УДК 539.4;539.6

Неустойчивость поверхности проводящей пленки под действием механической и электрической нагрузок

Гольдштейн Р.В.[1], Махвиладзе Т.М.[2], Сарычев М.Е.[2†]

†sarych@yandex.ru

[1]Институт проблем механики им. А.Ю. Ишлинского РАН, пр. Вернадского, 101/1, 119526, Москва
[2]Физико-технологический институт РАН, Нахимовский пр., 36/1, 117218, Москва

Развита модель, описывающая влияние процесса электромиграции на неустойчивость свободной поверхности проводящей пленки, лежащей на подложке. Получены и исследованы зависимости условий возникновения неустойчивости от величины и направления электрического тока в пленке, а также от величины и характера механических напряжений, существующих на границе с подложкой.

Ключевые слова: вакансии, электромиграция, диффузия.

Instability of the conducting film surface under mechanical and electrical loads

R.V. Goldstein[1], T.M. Makhviladze[2], M.E. Sarychev[2]

[1]Institute for Problems in Mechanics, RAS, Vernadsky Prst. 101/1, 119526, Moscow
[2]Institute of Physics and Technology, RAS, Nakhimovsky Prst. 36/1, 117218, Moscow

A model describing the influence of electromigration on the development of instability of free conducting film surface lying on a substrate is created. The conditions of instability initiation as a function of a value and direction of the electrical current as well as of a value and nature of the mechanical stresses taking place at the boundary with the substrate are obtained and analyzed.

Keywords: vacancies, electromigration, diffusion.

1. Введение

В ряде теоретических работ показано, что плоская форма свободной поверхности пленки может оказаться неустойчивой под действием механических напряжений, имеющих место вследствие сцепления пленки с подложкой (см. работу [1] и ссылки в ней). Нам представляется, что выявление и исследование подобных эффектов в условиях действия электрической нагрузки может оказаться полезным в различных приложениях, в том числе для развития технологии изготовления нанотранзисторных структур и микросхем.

В связи с этим в настоящей работе для случая проводящих пленок развита модель, которая описывает влияние электрического тока, протекающего через пленку и приводящего к электромиграции ионов и вакансий [2], на кинетику развития такой неустойчивости. Получены и аналитически исследованы зависимости условий возникновения неустойчивости от величины и направления электрического тока.

2. Описание модели

Рассмотрим бесконечно протяженную плоскую (плоскость (x, z)) пленку из проводящего кристаллического материала с электронной проводимостью, лежащую на подложке в условиях их полного сцепления. Пленка предполагается достаточно толстой по y (ось y направлена вверх, а $y = 0$ отвечает свободной поверхности). Считаем, что все величины, относящиеся к пленке, не зависят от z. Учтем также, что граница с подложкой всегда генерирует в пленке механическое напряжение σ_∞ [1] (положительное, если напряжение сжимающее, и отрицательное, если растягивающее), которое будем считать направленным вдоль оси x и исходно не зависящим от координат. Пусть, кроме того, перпендикулярно пленке действует постоянное электрическое поле E, вызывающее протекание электрического тока.

Рассмотрим поведение возмущения свободной поверхности слоя, имеющего вид:

$$h(x,t) = a(t)\sin\omega x\,, \tag{1}$$

где h – изменение y-координаты поверхности, a – амплитуда возмущения, зависящая от времени t, $\omega = 2\pi / \lambda > 0$ и λ – длина волны. Амплитуда возмущения $a(t)$ предполагается малой по сравнению с λ, поэтому далее ограничимся при анализе линейным по амплитуде $a(t)$ приближением.

Изменение возмущения (1) со временем определяется потоками ионов вдоль поверхности и вакансий между поверхностью и объемом пленки:

$$\frac{dh(x,t)}{dt} = \Omega_A \frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{D_S C_S}{kT}\frac{\partial \mu}{\partial x}\right) + +\Omega_V \left(D_V \left.\frac{\partial\left[C_V(x.y)/\Omega_V\right]}{\partial y}\right|_{y=0} \right) \quad (2)$$

где Ω_A и Ω_V - удельный атомарный и вакансионный объемы, которые в дальнейшем для простоты будем считать одинаковыми, т.е. $\Omega_A = \Omega_V = \Omega$, C_S - концентрация ионов на поверхности пленки, $C_V(x, y)$ - концентрации вакансий, D_S и D_V – коэффициенты диффузии ионов на поверхности пленки и вакансий в ее объеме, k – постоянная Больцмана, T – температура, μ - изменение химического потенциала ионов поверхности, вызванное возмущением (1):

$$\mu = \left[U(x,t) - K(x,t)\gamma\right]\Omega - Z_a^* \rho j h(x,t), \quad (3)$$

где U – плотность энергии упругих деформаций на поверхности, K – кривизна поверхностного профиля (1), γ – коэффициент поверхностного натяжения пленки. Последнее слагаемое в (1) – вклад от электромиграции ионов решетки по поверхности пленки (их переноса под действием потока электронов [2], возникающего из-за неоднородного распределения электрического потенциала $\varphi = Eh(x,t)$ на ней), $Z_a^* < 0$ - эффективный заряд ионов на поверхности, обусловленный их увлечением электронным потоком [2], $j = E/\rho$ – плотность электрического тока в пленке, ρ – ее удельное сопротивление.

Зависимость $U(x,t)$ в (3) определяется распределением механических напряжений в пленке, вызванным возмущением (1). Воспользовавшись результатами работы [3], в которой такое распределение было получено в приближении о состоянии плоской деформации при решении задачи о механическом равновесии слоя, лежащего на подложке и имеющего возмущенную свободную поверхность вида (1), получим

$$U = \frac{(1-\nu)\sigma_\infty^2}{4G}[1 - 4a(t)\omega \sin(\omega x)],$$

где G – модуль сдвига материала пленки, ν – коэффициент Пуассона и учтена малость амплитуды возмущения. Для кривизны K профиля (1) также с учетом условия $a\omega \ll 1$ имеем

$$K = h_{xx}/(1+h_x^2)^{3/2} \approx h_{xx} = -a(t)\omega^2 \sin(\omega x)$$

Распределение вакансий в пленке описывается уравнением, которое с учетом вклада электромиграции имеет вид (см., например [2]):

$$\frac{\partial C_V}{\partial t} = D_V\left(\frac{\partial^2 C_V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_V}{\partial y^2}\right) - \frac{D_V Z_V^* E}{kT}\frac{\partial C_V}{\partial y}$$

$Z_V^* > 0$ - эффективный заряд вакансий. Решая это уравнение в стационарном режиме ($\partial C/\partial t = 0$), т.е. для времен, больших времени установления ($t \geq H^2/D_V$, H – толщина пленки), получим

$$C_V(x,y) = C_e - \frac{C_e\Omega}{kT}[\gamma\omega^2 - \frac{2}{3}(1+\nu)\sigma_\infty\omega + Z_V^* E/\Omega] a \sin(\omega x)\exp(q_+ y) \quad (4)$$

где C_e – равновесная концентрация вакансий в пленке при плоской свободной поверхности, $q_+ = (\alpha + \sqrt{\alpha^2 + 4\omega^2})/2$, $\alpha = Z_V^* E/kT$, т.е. $q>0$. В (4) использовано, что на границе с подложкой $C_V(x, y \to -\infty) = C_e$ (переход к граничному условию при $y \to -\infty$ оправдан для $H >> 1/q_+$), а на поверхности пленки $C_V(x, y=0) = C_e \exp(\Delta\mu/kT)$ (соотношение Гиббса-Томсона [1,4]), где $\Delta\mu$ - изменение химического потенциала вакансий под возмущенной поверхностью пленки:

$$\Delta\mu = -[\Omega\gamma\omega^2 - \frac{2}{3}\Omega(1+\nu)\sigma_\infty\omega + Z_V^* E] a(t)\sin(\omega x)$$

Отметим, что выше пренебрегалось механическими напряжениями, вызываемыми электромиграционным массопереносом [2], что оправдано, поскольку свободная поверхность пленки приводит к их эффективной релаксации [5].

Подставляя выражения (3) и (4) в (2) получим, что $da(t)/dt = \varepsilon(\omega)a(t)$, где

$$\varepsilon(\omega) = \frac{D_S C_S \Omega^2}{kT}\left[\frac{1-\nu}{G}\sigma_\infty^2\omega - \gamma\omega^2 + (EZ_a^*/\Omega)\right]\omega^2 + \frac{D_V C_e \Omega}{kT} q_+ \left[\frac{2}{3}(1+\nu)\sigma_\infty\omega - \gamma\omega^2 - Z_V^* E/\Omega\right]. \quad (5)$$

3. Анализ условий неустойчивости

Выражение (5) позволяет проанализировать условия, при которых поверхность пленки становится неустойчивой. Рассмотрим некоторые случаи.

1. Пусть $\omega = \omega_1$ такое, что вторая скобка в (5) обращается в нуль. Решая получившееся уравнение, находим

$$\omega_{1\pm} = \frac{1}{3\gamma}[(1+\nu)\sigma_\infty \pm \sqrt{(1+\nu)^2\sigma_\infty^2 - 9\gamma Z_V^* E/\Omega}] \quad (6)$$

в случае малых полей таких, что второе слагаемое под радикалом много меньше первого:

$$\omega_{1+} = \frac{2}{3\gamma}(1+\nu)\sigma_\infty,$$

$$\omega_{1-} = \frac{3}{2}\frac{Z_V^* E}{\Omega(1+\nu)\sigma_\infty} = \frac{1}{2}\delta\omega_{1+}, \quad (7)$$

где $\delta = 9\gamma Z_V^* E / \Omega\sigma_\infty^2(1+\nu)^2$, $|\delta| << 1$. Подставляя выражения (7) в (5), получим:

$$\varepsilon(\omega_{1+}) = -\frac{4}{9\gamma}A\omega_{1+}^2(1+\nu)^2\sigma_\infty^2,$$

где $A = D_S C_S \Omega^2 / kT$ и использовано, что в типичных случаях $|\sigma_\infty / G| << 1$ [1]. Из (7) видно, что оба корня положительны, если $\sigma_\infty > 0$ (сжатие) и $E > 0$ (поле направлено по оси y). При этом, поскольку параметр $\delta > 0$, имеем $\varepsilon(\omega_{1\pm}) < 0$, т.е. для обоих волновых чисел (6) возмущение (1) затухает.

Если же $\sigma_\infty < 0$ (растяжение) и $E < 0$ (поле направлено вглубь пленки), то корень $\omega_{1+} < 0$, но $\omega_{1-} > 0$, т.к. в этом случае $\delta < 0$. Таким образом, только ω_{1-} дает решение для волнового числа возмущения (1). Для этого решения, учитывая, что $Z_a^* / Z_V^* < 0$ и $\delta < 0$, из (5) получим:

$$\varepsilon(\omega_{1-}) \sim \omega_{1+}^2(1+\nu)^2\sigma_\infty^2\delta^3(Z_a^* / Z_V^*) > 0,$$

т.е. амплитуда возмущения будет расти со временем с инкрементом $\varepsilon(\omega_{1-}) \sim D_S |E|^3$.

2. Аналогично исследуется случай, когда $\varepsilon(\omega)$ не зависит от транспорта ионов на поверхности пленки. Соответствующие волновые числа ω_2 являются корнями уравнения, получающегося приравниванием к нулю первой скобки в (5):

$$\omega_{2\pm} = (1/2\gamma)\left[(1-\nu)\sigma_\infty^2 / G \pm \sqrt{(1-\nu)^2\sigma_\infty^4 / G^2 + 4\gamma(EZ_a^* / \Omega)}\right] \quad (8)$$

При $E > 0$, учитывая, что $Z_a^* < 0$, находим, что, если выражение под радикалом положительно, то оба решения $\omega_{2\pm} > 0$. Если же $E < 0$, то только $\omega_{2+} > 0$. В последнем случае, при достаточно сильных полях, когда второе слагаемое под радикалом много больше первого, имеем $\omega_{2+} = \sqrt{(|EZ_a^*| / \gamma\Omega)}$, что после подстановки в (5) дает:

$$\varepsilon(\omega_{2+}) \sim D_V |E|^2 (Z_V^* - |Z_a^*|),$$

т.е. плоская поверхность пленки будет неустойчивой, если $Z_V^* > |Z_a^*|$.

3. Рассмотрим случай, когда неустойчивость возникает в некотором диапазоне длин волн. В частности, при $E < 0$ и $\sigma_\infty > 0$ (сжатие) из (5) имеем, что по крайней мере, для волновых чисел, удовлетворяющих условию

$$\omega^2 < (|E| / \gamma\Omega)\min(Z_V^*, |Z_a^*|) \equiv \omega_c^2, \quad (9)$$

обе квадратные скобки в (5) положительны, т.е. поверхность в этом диапазоне длин волн заведомо неустойчива. Величина порогового волнового числа $\omega_c = \omega_c(E) \sim \sqrt{|E|}$.

Используя (9), оценим ω_c для разных значений E. Для типичных металлов $\Omega \approx 10^{-29}$ м³, $\gamma \approx 1$ Дж/м², $Z_V^* \sim |Z_a^*| \sim 5e$ [2,6], $e = 1,6\cdot10^{-19}$ [6] имеем

$$\lambda_c \equiv 2\pi / \omega_c \approx 2\cdot10^{-5} / \sqrt{|E|} \text{ м}, \quad (10)$$

где E берется в (В/м). Если, например, $|E| = 4\cdot10^2$ В/м, что для удельной проводимости $\sigma = 1/\rho \sim 10^7$ См м⁻¹ (Fe, W, Mo. Ni, Al, Cu) дает плотность тока $j \sim 10^9$ А/м², то $\lambda_c = 1$ мкм, т.е. при такой плотности тока возмущения вида (1) с длинами волн $\lambda > \lambda_c = 1$ мкм будут нарастать. С уменьшением напряженности поля (и плотности тока) область неустойчивости сдвигается в более длинноволновой диапазон.

Более общее, чем (9), (10), соотношение получится, если записать условие одновременной положительности обеих скобок в (5) в виде

$$\omega < \min\{\omega_{1+}, \omega_{2+}\} \quad (11)$$

где ω_1, ω_2- положительные корни трехчленов в этих скобках, определяемые выражениями (6) и (8) при $E<0$ и с учетом того, что $Z_a^* < 0$, $Z_V > 0$. Условие (11) дает больший диапазон волновых чисел, отвечающих росту возмущения (1), и переходит в (9) при достаточно сильных полях. Учитывая далее, что $|\sigma_\infty| \sim 10$ МПа [1] и $G \sim 10^2$ ГПа [6], т.е $|\sigma_\infty / G| << 1$, получим, что $\omega_{2+} < \omega_{1+}$. Тогда условие (11) примет вид:

$$\lambda > 4\pi\gamma\left[\frac{1-\nu}{G}\sigma_\infty^2 + \sqrt{\left(\frac{1-\nu}{G}\right)^2\sigma_\infty^4 + 4\gamma|EZ_a^*| / \Omega}\right]^{-1} \equiv \lambda_c^*(E).$$

Оценим зависимость величины $\lambda_c^*(E)$ для типичных значений остальных параметров, записывая ее следующим образом:

$$\lambda_c^*(E) = \lambda_0 / [1 + \sqrt{1 + |E| / E_0}] = \lambda_0 / [1 + \sqrt{1 + |j| / j_0}] \quad (12)$$

где $\lambda_0 = 4\pi\gamma G / (1-\nu)\sigma_\infty^2$, $j_0 = \sigma E_0$, $E_0 = 4\pi^2\gamma\Omega / \lambda_0^2|Z_a^*|$

Подставив сюда $G \approx 100$ ГПа, $|\sigma_\infty| \approx 10$ МПа [1], $|Z_a^*| \approx 5e$, $\nu \approx 1/2$, $\Omega \approx 10^{-29}$ м³, $\gamma \approx 1$ Дж/м² и $\sigma \sim 10^7$ См м⁻¹ [6], получим $\lambda_0 = 2.5\cdot10^{-2}$ м, $E_0 = 10^{-6}$ В/м и $j_0 \sim 10$ А/м2. Отсюда видно, что выражение (12) более точно, чем (10), описывает зависимость пороговой длины волны $\lambda_c^*(E)$ от поля при $|E| \le 10E_0$. В этом случае $\lambda_c^* \sim \lambda_0 / 5 \sim (10^{-3} \div 10^{-2})$ м.

4. Еще более общий анализ знака выражения (5) должен учитывать также соотношение величин коэффициентов поверхностной и объемной диффузии, D_S и D_V. Для простоты будем считать, что в выражении для q_+ (см. (4)) выполняется условие «слабого» поля $\alpha << 2\omega$, т.е.

$$\left|E\right| << 2\omega kT / Z_V^* \equiv E_1 \qquad (13)$$

при котором $q_+=\omega$ и $\varepsilon(\omega)$ можно записать в виде:

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\Omega^2}{kT} D_S C_S \omega(-F\omega^3 + P\omega^2 + Q\omega - S),$$

где

$$F = \gamma,\ P = (1-\nu)\sigma_\infty^2 / G - \beta\gamma / \Omega,$$

$$Q = Z_a^* E / \Omega + 2\beta(1+\nu)\sigma_\infty / 3\Omega$$

$$S = \beta Z_V^* E / \Omega^2,\ \ \beta = (D_V C_e / D_S C_S).$$

Отметим, что в Q полевое слагаемое оказывается основным, для полей

$$\left|E\right| \geq (2/3)(1+\nu)\left|\sigma_\infty\right| \beta / \left|Z_a^*\right| \equiv E_2 \qquad (14)$$

Оценим поля E_1 и E_2,. Для этого используем экспериментальные данные по величине параметра β, приведенные в [1] для пленок ряда материалов (NiAl, Ni, Cu, α-Fe). Согласно [1] в пленках α-Fe параметр $\beta = D_V C_e / D_S C_S \approx 10^{-24}$ м^2 и практически не зависит от температуры. Подставляя эту величину в (14) и используя для других параметров те же значения, что и при оценках выше, получим $E_2 \sim 10$ В/м (плотность тока $j \sim 10^8$ А/м^2). В то же время из (13) для комнатных температур (κT = 0.025 эВ) имеем оценку $E_1 \approx (0.05/\lambda)$ В/м. Тогда в диапазоне длин волн $\lambda = (10 \div 10^3)$ мкм поле $E_1 \approx 5(10^3 \div 10)$ В/м >> E_2, т.е. имеется область полей E таких, что

$$E_2 \leq \left|E\right| << E_1$$

Не останавливаясь далее на математических деталях, укажем, что, во всяком случае, для таких полей справедлив следующий результат: если значения параметров системы таковы, что при E = 0 существует область значений волновых чисел, в которой $\varepsilon(\omega) > 0$, т.е. поверхность пленки неустойчива, то при E > 0 эта область будет сужаться с ростом E, а при E < 0 – расширяться с ростом $\left|E\right|$.

5. Наконец, рассмотрим кратко случай, когда механические напряжения, генерируемые границей с подложкой, пренебрежимо малы, т.е. $\sigma_\infty = 0$. Тогда из (5) получим, что $\varepsilon(\omega) < 0$ при $E > 0$ и любых ω, а при $E < 0$ появляется область ω, где $\varepsilon(\omega) > 0$. При выполнении условия

$$\left|E\right| >> 2\omega kT / Z_V^* \equiv E_1$$

обратного условию (13), выражение (5) сводится к биквадратному трехчлену по ω, знак которого можно проанализировать аналитически. Согласно оценкам, сделанным выше, при комнатных температурах $E_1 \approx (0.05/\lambda)$ В/м, т.е., например, в области длин волн $\lambda \sim 10^2$ мкм пороговое поле $E_1 \sim 10$ В/м, а плотность тока $j_1 \sim 10^8$ А/м^2. Выполненный анализ показал, что при таких плотностях токов область длин волн, для которых $\varepsilon(\omega) > 0$, определяется условием

$$\lambda > \lambda_c(E) \sim 1/\sqrt{\left|E\right|}.$$

т.е. волновой диапазон неустойчивости увеличивается с ростом величины поля.

4. Заключение

Развита модель, описывающая влияние электрического тока на кинетику развития неустойчивости свободной поверхности проводящей пленки на подложке. Сформулированы, проанализированы и решены уравнения, описывающие потоки ионов и вакансий, инициированные пространственно-периодическим возмущением поверхности пленки. Получено уравнение, задающее скорость изменения положения точек возмущенной поверхности. В результате решения уравнений модели в линейном по амплитуде возмущения приближении получена экспоненциальная зависимость амплитуды возмущения от времени. Устойчивость поверхности определяется знаком показателя экспоненты, зависящего от характеристик механического напряжения на границе и токовой нагрузки, а также от длины волны возмущения.

В ряде случаев аналитически выделены области длин волн, при которых амплитуда возмущения нарастает, т.е. плоская поверхность пленки неустойчива. Получены условия возникновения таких областей и зависимости их границ от величины и направления электрического поля (плотности тока) и механического напряжения на границе с подложкой. Даны оценки значений плотностей токов, приводящих к возникновению неустойчивости поверхности в разных диапазонах длин волн возмущения.

Полученные результаты представят интерес при разработке способов подавления развития неустойчивости формы пленок, обусловленной взаимодействием с подложкой. Это важно для совершенствования технологических процессов производства микро- и наноэлектронных структур и устройств, например многослойных элементов нано- и микротранзисторов или систем многослойной металлизации микро- и наноэлектронных интегральных схем, а также для обеспечения их оптимального и более надежного функционирования.

Литература

1. R. Panat, J. Hsia, D.G. Cahill. J. Appl. Phys. **97**, 013521 (2005).
2. K.A. Valiev, R.V. Goldstein. Yu.V. Zhitnikov et al. Microelektronika. **38**, 364 (2009). (in Russian) [К.А. Валиев, Р.В. Гольдштейн, Ю.В. Житникови др. Микроэлектроника. **38**. 364 (2009).]
3. P. Vasudev., R.J. Asaro, W.A. Tiller. Acta Metallur. **23**, 341 (1975).
4. Yu.M. Petrov. Clusters and small particles. M.:Nauka (1986) 367 p. (in Russian).
5. K.N. Tu. J. Appl. Phys. **94**, 5452 (2003).
6. Handbook of Physical Quantities, ed. by Grigoriev I.S. and Meilikhov E.Z., M.:Energoatomizdat. (1991). (in Russian)