллизации, равная для алюминия  $\sim 150^\circ$  (<sup>4</sup>). Образцы нагревались за время  $\sim 1,5$ – $2$  мин. до температуры  $T_m$ , выдерживались обычно в течение  $\sim 10$  мин. при этой температуре, а затем охлаждались в течение  $3$ – $6$  мин. До низкотемпературного отжига в пленке Al, нанесенной на стекло, при  $h \geq 1500 \text{ \AA}$  сквозных пор не наблюдалось (<sup>4</sup>). При нагреве подобной пленки от комнатной температуры до  $\sim 100^\circ$  и выдержке при этой температуре сквозные поры в пленке не появлялись (рис. 3а). Они возникали во время последующего охлаждения образца до  $\sim 50^\circ$  (рис. 3б).

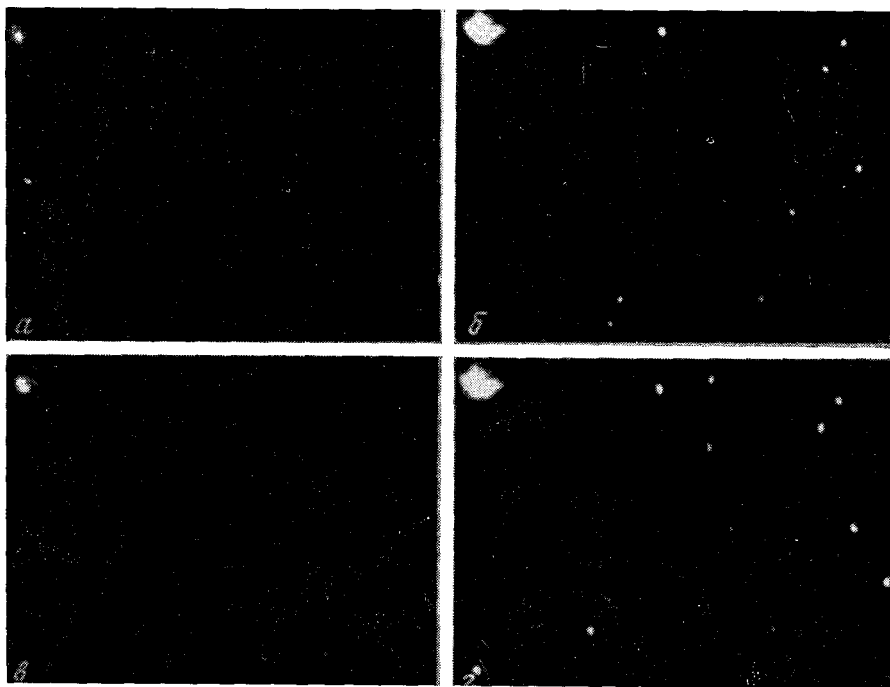


Рис. 3. Термоциклирование пленки алюминия. а — исходная и нагретая до  $\sim 100^\circ \text{ C}$ , б — охлажденная до  $\sim 50^\circ \text{ C}$ , в — снова нагретая до  $\sim 100^\circ \text{ C}$ , г — охлажденная до  $\sim 50^\circ \text{ C}$ ;  $550\times$

Итак, после первого термоцикла в пленке появлялись сквозные круговые поры диаметром  $\sim 1$ – $2$  мкм. Общая площадь, занимаемая порами, достигала  $\sim 0,5\%$  (<sup>4</sup>). Во время второго термоцикла при нагреве пленки от  $50$  до  $100^\circ$  все круговые поры полностью исчезали («залечивались») (рис. 3в), а при охлаждении снова появлялись, но уже более крупные, диаметром до  $2$ – $3$  мкм (рис. 3г). Некоторые поры появлялись на старых местах, а другие на новых, причем они были такого же размера, как и выросшие «старые» поры. Часть пор после второго термоцикла исчезла вообще. Эта картина характерна для первого этапа низкотемпературного термоциклирования, когда при нагреве сквозные поры полностью исчезали («залечивались»). Вторым этапом низкотемпературного термоциклирования был характерен тем, что при нагреве поры залечивались лишь частично. Так, во время третьего и четвертого термоциклов при нагреве пленки до  $\sim 100^\circ$  размер круговых пор уменьшался до  $1$  мкм. При охлаждении в третьем и четвертом термоциклах поры соответственно увеличивались до  $\sim 3$ – $4$  и  $\sim 4$ – $5$  мкм. Если имелась крупная пора на загрязнении подложки, то вокруг нее образовывалась беспористая зона шириной до  $\sim 50$  мкм, в которой сквозные поры при термоциклировании не возникали.

При высокотемпературном термоциклировании ( $T_m > T_p$ ) в процессе

охлаждения образца поры принимали вид снежинок диаметром до  $\sim 15$  мкм, которые при последующем нагреве резко уменьшались в размерах, часто распадались на две более мелкие круговые поры, а в некоторых случаях полностью залечивались. Следует отметить, что размер пор, образующихся в процессе охлаждения пленки, по-видимому, практически не зависит от времени выдержки образца при максимальной температуре термоцикла, которое варьировалось от 5–10 мин. до 1 часа.

Термоциклирование пленок алюминия ( $h \sim 1000 \text{ \AA}$ ), полученных на границе скола NaCl, показало следующее. До нагрева пор и ямок в пленках не наблюдалось. При нагреве до  $\sim 300^\circ$  и выдержке при этой температуре в течение 10 мин. изменений в пленках замечено не было. Однако при охлаждении до  $270^\circ$  на поверхности пленок появлялись ямки размером  $\sim 1$  мкм с плотностью  $\sim 4 \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$ . При дальнейшем охлаждении ямки увеличивались в размерах до 1,5 мкм, а также появлялись новые ямки. При понижении температуры до  $180^\circ$  большинство ямок превращалось в сквозные поры размером  $\sim 2$  мкм с плотностью  $\sim 3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$ . При последующем нагреве поры в пленках на NaCl, в отличие от пор в пленках на стекле, не уменьшались в размерах, что объясняется, вероятно, влиянием термических растягивающих напряжений, которые возникают при нагреве пленок на NaCl. Аналогичное явление зарождения пор из ямок при охлаждении образца (но при более низких температурах) наблюдалось и для пленок алюминия толщиной до  $\sim 1500 \text{ \AA}$  на стекле.

Таким образом, наличие в металлических пленках большого числа неравновесных вакансий приводит к образованию в них сквозных пор и ямок. В очень тонкой и относительно толстой пленке ямка является доминирующим типом макродефектов, а сквозные поры преобладают в промежуточной области толщин (<sup>4</sup>). Образование ямок связано с выходом вакансий на поверхность пленки. Наличие области насыщения плотности ямок при больших толщинах пленок объясняется тем, что здесь вакансии выходят на поверхность лишь из некоторого поверхностного слоя пленки. Результаты термоциклирования, а именно рост сквозных пор при охлаждении образцов, также можно объяснить «конденсацией» неравновесных вакансий. Весьма вероятным механизмом роста и залечивания пор в пленках алюминия является диффузионно-вязкое течение вещества, рассмотренное в (<sup>8</sup>). Для образования сквозных пор и ямок необходимо, чтобы вакансии диффундировали вдоль поликристаллической пленки на расстоянии, превышающие на несколько порядков толщину пленки, т. е. чтобы существовала продольная («двумерная») диффузия вакансий в пленках. В пользу этого свидетельствует и образование беспористых (диффузионных) зон вблизи царапин, на краях пленок и вокруг крупных пор. Поведение ямок на пленках во многом аналогично поведению ямок диффузионно-вакансионного происхождения на массивном алюминии (<sup>6, 7</sup>). Отсутствие ямок в месте максимума пористости свидетельствует в пользу того, что сквозная пора является более мощным стоком вакансий, чем поверхности пленки и границы зерен.

Авторы выражают глубокую благодарность акад. И. М. Лифшицу и проф. З. Г. Пинскеру за участие в обсуждении результатов настоящей работы.

Московский институт электронной  
техники

Поступило  
8 IV 1974

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- <sup>1</sup> К. А. Нейгебауэр, В сборн. Физика тонких пленок, М., т. 2, 1967, стр. 13.   <sup>2</sup> Л. С. Палатник, М. Я. Фукс, В. М. Косевич, Механизм образования и субструктура конденсированных пленок, «Наука», 1972.   <sup>3</sup> К. Л. Чопра, Электрические явления в тонких пленках, М., 1972, стр. 120, 121, 178, 179.   <sup>4</sup> Г. А. Куров, А. Б. Маркарян, Э. А. Жильков, Микроэлектроника, т. 2, № 2, 145 (1973).   <sup>5</sup> Г. А. Куров, Э. А. Жильков, В. М. Дубовел, Микроэлектроника, т. 2, № 1, 72 (1973).   <sup>6</sup> P. E. Doherty, R. S. Davis, Acta Metallurgica, v. 7, 118 (1959).   <sup>7</sup> J. R. Jasperse, P. E. Doherty, Phil. Mag., v. 9, 635 (1964).   <sup>8</sup> И. М. Лифшиц, ЖЭТФ, т. 44, 1347 (1963).