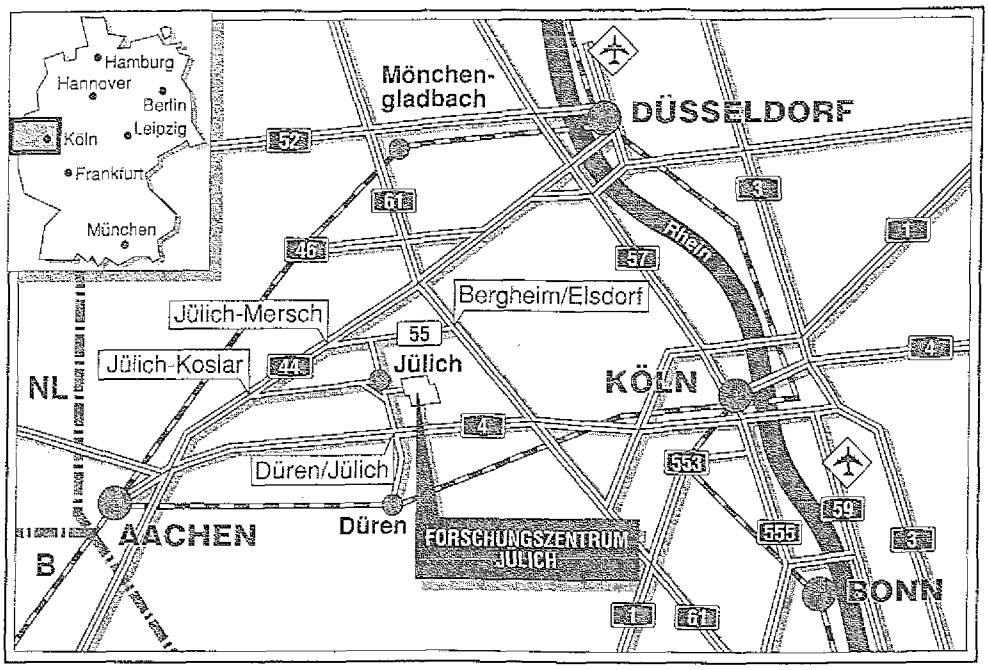
FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH KFA

Institut für Festkörperforschung

Mechanische Relaxationsmessungen an Al-Metallisierungsschichten

Martin Prieler



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2780
ISSN 0944-2952
Institut für Festkörperforschung Jül-2780
D 82 (Diss. RWTH Aachen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

Mechanische Relaxationsmessungen an Al-Metallisierungsschichten

Martin Prieler

Inhaltsverzeichnis

I. Einleitung und Motivation 1
II. Theoretische Grundlagen 2
II.1. Mechanische Relaxation 2
II.1.1 Anelastizität 2
II.1.2 Dämpfung im Schicht/Substratverbund 4
II.1.2.1 Vorbemerkungen 4
II.1.2.2 Biegeschwingung 6
II.1.2.3 Torsionsschwingung 7
II.1.3 Bestimmung der thermoelastischen Dämpfung 9
II.1.4 Einfluß der Gasdämpfung 10
III. Experiment 11
III.1 Apparatur zur Messung der Inneren Reibung 11
III.1.1 Meßprinzip 11
III.1.2 Unterdrückung parasitärer Dämpfungen 12
III.1.3 Probenpräparation 13
III.1.4 Aufbau der Apparatur 14
III.2 Probenherstellung und Charakterisierung 16
III.2.1 Substratmaterial und Herstellung der Zwischenschichten 16
III.2.2 Schichtdeposition 17
III.2.3 Herstellung der strukturierten Proben 17
III.2.4 Probencharakterisierung 18
IV. Experimentelle Ergebnisse 19
IV.1 Ergebnisse der begleitenden Untersuchungen 19
IV.1.1 Texturanalyse 19
IV.1.2 REM-Untersuchungen 20
IV.1.3 TEM-Untersuchungen 24
IV.2 Auflösung der Meßapparatur 26
IV.3 Substratdämpfung 27
IV.4 Untergrunddämpfung der Schicht 29
IV.5 Auswertebeispiel 33
IV.6 Ergebnisse der Aufdampfschichten 35
IV.6.1 Al auf Si/SiO2 und Si/MoSi2.2 35
IV.6.2 Al auf Si/SiO2/Au und Si/Ti/TiN 46
IV.7 Ergebnisse der strukturierten Proben 47

V. Diskussion 55
V.1 Zusammenfassung der Meßergebnisse 55
V.2 Erklärung der Dämpfungsmaxima durch Korngrenzengleiten 56
V.2.1 Das Kê-Maximum 56
V.2.1.1 Experimentelle Ergebnisse 56
V.2.1.2 Modellvorstellung zur Relaxationsstärke 57
V.2.1.3 Modellvorstellung der Relaxationszeiten 62
V.3 Diskussion der Meßergebnisse 66
V.3.1 Interpretation der Maxima in Schichten durch Korngrenzengleiten 66
V.3.1.1 Relaxationsstärke in Filmen auf Substraten 66
V.3.1.2 Relaxationszeit in Filmen auf Substraten 68
V.3.1.3 Zusammenfassung der Modellvorstellungen 69
VI. Zusammenfassung 70
VII. Anhang 72
VIII. Literaturverzeichnis 74

I. Einleitung und Motivation

Bei der Messung der Inneren Reibung in polykristallinen Aluminiumdrähten fand Kê /1,2/ ein Dämpfungsmaximum, das in einkristallinem Al nicht beobachtet wurde. Die Auswertung des Maximums lieferte eine Aktivierungsenergie von 1,4 eV, die im Bereich der Aktivierungsenergie der Volumenselbstdiffusion in Al liegt. Dagegen wurden von Berry und Pritchet /3/ sowie von Vollkommer et al. /4,5/ in dünnen Al–Legierungsfilmen auf Si–Substraten charakteristische Dämpfungsmaxima gefunden, aus denen sich die für die jeweilige Legierung bekannte Aktivierungsenergie für die Korngrenzendiffusion bestimmen ließ. In beiden Fällen wird argumentiert, daß Korngrenzenprozesse dem Dämpfungsmaximum zugrunde liegen, obwohl zwei verschiedene Aktivierungsenergien gefunden wurden.

Ferner fanden Bohn und Su /6/ Hinweise, daß aus den Dämpfungsmaxima Rückschlüsse auf die Haftung des Films auf dem Substrat gezogen werden können.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, einen Beitrag zur Aufklärung der Diskrepanz der Ergebnisse aus /1,2/ bzw. /3–5/ unter Berücksichtigung des Einflusses der Schicht/Substrat–Grenzschicht zu liefern. Dazu wurden Al–Schichten verschiedener Schichtdicke auf Si–Substraten bei verschiedenen Aufdampftemperaturen hergestellt. Ferner wurde die Zwischenschicht zwischen Al–Film und Substrat variiert (thermisches SiO_2, $MoSi_{2.2}$, Au, Ti/TiN). Damit konnte sowohl die Korngröße der Schicht als auch die Haftung verändert werden. Außerdem wurden aufgestäubte AlSiCu–Schichten in schmale Streifen strukturiert, um so eine möglichst definierte Kornstruktur zu erreichen.

Neben der Inneren Reibung wurden als begleitende Untersuchungsmethoden die Elektronenmikroskopie (Raster–Elektronen–Mikroskopie REM und Transmissions–Elektronen–Mikroskopie TEM), die Raster–Kraft–Mikroskopie sowie zur Texturanalyse die Röntgenstreuung verwendet.

II. Theoretische Grundlagen

II.1. Mechanische Relaxation

II.1.1 Anelastizität

Legt man eine (konstante) mechanische Spannung σ_0 an einen idealen elastischen Festkörper an, so antwortet dieser nach dem Hookeschen Gesetz mit einer Dehnung $\epsilon = E^{-1} \cdot \sigma_0$ (E: Elastizitätsmodul). Diese Dehnung erfolgt instantan (d.h. ohne Zeitverzögerung), ist reversibel (d.h. nimmt man die Spannung weg, so erhält man den Ausgangszustand des Systems) und linear in σ_0 (d.h $\epsilon \propto \sigma_0$). Spielen zeitabhängige Prozesse eine Rolle, d.h. die Dehnungsänderung des Festkörpers erfolgt nicht mehr (ausschließlich) instantan, so spricht man von Anelastizität. Anelastische Dehnungsänderungen eines Festkörpers sind wie elastische Prozesse reversibel und linear in σ_0. Von plastischer Verformung spricht man, wenn die Verformungen bleibend sind, d.h. der Ausgangszustand des Systems wird nach Wegnehmen der Spannung nicht mehr erreicht. Diese Verformungen können linear in σ_0 sein, müssen es aber nicht mehr.

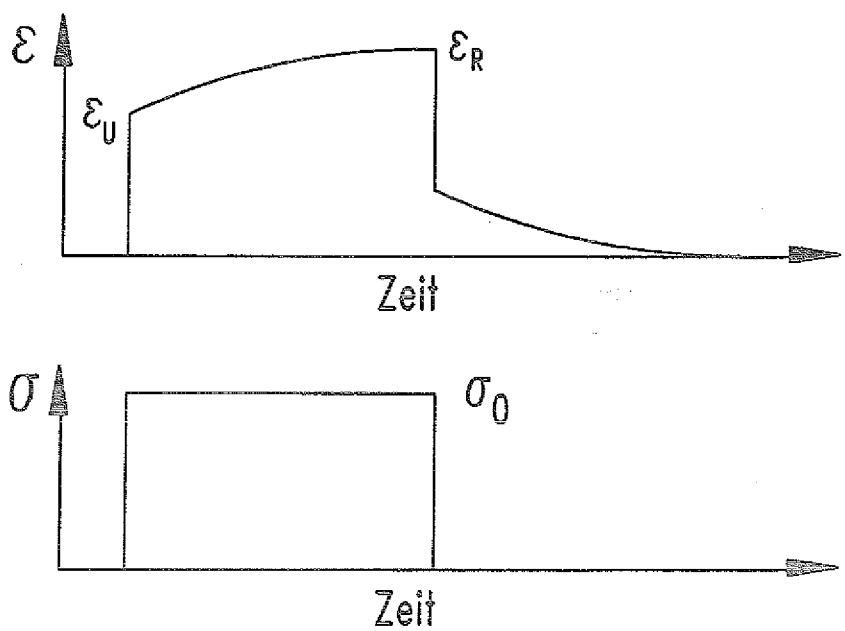


Abb.2.1: Anelastische Dehnungsänderung eines Festkörpers unter konstanter mechanischer Spannung σ_0. Die Indices U und R bezeichnen die unrelaxierte und die relaxierte Dehnung ϵ.

In Abb.2.1 ist das Verhalten eines anelastischen Festkörpers unter der Wirkung einer konstanten Spannung σ_0 dargestellt. Der Festkörper antwortet zunächst instantan mit der elastischen Dehnung $\epsilon_U = E_U{}^{-1} \cdot \sigma_0$ (der Index U kennzeichnet den unrelaxierten Zustand des Systems). Danach relaxiert die Dehnung vom Wert ϵ_U auf den Wert ϵ_R (der Index R kennzeichnet den relaxierten Zustand). Nimmt man die

Spannung wieder weg, so relaxiert die Dehnung instantan um den Wert ϵ_U, um dann anelastisch wieder auf die Ausgangsdehnung zurückzukehren.

Dieses Verhalten läßt sich durch eine Zeitabhängigkeit des Elastizitätsmoduls E beschreiben. Für Systeme mit einer einheitlichen Relaxationszeit τ gilt /7/:

$$E(t) \equiv \sigma_0/\epsilon(t) = E_U + (E_R - E_U) \cdot (1 - e^{-t/\tau}) \qquad \text{(Gl.2.1)}$$

$E_R - E_U$ beschreibt dabei die anelastische Änderung des Elastititätsmodul E_U. Man definiert die Relaxationsstärke zu $\Delta \equiv (E_U - E_R)/E_R$.

Das anelastische Verhalten des Festkörpers beruht auf einer Wechselwirkung von Kristalldefekten mit der äußeren Spannung. Im allgemeinen sind Defektbewegungen im Festkörper thermisch aktiviert, d.h. die Relaxationszeit τ läßt sich durch

$$\tau = \tau_0 \cdot e^{H/kT} \qquad \text{(Gl.2.2)}$$

beschreiben, wobei H die zugehörige Aktivierungsenergie (z.B. für einen atomaren Platzwechsel), k die Boltzmann-Konstante und T die absolute Temperatur darstellen. τ_0 beschreibt die Relaxationszeit im Grenzfall unendlich hoher Temperatur.

Bisher wurde die elastische Nachwirkung eines Festkörpers unter einer konstanten Spannung σ_0 beschrieben. Häufig ist die Relaxationsstärke Δ klein gegen 1, d.h. $E_U - E_R$ ist klein gegen den "Untergrund" E_R und so in einem Nachwirkungsexperiment schlecht zu bestimmen. Die dynamische Methode der Inneren Reibung gestattet einen direkten Zugang zu Δ. Wechselwirken die thermisch aktivierten Kristalldefekte mit einem zeitlich periodischen äußeren Spannungsfeld, so können sie gezwungen werden, sich im Festkörper zusätzlich zur (regellosen) thermischen Bewegung gerichtet zu bewegen. Diese Bewegung verbraucht Energie. Der Energieverlust ist dabei abhängig von der Relation zwischen der Frequenz des oszillierenden Spannungsfelds ω und der Relaxationszeit τ. Mißt man nun die Dämpfung Q^{-1} einer Probenschwingung der Frequenz ω, so ergibt sich für $\Delta \ll 1$ /7/:

$$Q^{-1} = \frac{\delta W}{2\pi W} = \Delta \cdot \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \qquad \text{(Gl.2.3)}$$

$\delta W/W$ beschreibt dabei den relativen Verlust an mechanischer Energie pro Schwingungszyklus. Die Debye-Verteilung nach Gl.2.3 ist symmetrisch in $\log(\omega\tau)$ bzgl. seiner Lage bei $\omega\tau = 1$, die Halbwertsbreite beträgt 1,1439 in $\log(\omega\tau)$ (s. Abb.2.2). Nach Gl.2.2 entspricht die $\log(\omega\tau)$-Achse in Abb.2.2 einer inversen Temperaturachse. Bei niedrigen Temperaturen sind die Defekte eingefroren und

können dem äußeren Spannungsfeld nicht folgen. Bei hohen Temperaturen ist die Beweglichkeit so groß, daß die Defekte dem Spannungsfeld instantan folgen. In beiden Fällen tritt keine Dämpfung auf. Ist jedoch die Temperatur so, daß die Defektbewegung mit dem Spannungsfeld in "Resonanz" ($\omega\tau=1$) ist, so wird der Energieverlust maximal, ein Dämpfungsmaximum tritt auf. Liegt ein Spektrum von Relaxationszeiten vor, so wird das Maximum verbreitert, die Höhe dementsprechend reduziert.

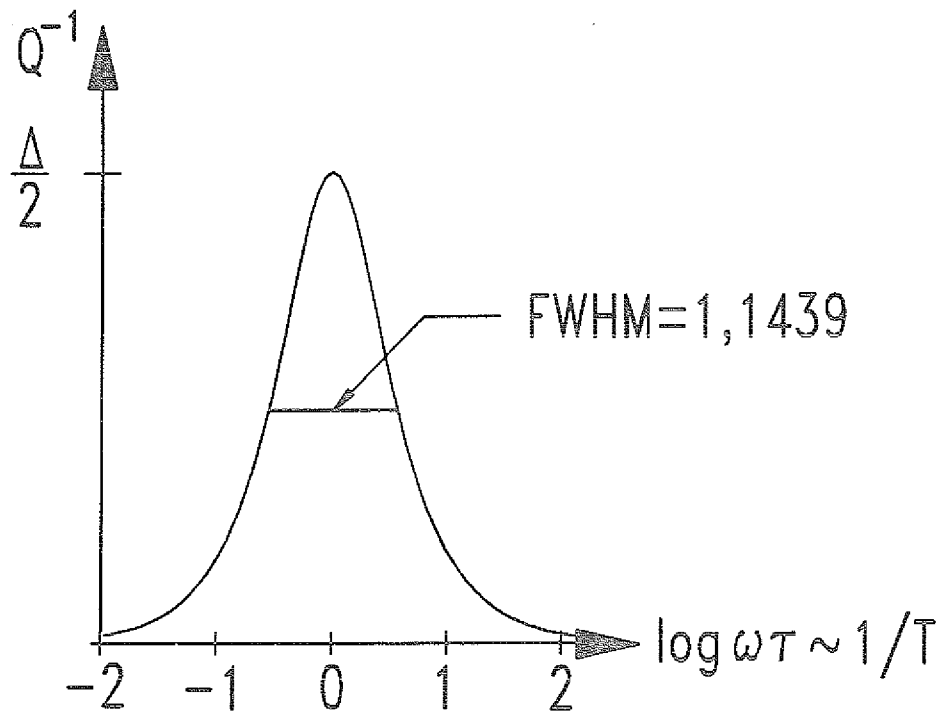


Abb.2.2: Dämpfungsänderung eines idealen anelastischen Festkörpers nach Gl.2.3.

II.1.2 Einfluß der Schicht auf die Gesamtdämpfung im Schicht/Substratverbund

II.1.2.1 Vorbemerkungen

Die Gesamtdämpfung eines Schicht/Substratverbunds läßt sich für $W_F \ll W_S$ ($W_{F,S}$ sind die mechanischen Energien im Film und Substrat), d.h für einen dünnen Film auf einem dicken Substrat, darstellen zu /7/:

$$Q^{-1}_{mess} = (\delta W_S+\delta W_F)/(W_S+W_F) \approx Q^{-1}_{S,tot} + (W_F/W_S)\cdot Q^{-1}_{F,tot} \quad \text{(Gl.2.9)}$$

wobei die Indices S,F das Substrat bzw. den Film bezeichnen. Im hier vorliegenden Fall haben die Dämpfungen $Q^{-1}_{S,tot}$ und $Q^{-1}_{F,tot}$ verschiedene

Beiträge: die totale Substratdämpfung $Q^{-1}_{S,tot}$ setzt sich aus der intrinsischen Dämpfung Q^{-1}_{S} und der thermoelastischen Dämpfung Q^{-1}_{th} zusammen, die Gesamtdämpfung $Q^{-1}_{F,tot}$ des Films setzt sich aus dem Untergrund $Q^{-1}_{F,ug}$ und dem zum Relaxationsmaximum führenden Anteil Q^{-1}_{F} additiv zusammen. Dies läßt sich durch das in Abb.2.3 dargestellte Ersatzschaltbild beschreiben.

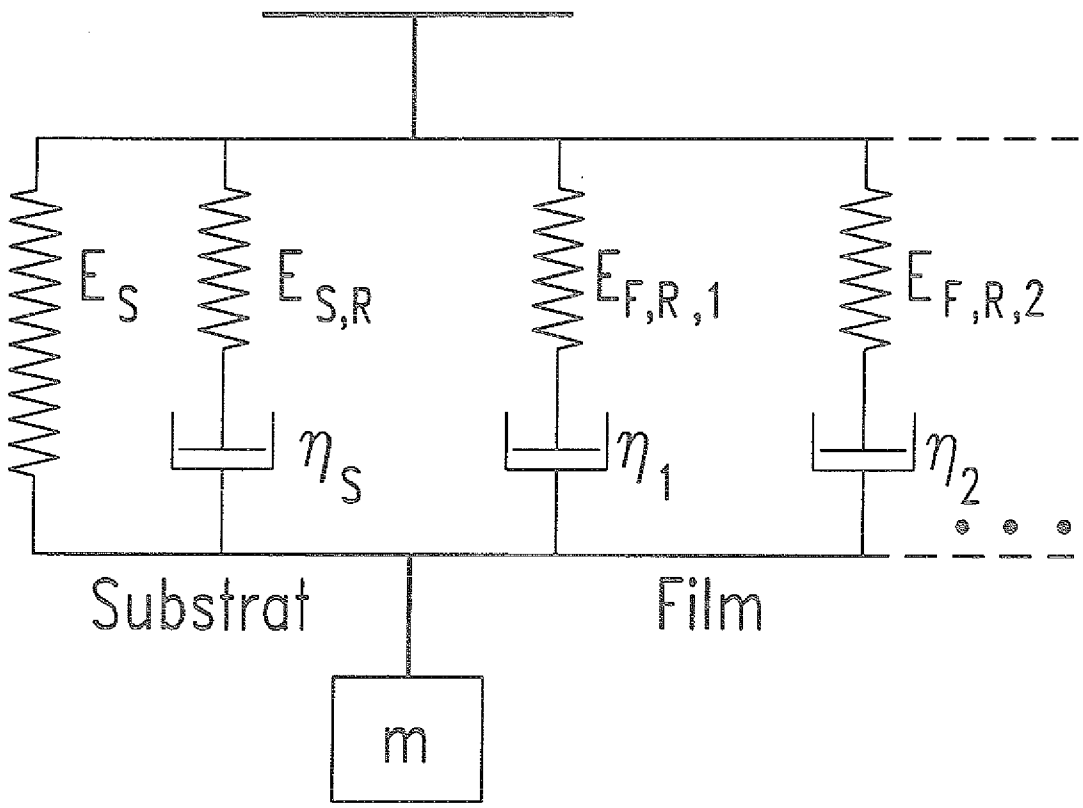


Abb.2.3: Ersatzschaltbild für die Dämpfung eines Schicht/Substratverbunds.

Das Ersatzschaltbild zeigt links die elastische Hauptfeder des Systems. Diese repräsentiert den Elastizitätsmodul des Substrats. Die Substratdämpfung wird durch den relaxierten Modul des Substrats $E_{S,R}$ und durch ein Dämpfungsglied η_S dargestellt. Der Film wird durch ein Spektrum an Relaxationen (in der Abb.2.3 sind nur zwei eingezeichnet) beschrieben: durch Federn, die die relaxierten Moduli $E_{F,R,1}$ und $E_{F,R,2}$ darstellen und durch zugehörige Dämpfungsglieder η_1 und η_2. Jede Kombination $E_{F,R,i}$ und η_i repräsentiert eine Zeitkonstante $\tau_i = \eta_i/E_{F,R,i}$. Wird diese Anordnung um eine träge Masse m erweitert, so erhält man ein schwingungsfähiges System.

Die Dehnungsverteilung und damit auch der Quotient der mechanischen Energien im Film und Substrat W_F/W_S ist abhängig von der Schwingungsmode. Somit muß W_F/W_S für jede Schwingungsmode gesondert berechnet werden. Dabei wird angenommen, daß der Anteil der anelastischen Energie an der Gesamtenergie klein ist gegen den der elastischen Energie (d.h. $\Delta \ll 1$).

II.1.2.2 Biegeschwingung

Die Verformung der Probe ist schematisch in Abb.2.4 dargestellt. Die Integrale

$$2 \cdot W_{F,S} = \int \sigma_{F,S} \cdot \epsilon_{F,S} \, dV_{F,S} = E_{F,S} \cdot \int \epsilon^2_{F,S} \, dV_{F,S} \qquad \text{(Gl.2.10)}$$

($V_{F,S}$ bezeichnet dabei das Film– bzw. Substratvolumen, $E_{F,S}$ den orientierungsabhängigen Elastizitätsmodul von Film und Substrat) sind zur Bestimmung der Anteile von Film und Substrat zu lösen. Bei den hier auftretenden Schwingungsamplituden von 1 μm kann man annehmen, daß ϵ_{xx} linear in z mit $\epsilon_{xx} \propto z - z_0$ ist. z_0 beschreibt dabei die durch die Schwingung gegebene neutrale Faser. Falls $t_F \ll t_S$ ist, liegt diese bei $z_0 = 1/2 \cdot t_S$. Unter diesen Bedingungen ergibt sich /7/:

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 3 \frac{t_F \cdot E_F}{t_S \cdot E_S} \cdot Q^{-1}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.11)}$$

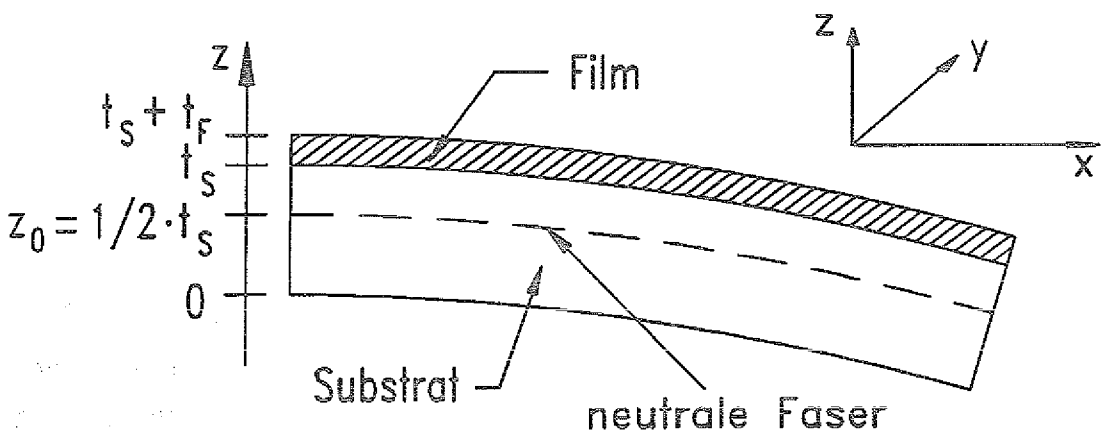


Abb.2.4: Schematische Darstellung der Probe in der Biegeschwingung. z_0 beschreibt die Lage der durch die Schwingung gegebenen neutralen Faser.

Es stellt sich die Frage, welche Elastizitätsmoduli in die Rechnung eingehen und ob diese noch durch die Querkrümmung der Probe korrigiert werden müssen. Nach /8/ ist der effektive Modul E' durch $E' = E \cdot (1 - k\nu)/(1 - \nu)$ gegeben, wobei k von der Probengeometrie (s. Abb.3.2), der Krümmung der Probe bei der Schwingung (typische Auslenkungen 1 μm) und von der Querkontraktionszahl des Al und Si ($\nu \approx 0{,}3$) abhängt. Unter den in diesen Experimenten vorliegenden Bedingungen bestimmt sich k zu 1 /8/, also E' = E, d.h., daß der Spannungszustand in der Biegeschwingung einem uniaxialen Zug in Probenlängsrichtung entspricht.

Die Elastizitätsmoduli sind i.a. richtungsabhängig. Die hier untersuchten Al–Filme haben <111>–Fasertextur (s. §IV.1), die Orientierung in Probenlängsrichtung ist beliebig. Zwei niedrig indizierte und zu [111] senkrechte kristallographische Richtungen sind dann $[11\bar{2}]$ und $[1\bar{1}0]$. Nach /9/ berechnen sich die richtungsabhängigen Elastizitätsmoduli aus den elastischen Konstanten S_{ij} zu:

$$E^{-1} = S_{11} - 2\cdot\{ (S_{11}-S_{12})-1/2\cdot S_{44} \} \cdot (l^2m^2+m^2n^2+l^2n^2) \qquad \text{(Gl.2.12)}$$

l, m, n sind dabei die Richtungskosinu bezüglich der kristallographischen Hauptachsen. Mit den Daten für Al nach /10/ ergibt sich:

$$E_{[11\bar{2}]} = E_{[1\bar{1}0]} = 7{,}1\cdot 10^{10}\ \mathrm{N/m^2},\ E_{[111]} = 7{,}5\cdot 10^{10}\ \mathrm{N/m^2} \qquad \text{(Gl.2.13)}$$

Die Richtungsabhängigkeit des Elastizitätsmoduls ist also beim elastisch nahezu isotropen Al gering. Beim Si ist diese Abhängigkeit im Prinzip größer. In dieser Arbeit wurden jedoch <100> und <111>–orientierte Si-Wafer benutzt. Die Wafer wurden so geschnitten, daß die Probenlängsrichtung eine $[\bar{1}10]$–Richtung (<100>–Orientierung) oder eine $[1\bar{1}0]$– bzw. $[11\bar{2}]$–Richtung (<111>–Orientierung) ist. Damit ergeben sich die zugehörigen Elastizitätsmoduli des Si mit den Daten aus /10/ zu:

$$E_{[\bar{1}10]} = E_{[1\bar{1}0]} = E_{[11\bar{2}]} = 16{,}8\cdot 10^{10}\ \mathrm{N/m^2} \qquad \text{(Gl.2.14)}$$

Somit sind alle infrage kommenden Moduli gleich. Damit ist für die Biegeschwingung $W_F/W_S \approx 1{,}3\cdot t_F/t_S$ (weil $3E_F/E_S \approx 1{,}3$ ist) und endgültig:

$$Q^{-1}{}_{mess} = Q^{-1}{}_{S,tot} + 1{,}3\cdot t_F/t_S\cdot Q^{-1}{}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.15)}$$

II.1.2.3 Torsionsschwingung

Die Verformung der Probe während der Schwingung ist schematisch in Abb.2.5 dargestellt. Die Integrale

$$2\cdot W_{F,S} = \int \sigma_{F,S}\cdot\epsilon_{F,S}\, dV_{F,S} = G_{F,S}{}^{-1}\cdot \int \sigma^2{}_{F,S}\, dV_{F,S} \qquad \text{(Gl.2.16)}$$

sind zu lösen ($G_{F,S}$: orientierungsabhängiger Schermodul von Film bzw. Substrat). Dazu ist zunächst die Spannungsverteilung $\sigma_{F,S}$ zu bestimmen. Die hier verwendete Probe kann durch eine langgestreckte Ellipse mit den Halbachsen b (y–Richtung, Probenquerrichtung) und a (z–Richtung, Probenhöhe) im Grenzfall $a \ll b$

beschrieben werden. Diese Torsion ist in /11/ beschrieben. Man erhält die einzige von Null verschiedene Komponente des Spannungstensors $\sigma_{yx} = 2 \cdot G_{F,S} \cdot \varphi \cdot z$ (φ ist dabei der Torsionswinkel). Integration gemäß Gl.2.16 ergibt $W_F/W_S = 3 \cdot (G_F \cdot t_F)/(G_S \cdot t_S)$ und damit (für $t_F \ll t_S$):

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 3 \frac{t_F \cdot G_F}{t_S \cdot G_S} \cdot Q^{-1}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.17)}$$

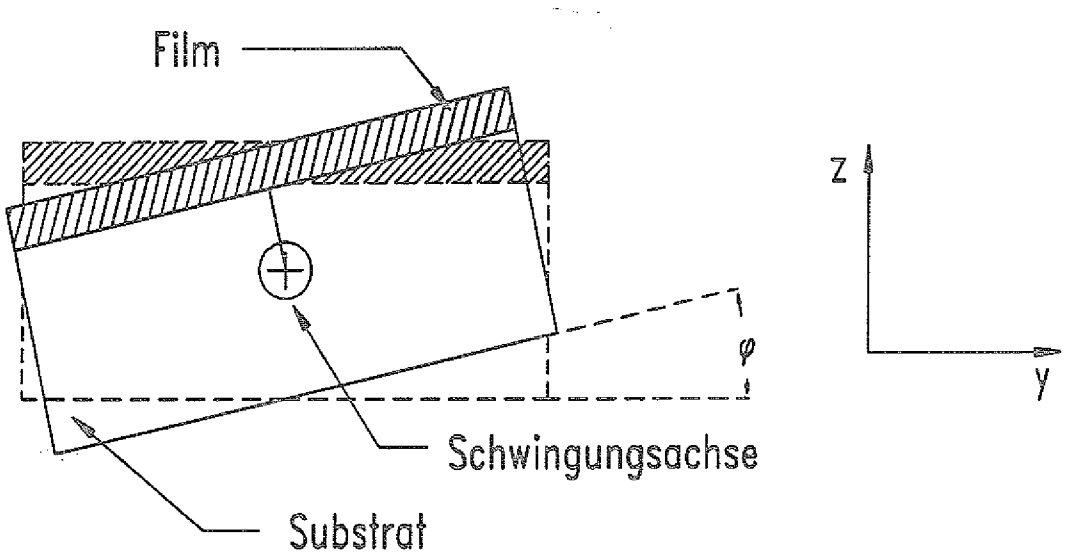


Abb.2.5: Schematische Darstellung der Probengeometrie in der Torsionsschwingung.

Die orientierungsabhängigen Schermoduli berechnen sich nach /9/ aus den elastischen Konstanten S_{ij} zu:

$$G^{-1} = S_{44} - 2 \cdot \{ (S_{11} - S_{12}) - 1/2 \cdot S_{44} \} \cdot (l^2m^2 + m^2n^2 + l^2n^2) \qquad \text{(Gl.2.18)}$$

Die hier zu benutzenden Schermoduli sind die der Probennormalrichtung. Die zugehörigen Zahlenwerte ergeben sich nach /10/ zu:

$$G_{[111],Al} = 3{,}0 \cdot 10^{10}\ N/m^2$$
$$G_{[100],Si} = 7{,}9 \cdot 10^{10}\ N/m^2,\ G_{[111],Si} = 9{,}7 \cdot 10^{10}\ N/m^2 \qquad \text{(Gl.2.19)}$$

Für die <100>-orientierten Wafer ($Si/MoSi_{2.2}$ und strukturierte Proben) ergibt sich somit:

$$Q^{-1}{}_{mess} = Q^{-1}{}_{S,tot} + 1{,}14 \cdot t_F/t_S \cdot Q^{-1}{}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.20)}$$

Für die <111> –orientierten Wafer (Si/SiO_2) ergibt sich:

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 0{,}92 \cdot t_F/t_S \cdot Q^{-1}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.21)}$$

Die bisher angestellten Überlegungen gelten nur für die volle Bedeckung des Substrats durch den Film. Werden, wie in dieser Arbeit, aus dem Film schmale Streifen strukturiert (s. §III.2.3), so müssen Gl.2.11 und Gl.2.17 noch mit dem Verhältnis der Flächen von Film und Substrat A_F/A_S korrigiert werden.

Damit ergibt sich als endgültige Formel zur Beschreibung der gemessenen Dämpfung :

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 3\,\frac{t_F \cdot M_F \cdot A_F}{t_S \cdot M_S \cdot A_S}\; Q^{-1}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.22)}$$

wobei für M der dem Schwingungszustand entsprechende Modul eingesetzt wird.

An dieser Stelle sollte angemerkt werden, daß Q^{-1}_F eine Hilfsgröße ist, die nicht ohne weiteres auf einen freitragenden Film übertragen werden kann, wenn der dem Maximum zugrunde liegende Prozeß durch das Substrat verursacht wird.

II.1.3 Bestimmung der thermoelastischen Dämpfung

Die thermoelastische Dämpfung beruht auf dem sog. "thermoelastische Effekt". Legt man eine uniaxiale Spannung an einen Draht an, so erhält man eine Temperaturänderung unter Einfluß der Spannung /12/. Diese beruht auf einer Änderung des Phononenspektrums unter Kompression bzw. Dilatation. Bei der Biegeschwingung tritt so Relaxation durch den Wärmefluß von heißeren (komprimierten) Teilen der Probe zu kälteren (gedehnten) Teilen auf. Bei der Torsionsschwingung tritt dieser Effekt nicht auf, weil es sich hierbei um eine reine Scherverformung handelt, bei der keine Volumenänderung auftritt. Für die Biegeschwingung ergibt sich die thermoelastische Dämpfung nach /12/ zu :

$$Q^{-1}_{th} = \frac{E_U\, \alpha^2\, T}{c_p} \cdot \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \qquad \text{(Gl.2.23)}$$

(α ist der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient, c_p die spezifische Wärme bei konstantem Druck und T die absolute Temperatur), wobei sich τ über die Probendicke t und die thermische Diffusionskonstante $D_{th} = K_{th}/c_p$ (K_{th} ist die Wärmeleitfähigkeit) zu

$$\tau = t^2/\pi^2 \cdot D_{th} \qquad \text{(Gl.2.24)}$$

definiert.

In der hier vorliegenden Arbeit ist die Schichtdicke t_F immer viel kleiner als die Substratdicke t_S. Somit braucht für die Berechnung der thermoelastischen Dämpfung nur das Substrat berücksichtigt werden.

Mit den folgenden Daten für Si /10/ :

$E_{U<111>}$ (300 K) = $19 \cdot 10^{10}$ N/m^2,	$E(T)=E_U\,(1-7\cdot 10^{-5}\cdot(T-300K))$
α (300 K) = $2{,}5\cdot 10^{-6}$ K^{-1},	α (800 K) = $4{,}15\cdot 10^{-6}$ K^{-1}
c_p (300 K) = 1,71 J/cm^{3}K,	c_p (800 K) = 2,19 J/cm^{3}K
D_{th} (300 K) = 0,9 cm^2/s,	D_{th} (800 K) = 0,21 cm^2/s

berechnet sich der thermoelastische Untergrund eines $<111>$-orientierten Wafers für eine Substratdicke von 100 μm und einer Schwingungsfrequenz von 200 Hz zu $1{,}6\cdot 10^{-6}$ bei 300 K und zu $5\cdot 10^{-5}$ bei 800 K. Diese Dämpfungen sind klein gegen die Dämpfungen des Al-Films, wie §IV zeigen wird.

II.1.4 Einfluß der Gasdämpfung

Schwingt ein einseitig eingespannter Balken in einer Gasatmosphäre, so wird vom schwingenden Balken Impuls und Energie auf die Gasatome abgegeben. Die sich so ergebende Dämpfung der Schwingung ergibt sich nach /13/ zu:

$$Q^{-1} = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{-3/2} \cdot \sqrt{\left\{\frac{M}{R_0 \cdot T}\right\}} \cdot \frac{p}{\rho \cdot t} \cdot \frac{2\pi}{\omega} \qquad \text{(Gl.2.25)}$$

wobei: M = Molmasse des umgebenden Gas, R_0 = allgemeine Gaskonstante, T = absolute Temperatur, p = Druck, ρ = Dichte des schwingenden Balkens, t = Dicke des Balkens, ω = Kreisfrequenz der Schwingung.

Soll dieser Einfluß auf die Dämpfung der Schwingung weniger als 10^{-6} betragen, so ergibt sich für eine typische Probendicke von 100 μm (typische Frequenz 200 Hz), daß der Gasdruck (das Gas ist in erster Linie Luft) in der Meßapparatur kleiner als $4\cdot 10^{-4}$ Pa = $4\cdot 10^{-6}$ mbar sein muß. Diese Voraussetzung kann nur durch Hochvakuum-Pumpstände geschaffen werden.

III. Experiment

III.1 Apparatur zur Messung der Inneren Reibung

III.1.1 Meßprinzip

Das Meßprinzip sowie der prinzipielle Aufbau sind in /4/ ausführlich erklärt, deshalb sollen hier nur die wesentlichen Veränderungen dargestellt werden.

Die Probe wird einseitig mit einem Edelstahlblock auf einen Quarzblock gespannt. Das freie Probenende befindet sich in einem Abstand von 0,3−0,5 mm gegenüber einer auf dem Quarzblock fest montierten Elektrode (s. Abb.3.1). Legt man zwischen Probe und Elektrode eine Wechselspannung von geeigneter Frequenz an, so wird die Probe in Resonanzschwingungen versetzt. Probe und Elektrode bilden einen Kondensator, der wiederum den frequenzabhängigen Anteil eines externen, elektrischen Hochfrequenz (HF)−Oszillators bildet. Die Frequenzmodulation des HF−Oszillators wird demoduliert und liefert so die Signalspannung.

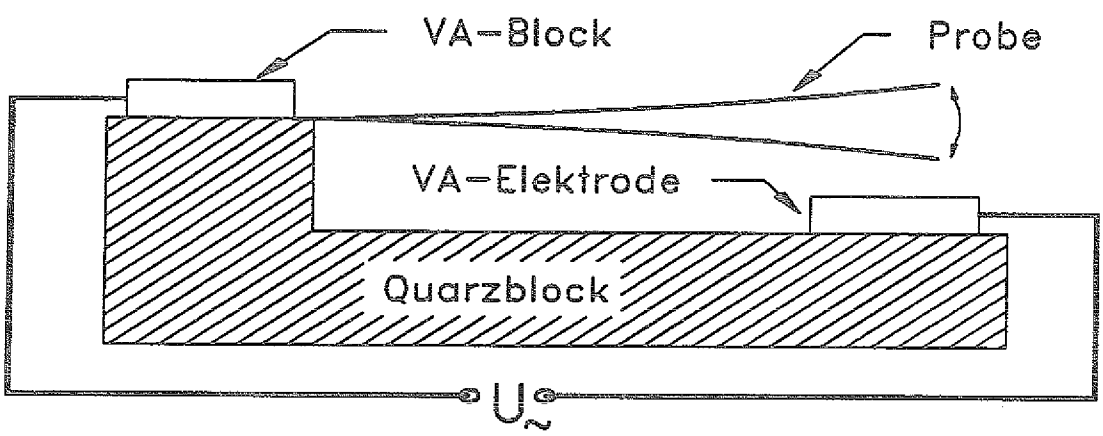


Abb.3.1: Prinzip der Messung: Elektrostatische Anregung einer einseitig eingespannten Zunge

Nach Abschalten der Anregungsspannung klingt das Signal y(t) im allgemeinen exponentiell entsprechend

$$y(t) = y(t=0) \cdot \cos(\omega t) \cdot \exp(-1/2 \cdot Q^{-1} \cdot \omega t) \qquad \text{(Gl.3.1)}$$

ab, wobei y = Probenamplitude, t = Zeit, ω = Probenkreisfrequenz, Q^{-1} = Dämpfung bedeuten.

Die Signalspannung wird digitalisiert und zur weiteren Verarbeitung an einen PC weitergegeben. Die Dämpfung Q^{-1} wird aus der Zeitkonstanten des freien Abfalls der Schwingung und aus der während des Abfalls unabhängig gemessenen Probenfrequenz bestimmt.

III.1.2 Unterdrückung parasitärer Dämpfungen

Zusätzlich zu der in Gl. 2.22 dargestellten Dämpfung addieren sich noch Terme der äußeren Reibung. Diese parasitären Einflüsse werden mit Q^{-1}_{par} bezeichnet. Die gemessene Dämpfung bestimmt sich also zu:

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 3\,\frac{t_F \cdot M_F \cdot A_F}{t_S \cdot M_S \cdot A_S}\,Q^{-1}_{F,tot} + Q^{-1}_{par} \qquad \text{(Gl.3.2)}$$

Die Substratdämpfung ist für Si nahezu vernachlässigbar (s. §IV.2), da Si−Wafer fast defektfrei verfügbar sind und dadurch nur eine geringe intrinsische Dämpfung besitzen. Der wesentliche Einfluß des Substrats ergibt sich durch die thermoelastische Dämpfung (vgl. §II.1.3), die allerdings im Vergleich zur Filmdämpfung auch sehr klein ist (vgl. §IV). Zu beachten sind jedoch die parasitären Dämpfungen durch äußere Einflüsse. Die wichtigsten sind dabei die äußere Reibung durch das die Probe umgebende Gas (vgl. §II.1.4), die Reibung in der Probeneinspannung und die mechanische Ankopplung an Raumschall. Erstere wird ausgeschlossen, indem man die Dämpfungsmessungen im UHV durchführt. Die anderen Einflüsse werden durch mechanische Entkopplung minimiert /4/. Zum einen befindet sich die Apparatur auf einem schwingungsisolierten Tisch, zum anderen wird der Quarzblock mit der Probe an Wolframfedern aufgehängt. Die Eigenfrequenz dieses Systems liegt mit ca. 10 Hz deutlich unter der niedrigsten Probenfrequenz von 200 Hz. Im Gegensatz zu /4/ muß in der hier verwendeten Apparatur die Probe vertikal aufgehängt werden. Demnach ist keine Federwirkung in der Schwingungsebene vorhanden. Das mechanische Filter funktioniert jedoch auch noch in diesem Fall, wie §IV.2 belegt. Durch diese Maßnahmen wird eine Ankopplung an die Umgebung weitgehend unterdrückt.

Zur Reduzierung der Effekte in der Probeneinspannung ist mehr Aufwand nötig /4/. Die eigentliche Meßprobe (der schraffierte T−förmige Teil in Abb.3.2) mit einer Dicke von ca. 100 μm wird aus einem Waferstück der Dicke 525−680 μm herausgearbeitet. Dabei läßt man einen Rahmen von der ursprünglichen Waferdicke stehen, der dann als Einspannung genutzt wird (s. Abb.3.2). Die Dehnungen in der Einspannung sind so um ca. zwei Größenordnungen kleiner als die in der eigentlichen Meßprobe. Damit sind die Einflüsse der Einspannung auf die Probe weitgehend eliminiert. Da in dieser Arbeit neben den Biegeschwingungen der Probe auch die Torsionsschwingung bzgl. ihres Dämpfungsverhaltens untersucht werden, wurde die aus /4/ bekannte Probengeometrie modifiziert, die Probe wurde, wie in Abb.3.2 gezeigt, T−förmig gestaltet.

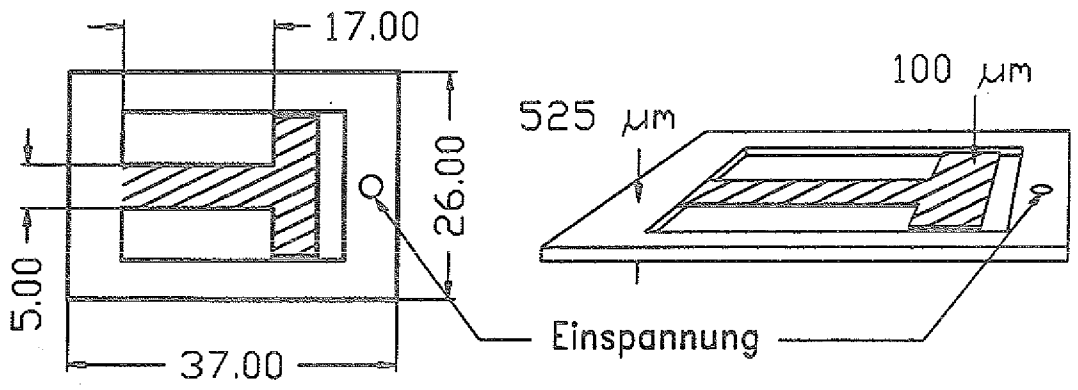


Abb.3.2: Maßzeichnung und perspektivische Ansicht der Torsionsprobe.

Durch Positionierung der festen Elektode unter einer Ecke des "T−Querstriches" kann sowohl die Biege− als auch die Torsionseigenschwingung angeregt werden. Die Auswahl der Schwingungsmode erfolgt durch Verwendung eines Filters im Anregungskreis.

III.1.3 Probenpräparation

Die Probengeometrie kann auf zwei verschiedene Weisen realisiert werden. Neben dem aus /4/ bekannten naßchemischen Ätzverfahren mittels einer Mischung aus 56% HNO_3, 22% HF und 22% CH_3COOH wurde in dieser Arbeit das Verfahren des Ultraschallschneidens zur Probenpräperation entwickelt. Dazu wird der beschichtete Wafer mit Glykolphtalat bei ca. 70°C auf eine planparallele Stahlplatte blasenfrei aufgeklebt. Wafer und Platte werden in eine Ultraschallschneidemaschine eingespannt /14/. Als Schneidmittel wird Borkarbit der Körnung 800 (Korngröße 2−10 µm) verwendet. Zuerst wird der innere Waferteil (das spätere T−Stück) abgedünnt. Der Abdünnvorgang wird mittels einer Meßuhr "in−situ" kontrolliert. Danach wird der Abdünnstempel durch den Schneidstempel ersetzt und die gewünschte Probenform ausgeschnitten. Zum Schluß werden die Proben von der Stahlplatte abgelöst (wieder bei ca. 70°C) und in Aceton vom restlichen Kleber befreit. Vorteile dieser Methode sind neben Sicherheitsaspekten die hohe Reproduzierbarkeit (jede Probe hat die gleiche Geometrie) sowie die Anwendbarkeit auf sehr viele Materialien (Si, Quarz, Fensterglas, MgO,Al_2O_3, ...).

In dieser Arbeit wird auch die Schichtdickenabhängigkeit der Dämpfung untersucht. Dazu wird der Film sukzessive durch chemisches Ätzen abgedünnt und nach jedem Ätzen das Dämpfungsspektrum gemessen. Zum Abdünnen wurden zwei Ätzmischungen verwendet. Zum einen eine Mischung aus 7% HF, 7% HCl und 86% H_2O (Ätzrate 100 nm/min.), zum anderen eine Mischung aus 40% H_3PO_4, 40%

CH_3COOH, 10% HNO_3 und 10% H_2O (Ätzrate 30 nm/min.). Es hat sich herausgestellt, daß die Ätzung mit der zweiten Ätzmischung wesentlich homogener gelingt.

III.1.4 Aufbau der Apparatur

Abb.3.3 zeigt ein Blockschaltbild der gesamten Apparatur. Wie schon in §III.1.2 erwähnt, befindet sich die Probe samt Probenhalter im UHV. Der Probenhalter (s. Abb.3.4) ist weitgehend aus Quarz gefertigt, die elektrischen Zuleitungen bestehen aus Wolframdrähten, der Einspannblock und die Elektode aus Edelstahl. Diese Materialien wurden ausgewählt, damit auch bei höheren Temperaturen eine Verschmutzung der Apparatur durch Ausgasen von Fremdmaterialien aus dem Probenhalter vermieden wird. Der erwartete Zeitvorteil durch Verwendung eines Lampenofens (schnelle Heizraten bis zu 50°C/sek.) konnten nicht realisiert werden, da die Zeiten zur Regelung der Schwingungsamplitude und –frequenz durch den PC relativ lang sind.

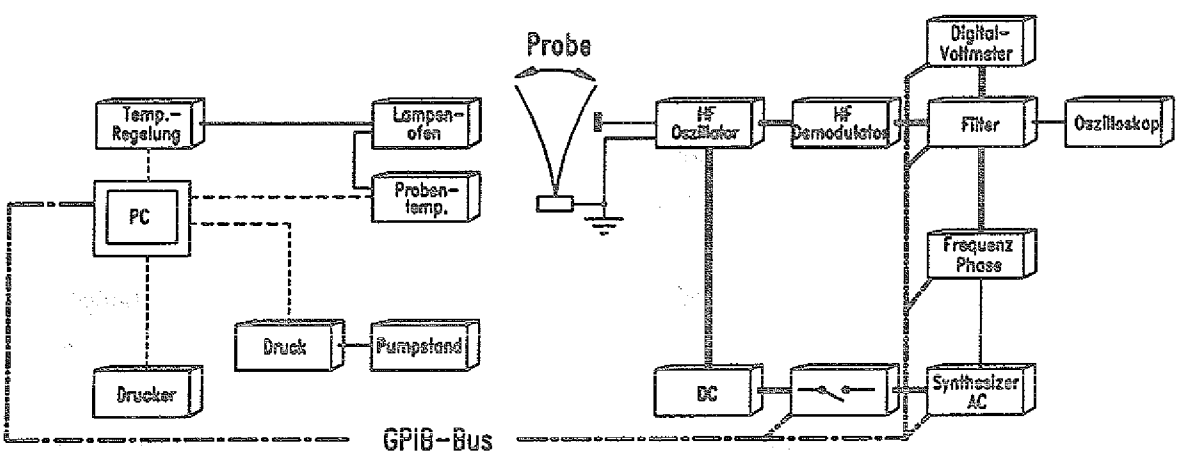


Abb.3.3: Schematischer Aufbau der Meßapparatur

Es ist wünschenswert, die Messung der Biege– und Torsionsschwingung während eines Temperaturzyklus durchzuführen, da die den Dämpfungsspektren zugrunde liegenden Gitterdefekte Ausheilprozessen unterliegen können. Dies konnte mit folgendem elektronischen Aufbau realisiert werden (vgl. Abb.3.3). Die Anregung der Probenschwingung erfolgt über einen phasenstabilen Synthesizer, dessen Ausgangsspannung über einen Transformator verstärkt wird (max. 250 V). Zusätzlich wird noch ein Gleichspannungsanteil (max. 300 V) eingekoppelt und die Probe in die gewünschte Eigenschwingungsmode versetzt. Das durch die Probenschwingung frequenzmodulierte Signal eines HF–Oszillators wird demoduliert und über ein Filter einem schnellen Speicherdigitalvoltmeter zugeführt.

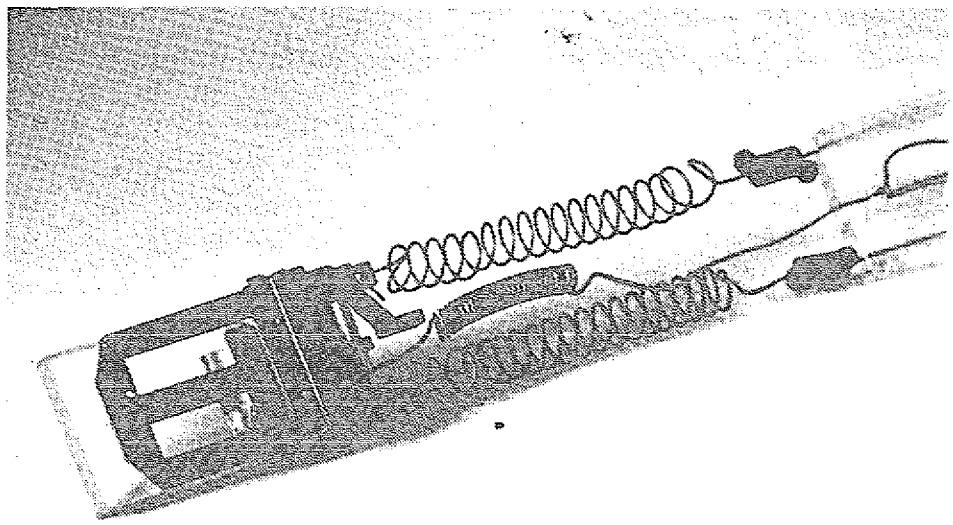


Abb.3.4: Fotografie des Probenkopfs. Die weit gewickelten Federn sind die elektrischen Zuleitungen. Das Thermoelement ist als eng gewickelte Feder zu erkennen.

Ferner wird die Frequenz der Eigenschwingung sowie die Phase zwischen Anregung und Probenschwingung gemessen. Da die Probe in Resonanz schwingt, beträgt diese Phasendifferenz 90°. Die eigentliche Messung läuft wie folgt ab: bei der Starttemperatur (i.a. Raumtemperatur) werden die Eigenfrequenzen sowie die Signalamplituden manuell bestimmt und dem Rechner mitgeteilt. Dieser übernimmt dann die Kontrolle, mißt die Signalamplitude über das Digitalvoltmeter und regelt sie über die Syntesizeramplitude auf die vorher festgelegte Höhe. Danach wird die Syntesizerfrequenz solange variiert, bis die Phasendifferenz 90° beträgt und damit die Resonanzbedingung erfüllt ist. Dann wird die Anregung abgeschaltet und der freie Signalabfall im Digitalvoltmeter gespeichert. Dieses Signal wird dem Rechner zugeführt und weiter verarbeitet. Ferner wird die Frequenz der abfallenden Schwingung gemessen. Derselbe Vorgang wird dann mit der zweiten Schwingungsmode wiederholt. Anschließend wird die Probentemperatur um 2°C verändert und dieselbe Prozedur wiederholt. Standardmäßig erfolgt eine Messung beginnend bei Raumtemperatur in 2°C–Schritten bis 450°C. Bei dieser Temperatur wird die Probe 30 Minuten getempert, um die Mikrostruktur zu stabilisieren. Danach wird die Probe (wiederum in 2°C–Schritten) bis ca. –100°C abgekühlt. Ein solcher Meßzyklus dauert ca. 24 Stunden. Die gesamte Messung wird über einen Personal–Computer gesteuert und überwacht. Die Computersteuerung erfordert eine

umfangreiche Software, die in der Programmiersprache ASYST /15/ geschrieben wurde.

Die Verwendung des Lampenofens bringt wegen der hohen möglichen Heizraten Probleme bei der Temperaturmessung und –regelung mit sich. Die Temperaturmessung muß möglichst nahe an der Probe erfolgen. Ein Kontakt der Probe mit einem Standardthermoelement (NiCr/Ni) mit einem Durchmesser von 1,5 mm führt zu parasitären Dämpfungen von 10^{-4}. Gefordert ist jedoch eine Messung von Dämpfungen in der Größenordnung von 10^{-6}. Es ist auch nicht sinnvoll, das Thermoelement wie in /4/ nur in der Nähe der Probe zu plazieren, da die Ankopplung des Thermoelementes an die Wärmestrahlung des Lampenofens im Vakuum viel größer ist als die der Probe. Abhilfe schafft ein zu einer Feder gewickeltes NiCr/Ni–Thermoelement von 0,5 mm Durchmesser, das direkt an die Probe angeklemmt wird. Dieses gestattet eine Dämpfungsmessung in der Größenordnung von 10^{-6}. So konnte eine Temperaturmessung und –regelung an der Probe erreicht werden.

Im Prinzip ist es auch möglich, sich die bekannte Temperaturabhängigkeit des Elastizitätsmoduls von Si und damit die (temperaturabhängige) Eigenfrequenzänderung der Probe zur Temperaturregelung heranzuziehen. Bei einer Moduländerung von $7 \cdot 10^{-5}$/K und einer Genauigkeit in der Frequenzmessung von 10^{-6} ergibt sich eine Genauigkeit in der Temperaturmessung von 0,01°C. Es stellte sich jedoch heraus, daß die computergesteuerte Frequenzregelung bei dem verwendeten Lampenofen zu langsam ist.

Für Messungen unter Raumtemperatur wurde der Ofen geöffnet und ein mit flüssigem Stickstoff gefülltes Dewar–Gefäß über das UHV–Hüllrohr geschoben. Der zugängliche Temperaturbereich der Apparatur reicht so von –100°C bis ca. 900°C. Die höchste Meßtemperatur wurde wegen des Schmelzpunkts von Al (660°C) bei 550°C begrenzt.

III.2 Probenherstellung und Charakterisierung

III.2.1 Substratmaterial und Herstellung der Zwischenschichten

Als Substratmaterial wurden verschiedene Si–Wafer verwendet: zum einen <111>–orientierte Wafer der Firma Aurell /16/, die thermisch oxidiert wurden. Die Dicke des (amorphen) Oxids betrug 0,3 und 1 μm. Auf einen Teil dieser Wafer wurde eine 0,05 μm dicke Au–Schicht aufgestäubt. Zum anderen wurden Wafer der Firma Siemens /17/ verwendet: <111>–orientierte Wafer mit einer 20 nm dicken Diffusionbarriere aus Ti/TiN sowie <100>–orientierte Wafer mit einer 0,1 μm dicken Oxidschicht und einer zusätzlichen Schicht aus 0,34 μm $MoSi_{2.2}$. Dieses

$MoSi_{2.2}$ ist polykristallin mit einer starken <111> −Fasertextur. Somit standen fünf verschiedene Substratmaterialien zur Verfügung, auf die dann der Al−Film aufgebracht wurde.

III.2.2 Schichtdeposition

Die Al−Schichten wurden im UHV aufgedampft. Eine Beschreibung der Aufdampfapparatur findet sich /18/. Da sich die Anwesenheit von Wasser und Sauerstoff auf das Schichtwachstum auswirkt, wurde der Partialdruck von H_2O und O_2 beim Aufdampfen kleiner als 10^{-9} mbar gehalten. Vor dem Aufdampfen wurden die Substrate vier Stunden bei 320°C ausgeheizt, um Oberflächenverunreinigungen auszugasen. Ferner wurden die Proben unmittelbar vor Aufdampfbeginn mit Kr ionengeätzt, um die Oberfläche weiter zu reinigen. Die Substrate befanden sich auf einem heizbaren Halter. So konnte die Substrattemperatur während des Aufdampfvorgangs von Raumtemperatur bis 550°C eingestellt werden. Die Aufdampfrate betrug 0,1 nm pro Sekunde, die Schichtdicken wurden von 0,5 bis 8 μm variiert.

III.2.3 Herstellung der strukturierten Proben

Eine Strukturierung der aufgedampften Schichten war wegen der großen Oberflächenrauhigkeit bisher nicht möglich. So mußte auf 0,8 μm dicke aufgestäubte $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$−Filme der Firma Siemens /17/ zurückgegriffen werden. Auf diese Filme wurden Streifen von 2 μm Breite mit 2 μm Abstand (im folgenden als 2x2−Struktur bezeichnet) und von 10 μm Breite mit 10 μm Abstand (10x10−Struktur) mittels eines fotolithografischen Verfahrens /19/ strukturiert.

Weiterhin wurden aufgestäubte strukturierte Rein−Al−Schichten untersucht /20/. Diese Schichten waren 1 μm dick mit einer Streifenbreite von 1,5 μm und 1,5 μm Abstand zwischen den Streifen. Von diesen Proben waren keine unstrukturierten Proben zu Vergleichsmessungen verfügbar.

III.2.4 Probencharakterisierung

Die Schichtdicke der Proben wurde mit dem Gerät Dektak 3030 /21/ bestimmt. Dabei fährt man mit einer feinen Diamantnadel über die Stufe von Film und Substrat, die durch die Einspannung des Wafers im Substrathalter der Aufdampfanlage entsteht.

Schwieriger gestaltet sich die Dickenbestimmung des abgedünnten Probenteils ("T"−Teil der Probe). Diese Dicke ist im Wesentlichen die Substratdicke und wird zur Bestimmung der Filmdämpfung gemäß Gl.2.22 benötigt. Dazu wurden zwei Methoden herangezogen:

a) Mit der Methode der "finiten Elemente" können für jede Geometrie aus dem Elastizitätsmodul und der Dichte des Si die Eigenfrequenzen errechnet werden. Dabei ergab sich ein linearer Zusammenhang der Eigenfrequenz mit der Probendicke, wobei für die verwendete Geometrie (s. Abb.3.2) 100 μm Probendicke einer Frequenz von 204 Hz entspricht.

b) Nach Beendigung der Messung wurde die Probendicke mit einer Mikrometerschraube nachgemessen. Die Ergebnisse waren in guter Übereinstimmung mit den nach a) berechneten.

Die Korngröße der aufgedampften Al−Filme wurde mittels REM−Aufnahmen nach dem Durchmesserverfahren /22/ bestimmt.

Die Oberflächenrauhigkeit der aufgestäubten Schichten ist so gering, daß bei den REM−Untersuchungen keine Korngrenzen gesehen wurden. Diese Proben wurden rückseitig abgedünnt und in Transmission (TEM) untersucht. Weiterhin wurden Querschliffproben für TEM−Messungen präpariert, um die Grenzfläche von Film und Substrat zu bestimmen.

Zur Texturbestimmung nach der Methode von Schulz /23/ wurde die Röntgenstreuung unter Verwendung eines Vierkreisdiffraktometers der Firma Seifert benutzt /24/.

IV. Experimentelle Ergebnisse

IV.1 Ergebnisse der begleitenden Untersuchungen

IV.1.1 Texturanalyse

Die Texturanalyse liefert für alle Aufdampfschichten eine starke <111>-Fasertextur. Diese Textur ist unabhängig von der Wahl der Zwischenschicht zwischen Al-Schicht und Substrat. In den Abb.4.1 und 4.2 sind die <111>-Polfiguren der Schichten auf Al/SiO_2 und auf $Al/MoSi_{2.2}$ gezeigt. Man erkennt, daß sich die maximale Streuintensität in der Mitte (d.h. <111>-Richtung) befindet. Bei 70° Verkippung findet sich ein konzentrischer Anstieg der Streuintensität. Hierbei handelt es sich um die komplementären <111>-Richtungen. Demnach sind die meisten Körner der Al-Schicht so orientiert, daß sich die {111}-Netzebenen parallel zur Schichtoberfläche befinden. Die Netzebenen senkrecht dazu sind zufallsorientiert. Bei dieser Orientierungsverteilung spricht man von einer Fasertextur.

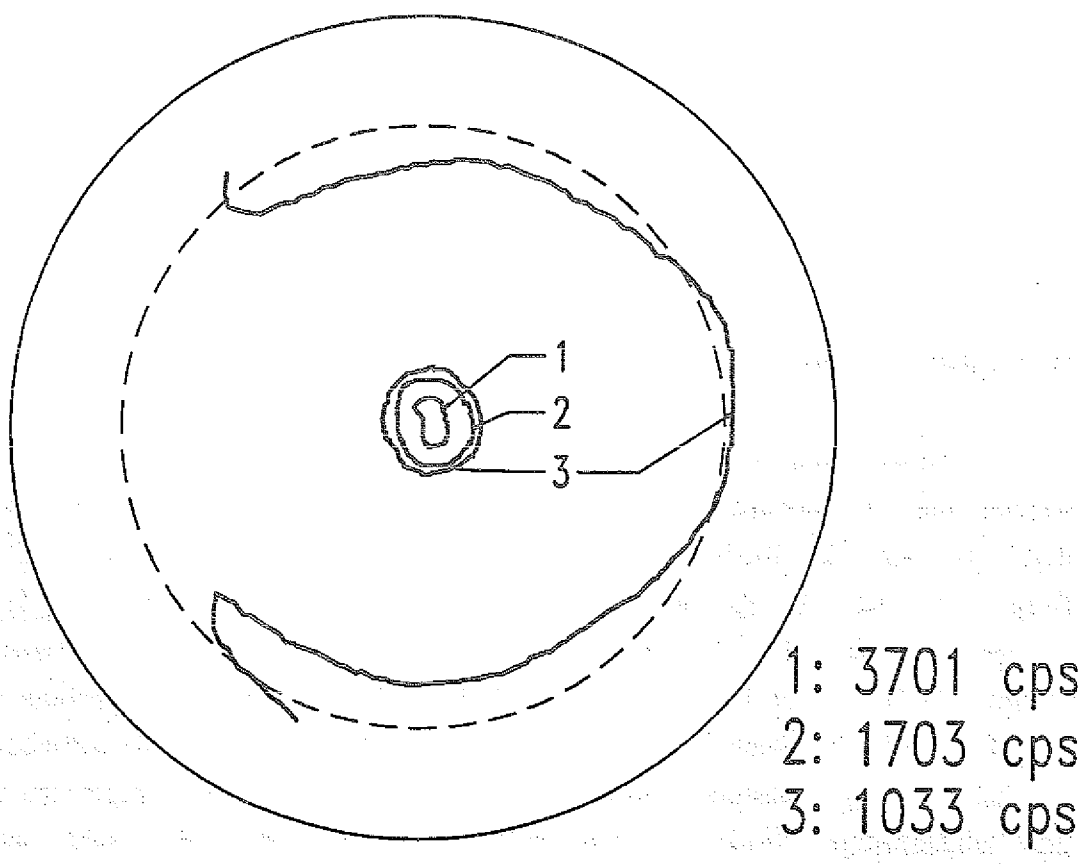


Abb.4.1: <111>-Polfigur einer 4 μm dicken Al-Schicht auf einem oxidierten Si-Substrat.

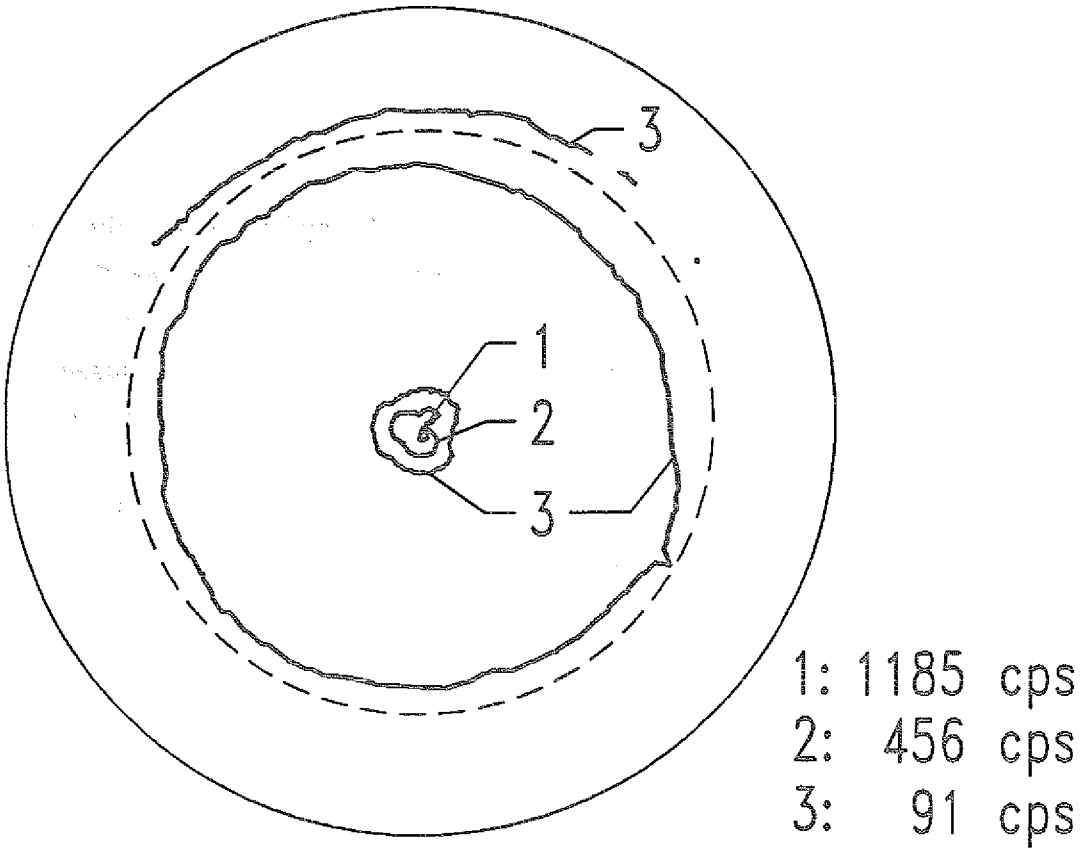


Abb.4.2: <111>−Polfigur einer 0,5 μm dicken Al−Schicht auf einem Si/$MoSi_{2.2}$−Substrat.

IV.1.2 REM−Untersuchungen

In diesem Abschnitt sollen exemplarisch einige REM−Aufnahmen gezeigt werden, die die Kornstruktur der Schichten nach Stabilisierung der Mikrostruktur durch Tempern der Probe bei 450°C für 30' charakterisieren. Es ist bekannt (z.B. /18/), daß Al−Schichten eine Säulenstruktur besitzen, es also keine Korngrenzen parallel zum Substrat gibt. Interessant ist daher die laterale Kornverteilung. Abb.4.3 zeigt eine rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der Oberfläche einer bei Raumtemperatur aufgedampften 8,8 μm dicken Al−Schicht auf einem Si/$MoSi_{2.2}$−Substrat. Man erkennt zum einen sehr gut die Korngrenzen und die schieferartige Struktur. Zum anderen erkennt man die sehr breite Korngrößenverteilung. Neben den Körnern mit einer Korngröße, die ungefähr der Schichtdicke entspricht, gibt es sehr viele deutlich kleinere Körner.

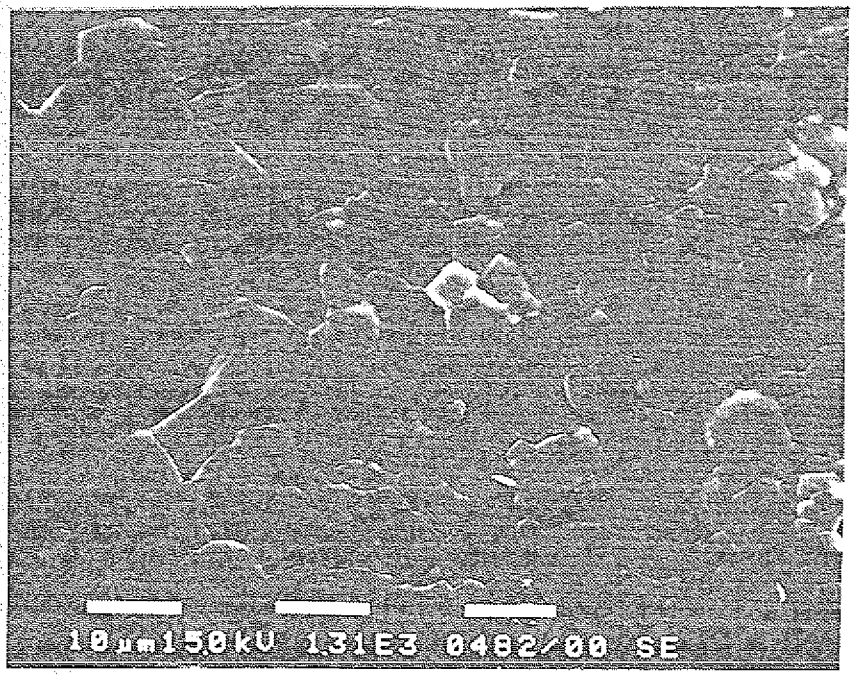


Abb.4.3: REM–Aufnahme der Oberfläche einer bei Raumtemperatur aufgedampften 8,8 μm dicken Al–Schicht nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Die Vergrößerung beträgt 1300, der weiße Balken entspricht 10 μm.

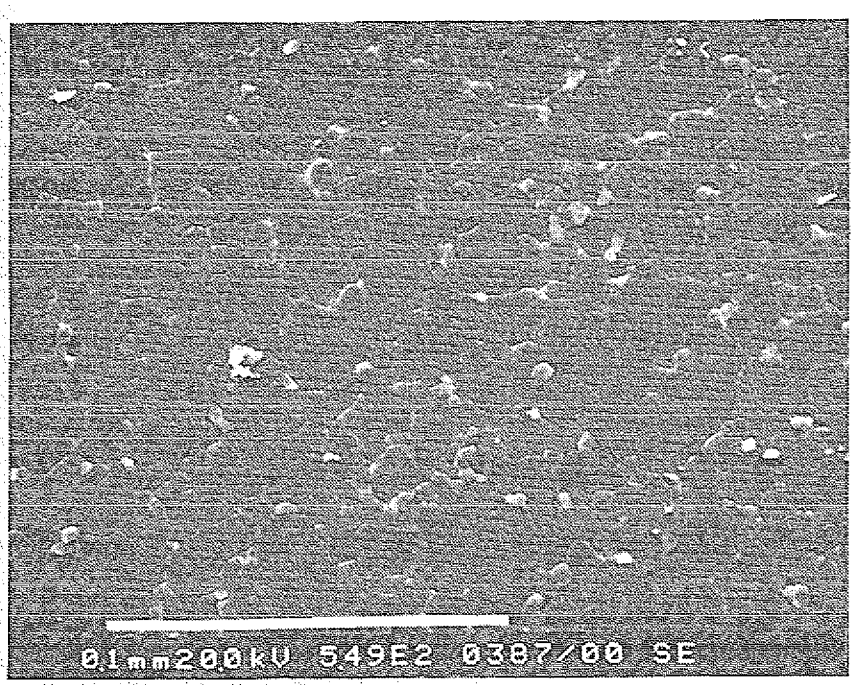


Abb.4.4: REM–Aufnahme der Oberfläche einer bei 250°C aufgedampften 7,9 μm dicken Al–Schicht nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Die Vergrößerung beträgt 550, der weiße Balken entspricht 100 μm.

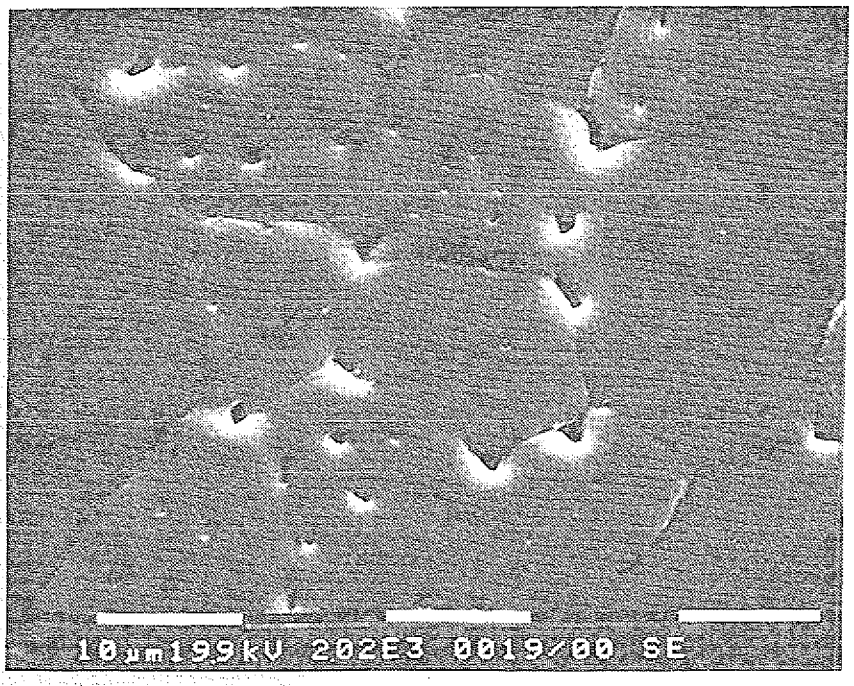


Abb.4.5: REM–Aufnahme der Oberfläche einer bei 550°C aufgedampften 5,1 μm dicken Al–Schicht. Die Vergrößerung beträgt 2000, der weiße Balken entspricht 10 μm. Man erkennt deutlich die Gräben an den Korngrenzen sowie die Löcher sowohl an den Korngrenzen als auch inmitten der Körner.

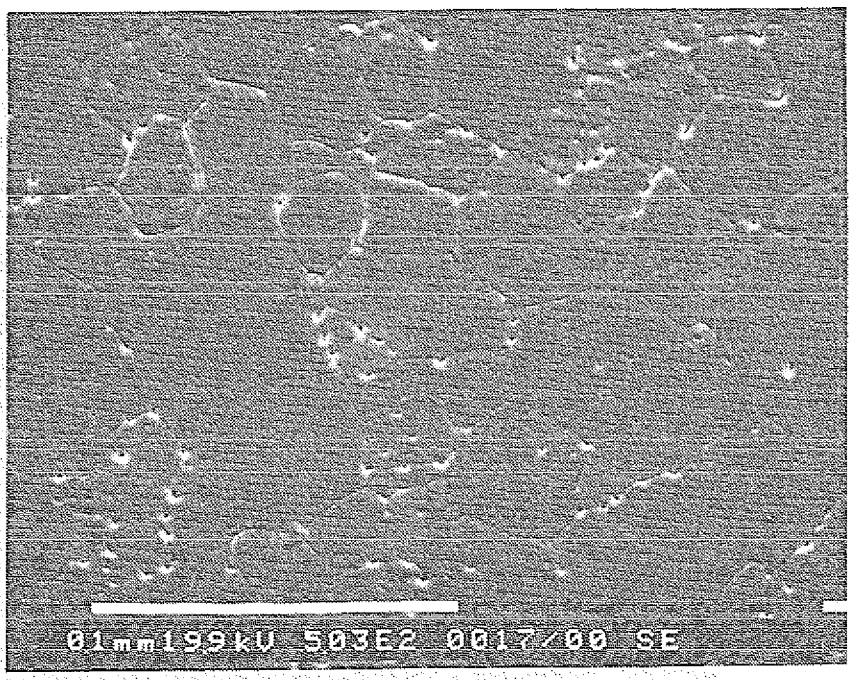


Abb.4.6: REM–Aufnahme der Oberfläche einer bei 550°C aufgedampften 5,1 μm dicken Al–Schicht. Die Vergrößerung beträgt 2000, der weiße Balken entspricht 100 μm. Man erkennt, daß die Korngröße deutlich größer als die Schichtdicke ist.

Eine Erhöhung der Aufdampftemperatur von Raumtemperatur auf 250°C erniedrigt den Anteil der kleinen Körner (s. Abb.4.4). Gleichzeitig zeigt sich eine Furchenbildung an den Korngrenzen. Diese Effekte verstärken sich, wenn die Aufdampftemperatur auf 550°C gesteigert wird (s. Abb.4.5). Die Ausfurchung der Korngrenzen nimmt zu. Ferner erkennt man Löcher nicht nur an den Korngrenzen, sondern auch inmitten der Körner; die Tiefe der Löcher ist aus diesen Aufnahmen nicht zu bestimmen. Die mittlere Korngröße ist nun deutlich größer als die Schichtdicke (hier 5,1 μm), was Abb.4.6 belegt.

Die bislang geschilderten Ergebnisse gelten für die Substratmaterialien Si/SiO_2, $Si/MoSi_{2.2}$ und $Si/SiO_2/Au$. Einen anderen Effekt beobachtet man bei der Verwendung von Si/Ti/TiN−Substraten. Die Fasertextur scheint schärfer zu werden /25/. REM−Aufnahmen zeigen, daß die mittlere Korngröße deutlich kleiner als die Schichtdicke ist (s. Abb.4.7). Ferner erkennt man in Abb.4.7 eine große Anzahl von Hillocks, die während der Stabilisierungstemperung entstanden sind. Dieses Substrat scheint einen anderen Einfluß auf das Kornwachstum zu haben, dem allerdings im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht weiter nachgegangen wurde.

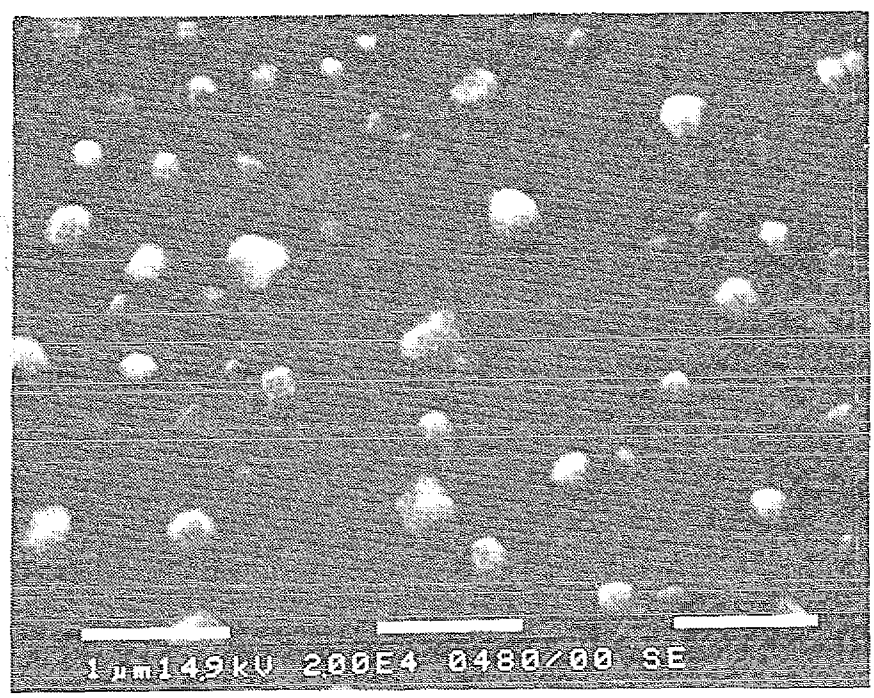


Abb.4.7: REM−Aufnahme der Oberfläche einer bei Raumtemperatur aufgedampften 0,8 μm dicken Al−Schicht auf Si/Ti/TiN nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Die Vergrößerung beträgt 20000, der weiße Balken entspricht 1 μm. Die mittlere Korngröße beträgt ca. 0,2 μm.

IV.1.3 TEM–Untersuchungen

Um die Grenzflächenstruktur zwischen Schicht und Substrat näher zu analysieren, wurden zusätzlich zu den REM–Aufnahmen Querschnitts–TEM Untersuchungen durchgeführt. Da die Grenzfläche Al zu Si/SiO_2 hinreichend bekannt ist /18/, wurden nur die Al–Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ (die 0,1 μm dicke SiO_2–Schicht zwischen Si und $MoSi_{2.2}$ wird in der Substratbezeichnung unterschlagen) untersucht. Abb.4.8 zeigt eine Querschnittsaufnahme einer bei Raumtemperatur aufgedampften 0,5 μm dicken Al–Schicht auf $Si/MoSi_{2.2}$ nach dem Tempern der Probe für 30' bei 450°C. Man erkennt zunächst das Si–Substrat, dann eine 0,1 μm dicke (amorphe) SiO_2–Schicht, darauf das polykristalline $MoSi_{2.2}$ (0,34 μm dick). Als nächstes findet sich eine 0,03 μm dicke Zwischenschicht und darauf schließlich die Al–Schicht mit säulenartiger Kornstruktur. EDX (energy dispersive X–ray analysis)–Untersuchungen der Zwischenschicht führen zu dem Ergebnis, daß diese wahrscheinlich aus Silizium besteht, wobei allerdings leichte Elemente wie Sauerstoff mit dieser Methode nicht nachgewiesen werden können. Im Rahmen der Nachweisempfindlichkeit befindet sich in der Zwischenschicht weder Al noch Mo. Das Si in der Zwischenschicht kommt aus dem $MoSi_{2.2}$. Dieses besteht aus (tetragonalem) $MoSi_2$ und Si–Ausscheidungen. Würde man alle Si–Ausscheidungen auf dem $MoSi_2$ aufschichten, so ergäbe sich eine Schichtdicke von 31 nm in guter Übereinstimmung mit den TEM–Untersuchungen.

Die Bildung der Schicht kann während des Temperns der Probe bei 450°C erfolgen. Bei dieser Temperatur ist die Diffusionskonstante D_{KG} für die Korngrenzendiffusion von Si in Al so hoch, daß das Si bei einer Temperzeit von 30' ca. 100 μm in das Al eindiffundieren kann /26/. Während des Tempervorgangs könnte so das überschüssige Si aus dem $MoSi_{2.2}$ in das Al eindiffundieren. Bei einer Al–Schichtdicke von 0,5 μm würde die Si–Konzentration 6% ausmachen. Die Löslichkeit bei 450°C beträgt aber nur 0,5% /27/, es werden sich folglich Si–Ausscheidungen bilden. Für das System Al–Si ist bekannt /26/, daß sich das Si an der Unterseite der Al–Schicht als glatte Zwischenschicht ausscheidet.

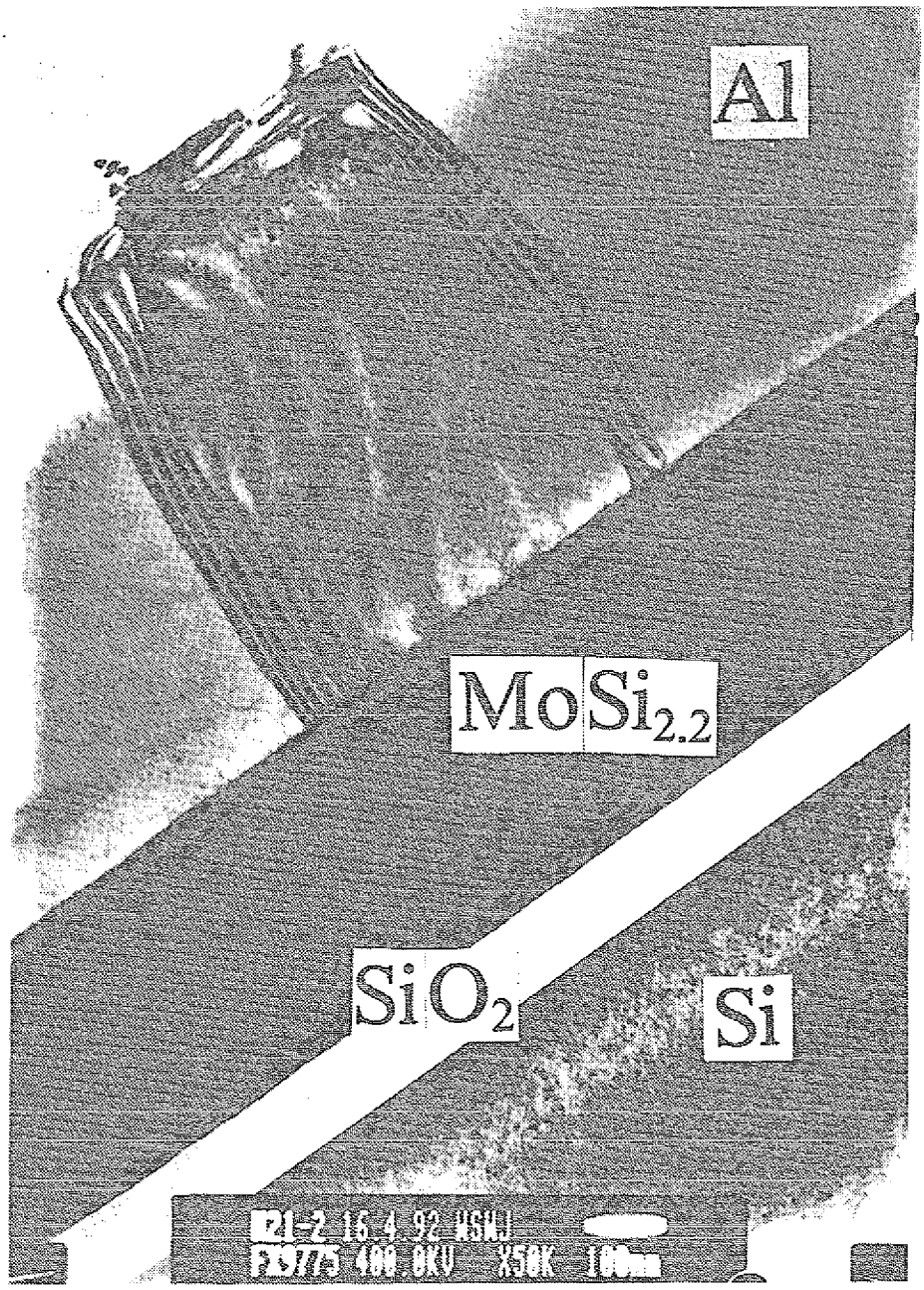


Abb.4.8: TEM−Querschnittsaufnahme einer bei Raumtemperaur aufgedampften 0,5 μm dicken Al−Schicht auf $Si/SiO_2/MoSi_{2.2}$ nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Der weiße Balken entspricht 100 nm. Man erkennt deutlich eine Zwischenschicht zwischen dem Molybdänsilizid und der Al−Schicht.

IV.2 Auflösung der Meßapparatur

Zur Bestimmung der apparativen Auflösung bei der Messung der Dämpfungsspektren wurde ein unbeschichtetes Si−Substrat verwendet. Wie in §III.1.1 erwähnt, bilden Probe und Gegenelektrode einen Kondensator. Zur Signalanregung und −detektion muß die Probe daher (elektrisch) leitfähig sein. Deshalb wurde auf dieses Substrat ein ca. 1 mm breiter und 0,05 μm dicker Pt−Streifen aufgestäubt. Die (Gesamt−) Dämpfung dieser Probe beträgt $6{,}5 \cdot 10^{-6}$ bei Raumtemperatur.

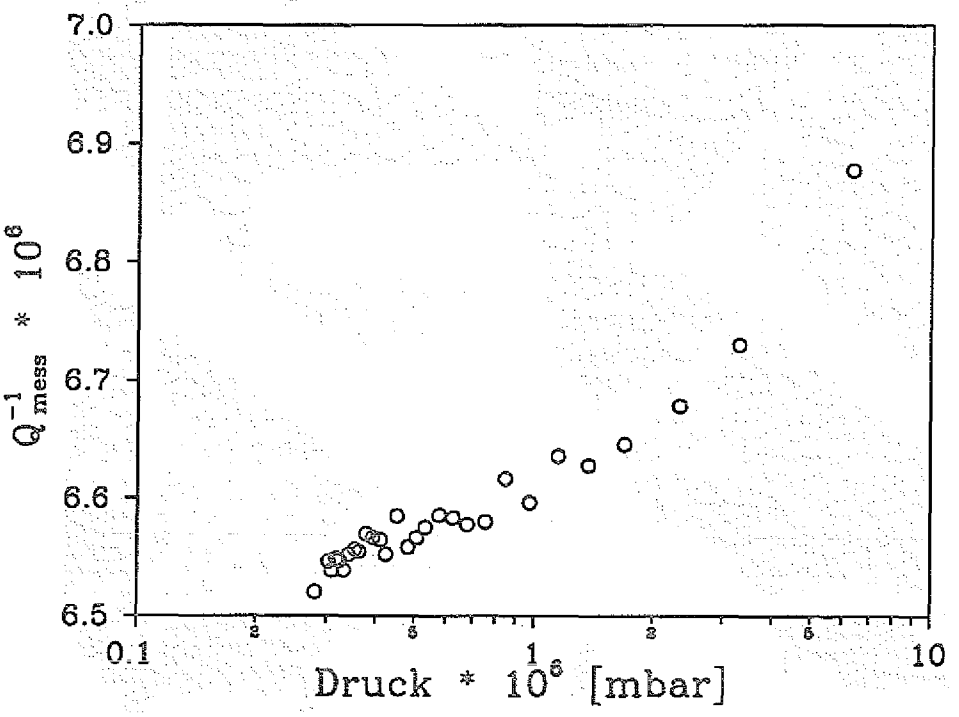


Abb.4.9: Gemessene Dämpfung eines Si−Substrats bei Raumtemperatur in Abhängigkeit vom Druck in der Apparatur. Das Thermoelement ist an die Probe angeklemmt.

Ein Anklemmen des Thermoelements von 0,5 mm Durchmesser an den Probenhalter hat keinen Einfluß auf die Dämpfungsmessung. Die Streuung der Meßwerte beträgt 1% bei einer Temperaturstabilität von $\pm 0{,}1$°C; damit können mit dieser Apparatur Dämpfungen von einigen 10^{-8} aufgelöst werden. Man erkennt in Abb.4.9 die Abnahme der Dämpfung mit fallendem Druck in der Apparatur. Ein Druck von einigen 10^{-7} mbar ist in Übereinstimmung mit §II.1.4 notwendig, um solch niedrige Dämpfungen in der Größenordnung von 10^{-6} hinreichend genau messen zu können.

IV.3 Substratdämpfung

Zur Bestimmung des Anteils des Substrats an den Spektren der Inneren Reibung wurden jeweils drei Si/SiO_2– und $Si/MoSi_{2.2}$–Substrate verschiedener Dicke hergestellt. Zur Herstellung der elektrischen Leitfähigkeit wurde auf die oxidierten Si–Substrate eine 0,05 μm dicke Pt–Schicht aufgebracht. Die Leitfähigkeit der $Si/MoSi_{2.2}$–Substrate war ausreichend hoch, um Messungen durchführen zu können. Die Ergebnisse sind für beide Substratsorten ähnlich, deshalb werden in Abb.4.10 nur die Meßkurven für die oxidierten Si–Substrate in der Biegemode gezeigt. Die Substratdicken wurden von 135 bis 220 μm variiert. Mit der unterschiedlichen Substratdicke sind auch verschiedene Eigenfrequenzen verknüpft. Man erkennt ein Ansteigen der Dämpfung mit der Substratdicke und steigender Probentemperatur.

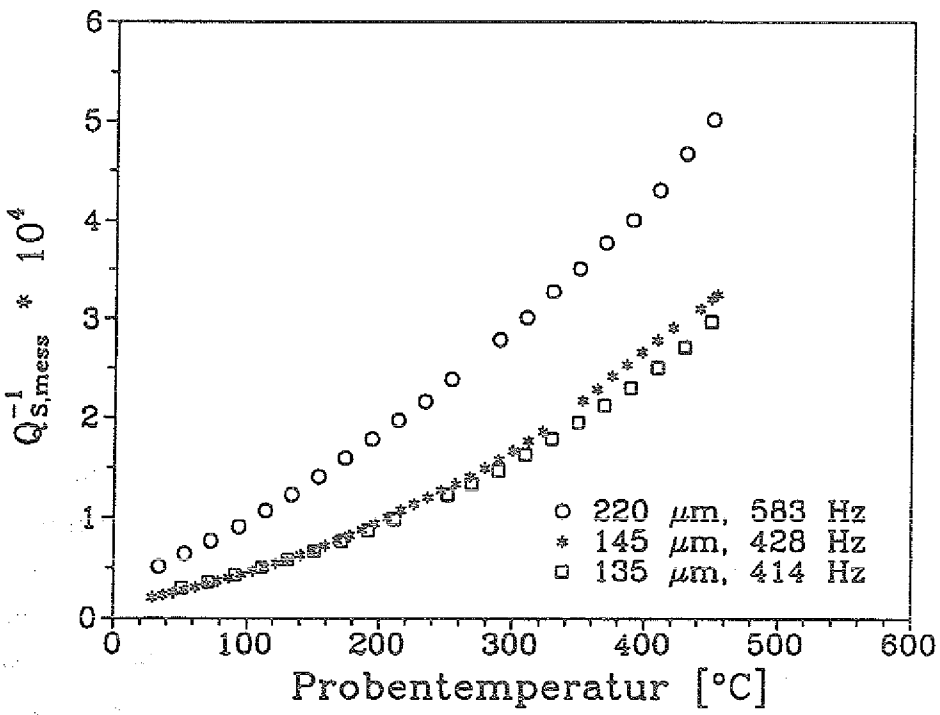


Abb.4.10: Dämpfungsspekten von oxidierten Silizium–Substraten der Dicken 135, 145 und 220 μm mit zugehörigen Eigenfrequenzen von 414, 428 und 583 Hz.

Der thermoelastische Untergrund Q^{-1}_{th} wurde nach Gl.2.23 von den Meßkurven abgezogen. Die resultierenden Kurven sind in Abb.4.11 dargestellt. Alle drei Kurven fallen weitgehend zusammen. Diese Dämpfung ist die intrinsische Dämpfung Q^{-1}_S des Silizium, da sie von der Dicke des Si unabhängig ist.

In der in Abb.4.11 gezeigten Dämpfung sind noch die Anteile des SiO_2 und des Pt enthalten. Diese scheinen jedoch keinen großen Einfluß auf die Dämpfung zu haben, da die Substratdämpfung im Rahmen der Meßgenauigkeit weder von der Dicke des SiO_2 noch von der Grenzfläche Substrat/Pt abhängt. Die beiden dicksten Proben

besaßen 1 μm SiO_2, das Pt befand sich einmal auf der Probenvorderseite (220 μm und 135 μm Substratdicke) und einmal auf der (ultraschallbearbeiteten) Probenrückseite. Die dünnste Probe besaß eine Oxidschicht von 0,3 μm.

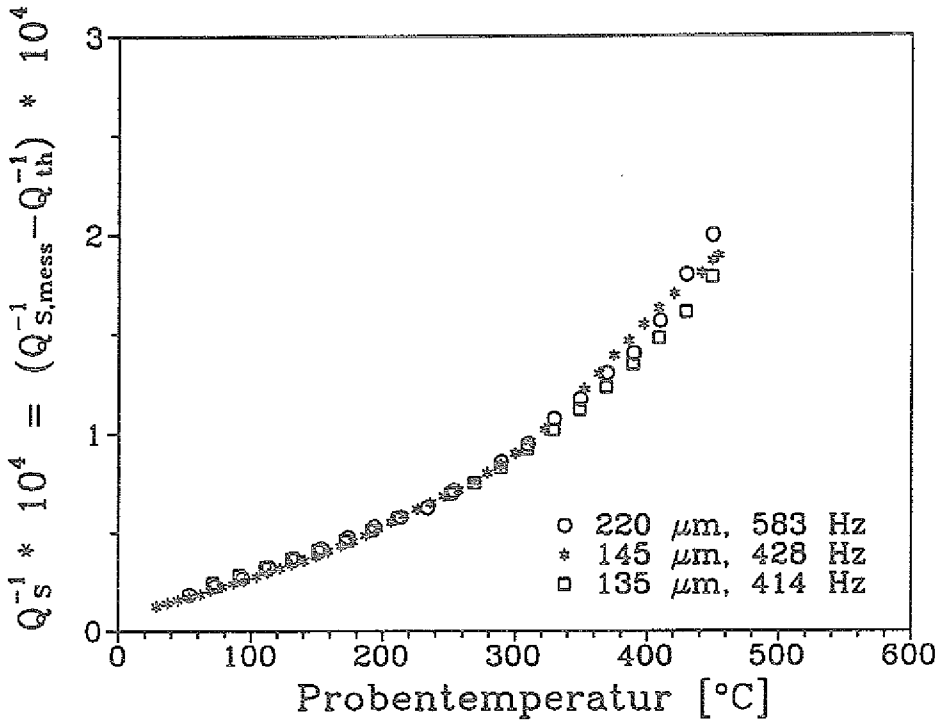


Abb.4.11: Resultierende Kurven aus Abb.4.10 nach Subtraktion des thermoelastischen Untergrunds gemäß Gl.2.23.

In Abb.4.12 sind die Messungen an den am meisten verwendeten Substraten Si/SiO_2 und $Si/MoSi_{2.2}$ in der Biegungs– und Torsionsschwingung zusammenfassend dargestellt. Bei den Biegeschwingungen wurde der thermoelastische Untergrund abgezogen, bei den Torsionsschwingungen existiert dieser nach §II.1.3 nicht. Auffallend sind zwei Punkte: zum einen liegt das Dämpfungsniveau aus nicht bekannten Gründen bei der Torsion niedriger als bei der Biegung, zum anderen zeigen die $Si/MoSi_{2.2}$–Substrate ein kleines Dämpfungsmaximum bei ca. 250°C. Dieses ist jedoch mit $2 \cdot 10^{-5}$ sehr niedrig und liegt zudem bei einer Temperatur, bei der für Al kein Maximum erwartet wird. Es wird daher im weiteren vernachlässigt.

Vergleicht man diese Kurven mit dem Si–Untergrund aus /6/, so stellt man fest, daß die hier verwendeten Substrate einen deutlich höheren Untergrund besitzen. Es ist somit notwendig, für jede verwendete Substratsorte eine eigene Bestimmung des Untergrunds durchzuführen.

Im folgenden wird dieser gemessene Substratuntergrund von den Meßkurven abgezogen. Bei den Messungen in der Biegungsmode wird zusätzlich der nach Gl.2.23 berechnete thermoelastische Untergrund substrahiert. Die resultierenden

Kurven beschreiben so nur noch das Dämpfungsverhalten der Al−Schicht sowie eventuelle Grenzflächeneinflüsse zwischen Schicht und Substrat.

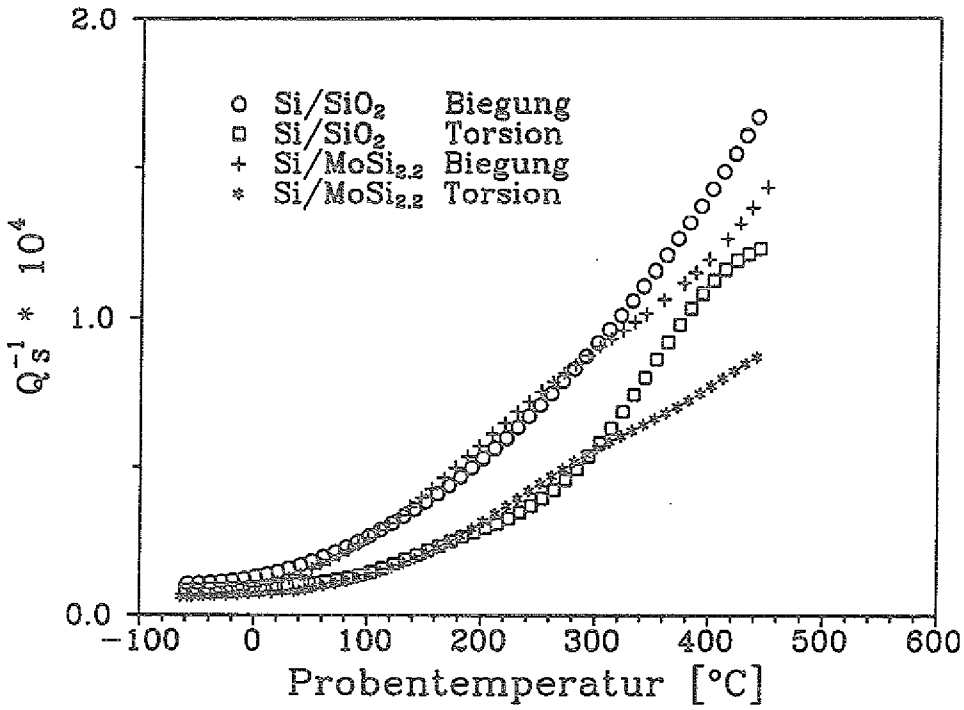


Abb.4.12: Zusammenfassung der Substratmessungen für die am häufigsten verwendeten Substrate Si/SiO_2 und $Si/MoSi_{2.2}$ in Biegung und Torsion. Bei den Biegeschwingungen ist der thermoelastische Untergrund abgezogen.

IV.4 Untergrunddämpfung der Schicht

In Abb.4.13 ist ein typisches gemessenes Spektrum dargestellt. Es handelt sich bei dieser Probe um eine 4,3 μm dicke Al−Schicht auf einem $Si/MoSi_{2.2}$−Substrat. In dieser Abb. sind neben der Meßkurve (+) die Substratbeiträge $Q^{-1}{}_S$ (o) und $Q^{-1}{}_{S,th}$ (—) eingezeichnet. Subtrahiert man diese Beiträge von der Meßkurve, so verbleibt neben dem Maximum ein temperaturabhängiger Untergrund, der offensichtlich vom Al herrührt. Dieser ist bei Massivaluminium als Hochtemperaturuntergrund (HTUG) aus der Literatur /12/ bekannt und läßt sich durch eine Funktion der Form $A \cdot e^{-B/T}$ beschreiben. B kann dabei als eine Aktivierungsenergie H_{ug}/k (k: Boltzmann−Konstante) für den dem Untergrund zugrunde liegenden Prozeß aufgefaßt werden. Aus den Messungen bestimmt sich H_{ug} zu 0,15 ± 0,05 eV. Diese Aktivierungsenergie ist typisch für Versetzungen im Volumen /28/.

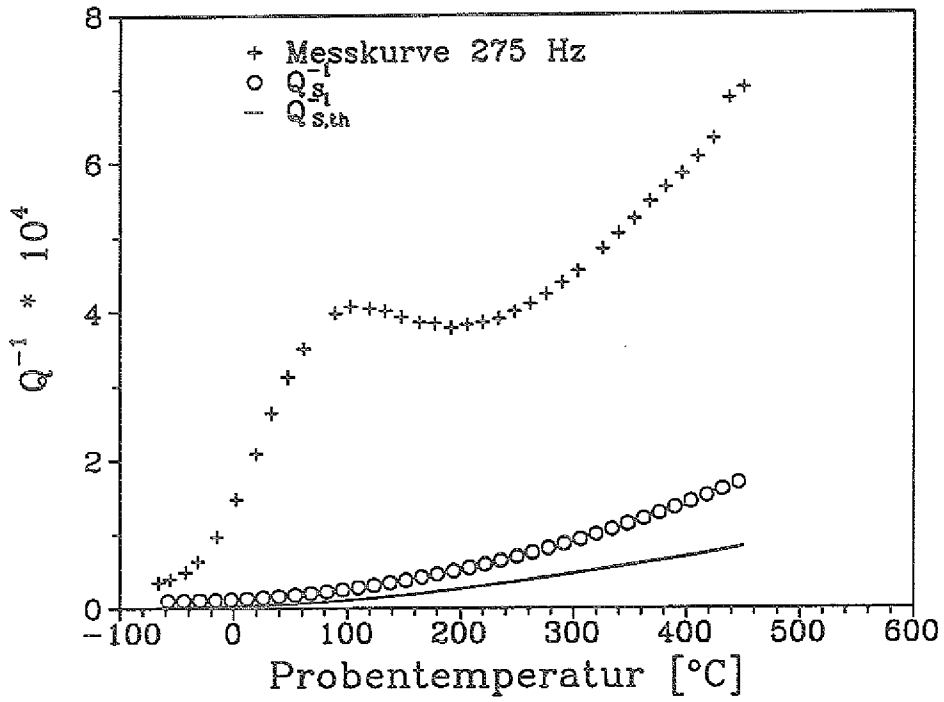


Abb.4.13: Meßkurve (+) einer 4,3 μm dicken Al−Schicht auf $Si/MoSi_{2.2}$. Die Substratbeiträge $Q^{-1}{}_S$ (o) und $Q^{-1}{}_{S,th}$ (—) sind eingezeichnet und zur Auswertung der Meßkurve von dieser abzuziehen.

Dieser HTUG soll im folgenden etwas genauer untersucht werden. Da es sich hierbei um einen Effekt der Schicht handelt, muß der gemessene HTUG gemäß Gl.2.22 auf $Q^{-1}{}_{F,ug}$ umgerechnet werden. Diese lautete:

$$Q^{-1}_{mess} = Q^{-1}_{S,tot} + 3\,\frac{t_F \cdot M_F \cdot A_F}{t_S \cdot M_S \cdot A_S}\; Q^{-1}_{F,tot} \qquad \text{(Gl.2.22)}$$

In Abb.4.14 ist der Al−Untergrund $Q^{-1}{}_{F,ug}$ bei 300°C in der Biege− und Torsionsmode bei zwei festen Korngrößen von 3,4 μm und 4,1 μm in Abhängigkeit von der Schichtdicke in doppelt logarithmischer Darstellung gezeigt. Dieser Untergrund ergibt sich aus der Untersuchung der Schichtdickenabhängigkeit der Dämpfung (vgl. III.1.3 und IV.6).

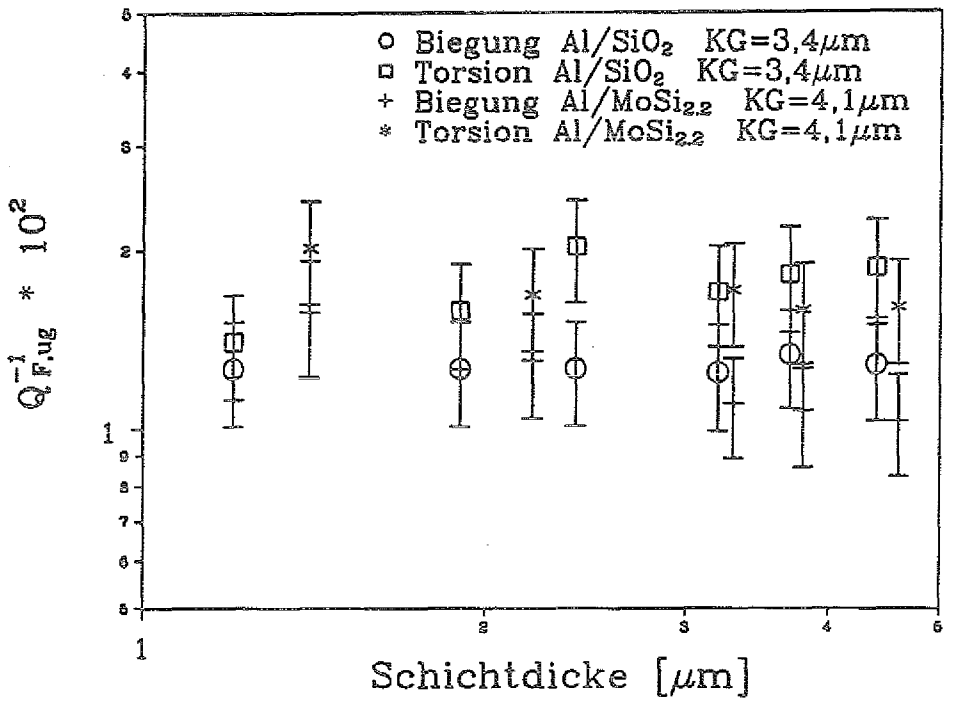


Abb.4.14: Al–Untergrund bei 300°C bei konstanten Korngrößen von 3,4 μm und 4,1 μm in Abhängigkeit von der Schichtdicke in der Biegungs– und der Torsionsmode auf zwei verschiedenen Substratsorten.

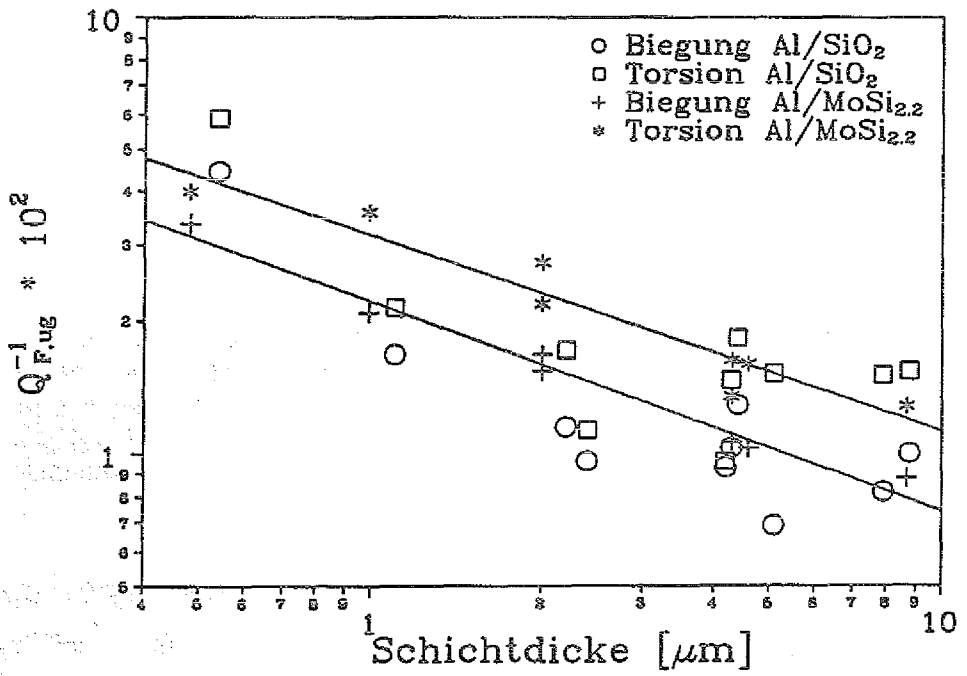


Abb.4.15: Al–Untergrund bei 300°C der Schichten auf Si/SiO_2 (o,□) und $Si/MoSi_{2.2}$ (+,*).

Aus Abb.4.14 entnimmt man, daß der Dämpfungsuntergrund unabhängig von der Schichticke t_F ist. Auffallend ist zum einen, daß der Dämpfungsuntergrund in der Torsionsschwingung um einen Faktor 1,3 höher als der in der Biegeschwingung ist. Zum anderen ist der Untergrund unabhängig vom Substratmaterial.

Abb.4.15 zeigt den Al−Untergrund der Biege− und Torsionsmode bei 300°C als Funktion der Schichtdicke in doppelt logarithmischer Darstellung für die Schichten, bei denen die Korngröße L ungefähr gleich der Schichtdicke ist. Hier entnimmt man den Fits der Datenpunkte der jeweiligen Schwingungsmode an ein Potenzgesetz (eingezeichnete Linien), daß der Dämpfungsuntergrund mit $t_F^{-0.5}$ abfällt. Es kann kein signifikanter Unterschied zwischen den beiden verwendeten Substratsorten festgestellt werden. Auch hier ist der Untergrund der Torsionsmode um einen Faktor 1,3 höher als der in der Biegemode.

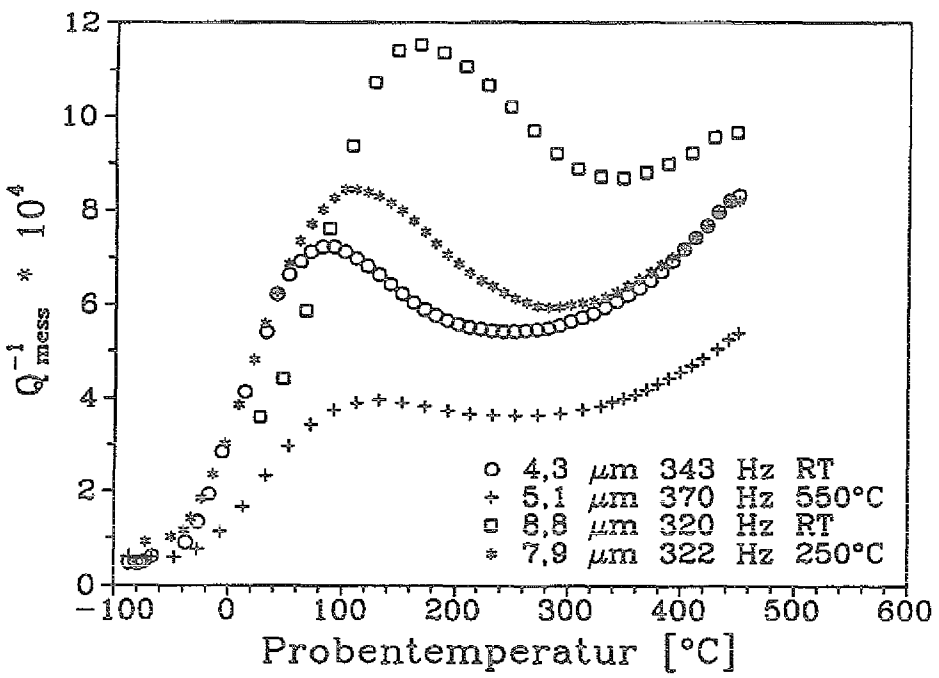


Abb.4.16: Meßkurven von vier auf Si/SiO_2 aufgedampften Al−Schichten. 8,8 μm aufgedampft bei RT (□), 7,9 μm aufgedampft bei 250°C Aufdampftemperatur (*), 4,3 μm aufgedampft bei RT (o) und 5,1 μm aufgedampft bei 550°C (+) jewiels nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'. Der Untergrund sinkt bei ähnlicher Schichtdicke mit zunehmender Korngröße.

Der Untergrund sinkt mit steigender Korngröße bei gleicher Schichtdicke, wie Abb.4.16 belegt. Bei einer nahezu gleichen Schichtdicke (damit gleiches Probenvolumen) von 8,8 und 7,9 μm (bzw. 4,3 und 5,1 μm) und gleichen Meßfrequenzen (damit gleiche Substratdicke) sinkt der Untergrund, wenn die Aufdampftemperatur erhöht wird. Die Proben der Schichtdicken 4,3 und 8,8 μm wurden bei Raumtemperatur, die 5,1 μm dicke Schicht bei 550°C und die 7,9 μm

dicke Schicht bei 250°C aufgedampft. Nach den Ergebnissen der REM−Untersuchungen nimmt der Anteil der kleinen Körner mit steigender Aufdampftemperatur ab. Außerdem ist bei den hohen Temperaturen die Korngröße deutlich höher als die Schichtdicke. Man hat somit nur einen Einfluß der Korngröße L auf die Höhe von $Q^{-1}_{F,ug}$.

IV.5 Auswertebeispiel

Die Auswertung der Meßkurven soll in Abb.4.17 am Beispiel einer bei Raumtemperatur aufgedampften 4,3 μm dicken Al−Schicht auf einem $Si/MoSi_{2.2}$−Substrat exemplarisch erklärt werden. Von der Meßkurve Q^{-1}_{mess} (+) werden die Substratbeiträge, nämlich der thermoelastische Untergrund Q^{-1}_{th} und der intrinsische Substratuntergrund Q^{-1}_{S}, subtrahiert. Man erhält die grob gestichelte Linie. Der Al−Untergrund $Q^{-1}_{F,ug}$ (fein gestrichelte Linie) wird durch eine Funktion der Form $A \cdot e^{-B/T}$ beschrieben und von der grob gestrichelten Kurve subtrahiert. Übrig bleibt dann das Dämpfungsmaximum $Q^{-1}_{F,unk}$. Dieses wird dann gemäß Gl.2.22 auf die Filmdämpfung Q^{-1}_{F} umgerechnet.

An dieser Stelle sollte angemerkt werden, daß die Aktivierungsenergie H für den dem Dämpfungsmaximum zugrunde liegenden Mechanismus in dieser Arbeit nur schlecht bestimmbar war. Aus der Bedingung $\omega\tau=1$ ergibt sich aus Gl.2.2 eine Verschiebung des Maximums in der Temperatur für verschiedene Frequenzen. Das Verhältnis der Frequenzen von Torsion und Biegung beträgt bei der hier gewählten Probengeometrie nur 3,4, so daß bei Aktivierungsenergien der Größenordnung 1 eV nur kleine Temperaturverschiebungen auftreten. Bei einem typischen Fehler in der Bestimmung der Temperaturlage des Maximums von ca. 5°C erhält man große Fehler in der Bestimmung von H (s. Anhang). So wurde hier auf die Ergebnisse von Su /29/ (s. Abb.4.18) zurückgegriffen, der die Aktivierungsenergie zu 0,62 eV für $AlSi_{0.01}$ ($AlSi_{0.01}$ zeigt gleiche Dämpfungsspektren wie das hier verwendete Al /4/) aus acht Frequenzen sehr genau bestimmt hat.

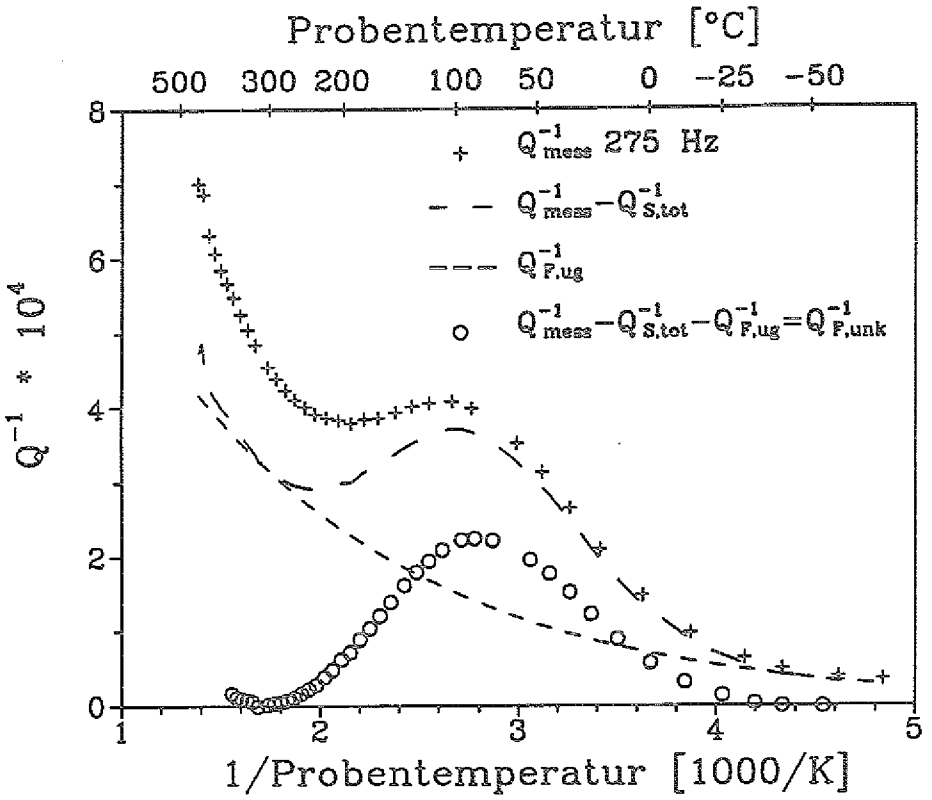


Abb.4.17: Auswertung am Beispiel einer 4,3 μm dicken bei Raumtemperatur aufgedampften Al–Schicht nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Meßkurve (+), resultierende Kurve nach Subtraktion der Substratbeiträge (— —), Al–Untergrund (– –) und resultierendes Maximum $Q^{-1}{}_{F,unk}$ (o).

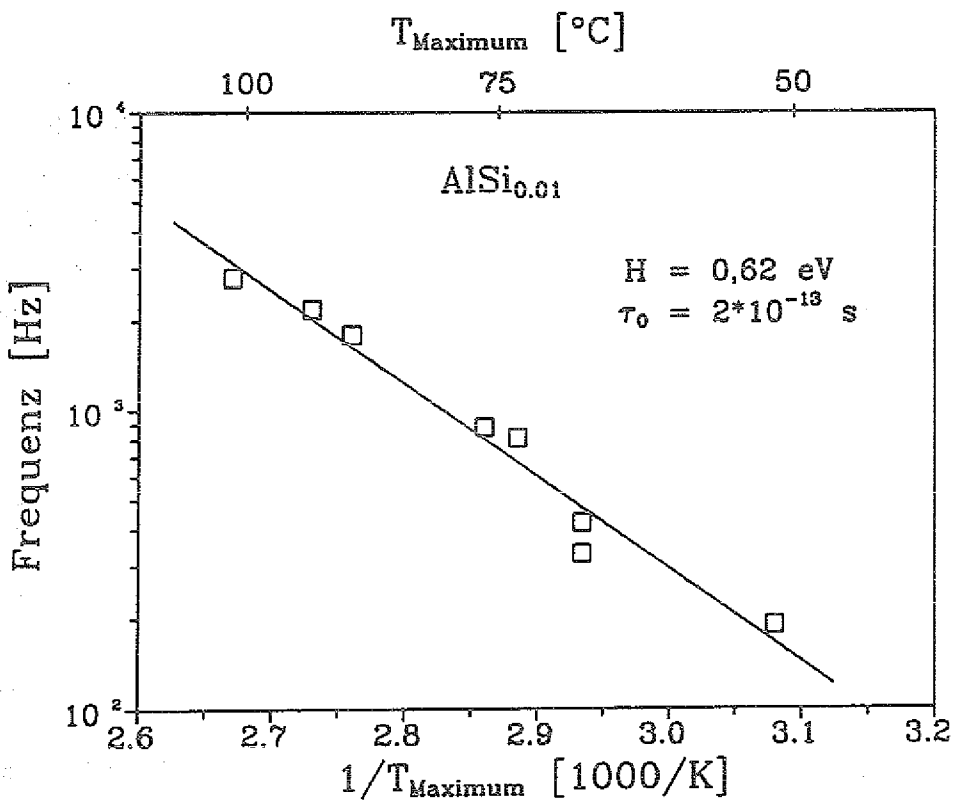


Abb.4.18: Bestimmung der Aktivierungsenergie in $AlSi_{0.01}$ aus 8 Frequenzen und den zugehörigen Temperaturlagen des Maximums (nach /29/).

IV.6 Ergebnisse der Aufdampfschichten

IV.6.1 Al auf Si/SiO_2 und $Si/MoSi_{2.2}$

Im folgenden sollen anhand der Abb.4.19–23 einige Besonderheiten der Meßergebnisse dargestellt werden. Eine zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse der Schichten, bei denen die Korngröße ungefähr gleich der Schichtdicke ist, wird in den Abb.4.24–26 gegeben werden. Die Ergebnisse der Untersuchung der Dickenabhängigkeit werden in den Abb.4.27–30 dargestellt.

Im Verlauf dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Al–Sorten verwendet. Bei der einen Sorte (Typ I, 99,999% Reinheit) sind die Dämpfungsmaxima um etwa einen Faktor zwei höher als bei der Sorte II (Typ II, 99,9999% Reinheit), obwohl der Untergrund $Q^{-1}_{F,ug}$ gleich ist. Dieser Wechsel des Aufdampfmaterials betrifft nur die Schichten auf Si/SiO_2. Die Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ wurden alle mit Al vom Typ I hergestellt.

In Abb.4.19 sind die Ergebnisse der bei Raumtemperatur auf $Si/MoSi_{2.2}$–Substrate aufgedampften Al–Schichten dargestellt, in Abb.4.21 und 4.22 die Ergebnisse für die zwei verschiedenen Al–Sorten auf Si/SiO_2, jeweils für die Biegeschwingung. Die Maxima wurden aus den Meßkurven gemäß §IV.5 gewonnen.

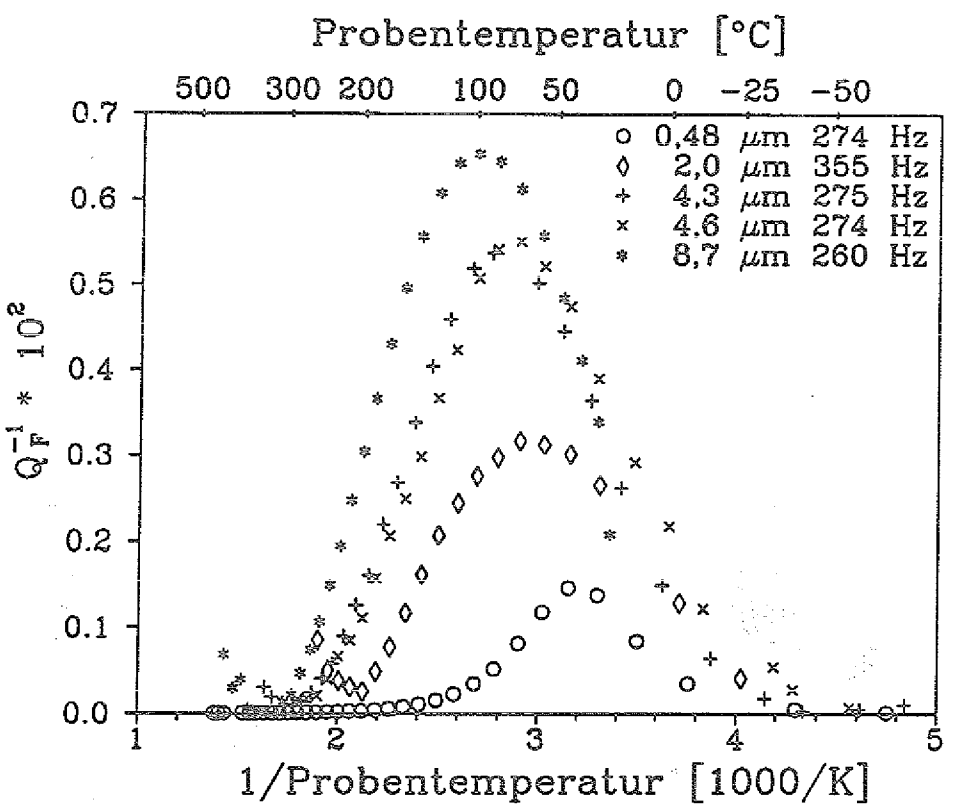


Abb.4.19: Dämpfungsspektrum des Biegemodus der Al–Schichten (Typ I) auf den $Si/MoSi_{2.2}$–Substraten für verschiedene Schichtdicken nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'.

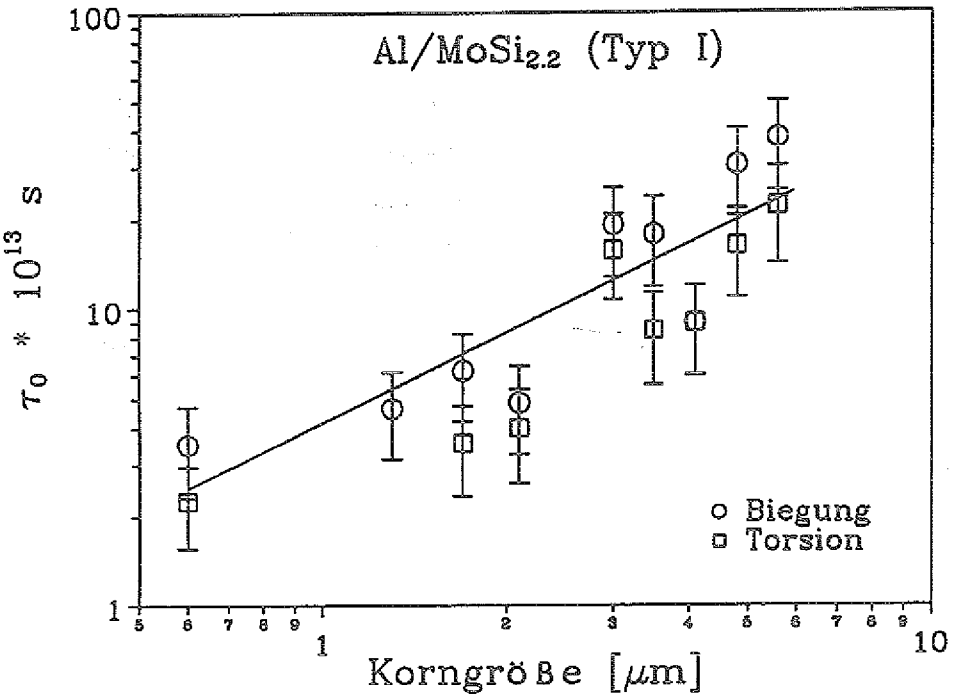


Abb.4.20: Präexponentieller Faktor τ_0 der Relaxationszeit τ als Funktion der Korngröße für die Schichten auf den $Si/MoSi_{2.2}$–Substraten nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'. Dabei wurde eine Aktivierungsenergie von 0,6 eV angenommen.

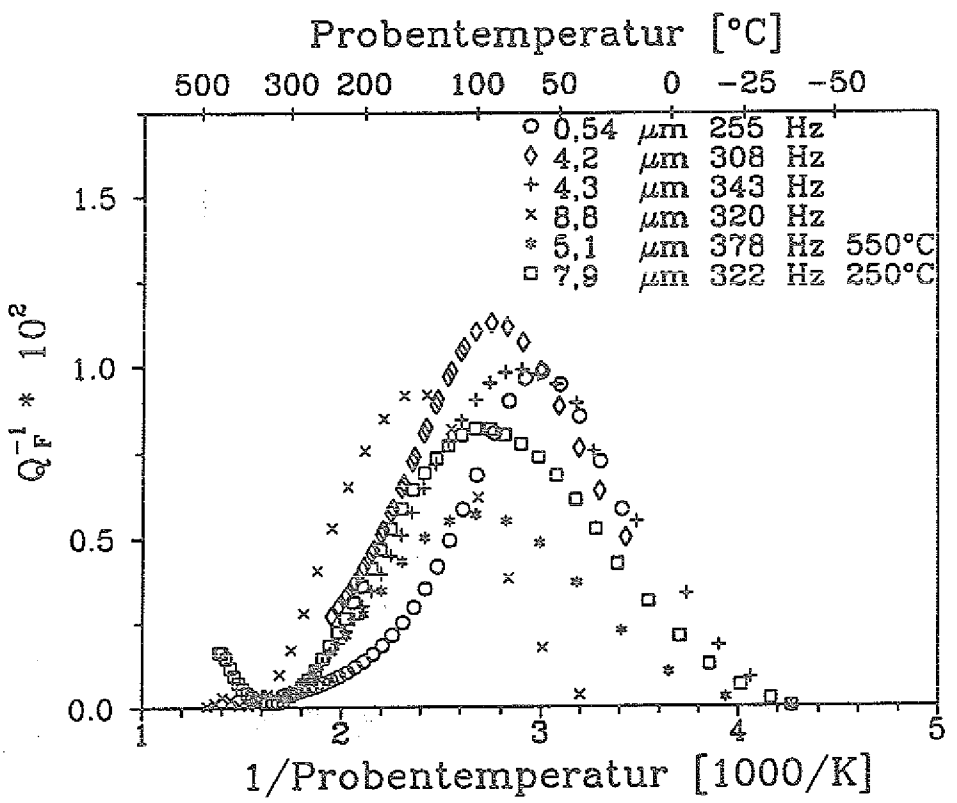


Abb.4.21: Dämpfungsspektrum des Biegemodus der Typ I Al–Schichten auf Si/SiO_2 für verschiedene Schichtdicken nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'.

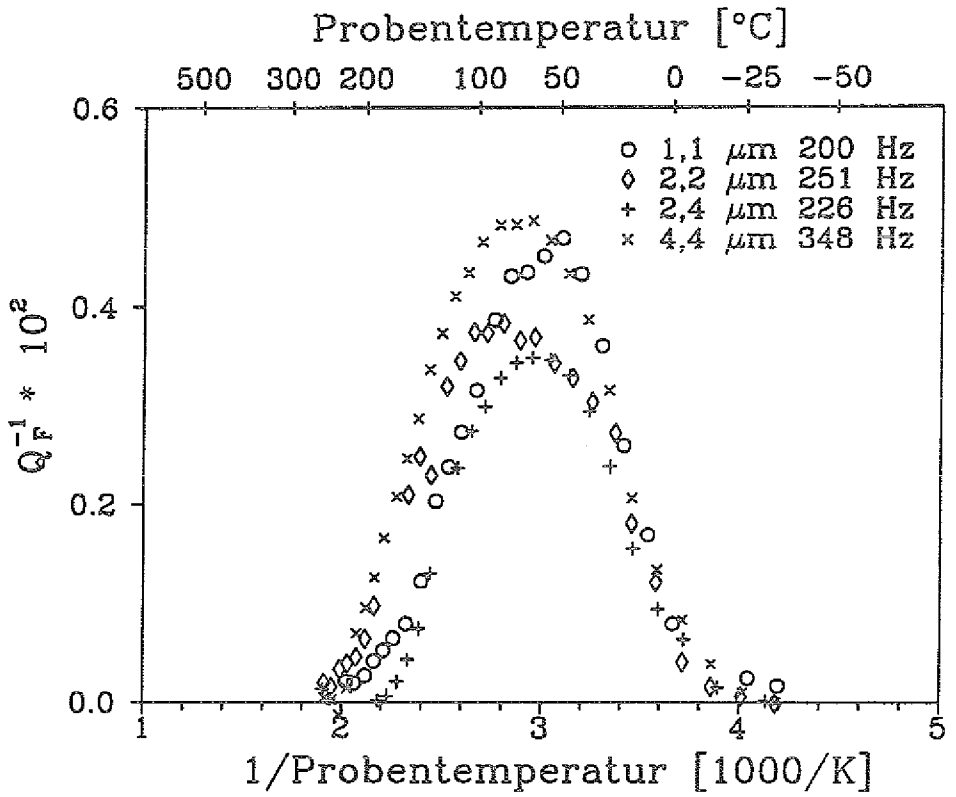


Abb.4.22: Dämpfungsspektrum des Biegemodus der Typ II Al−Schichten auf Si/SiO_2 für verschiedene Schichtdicken nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'.

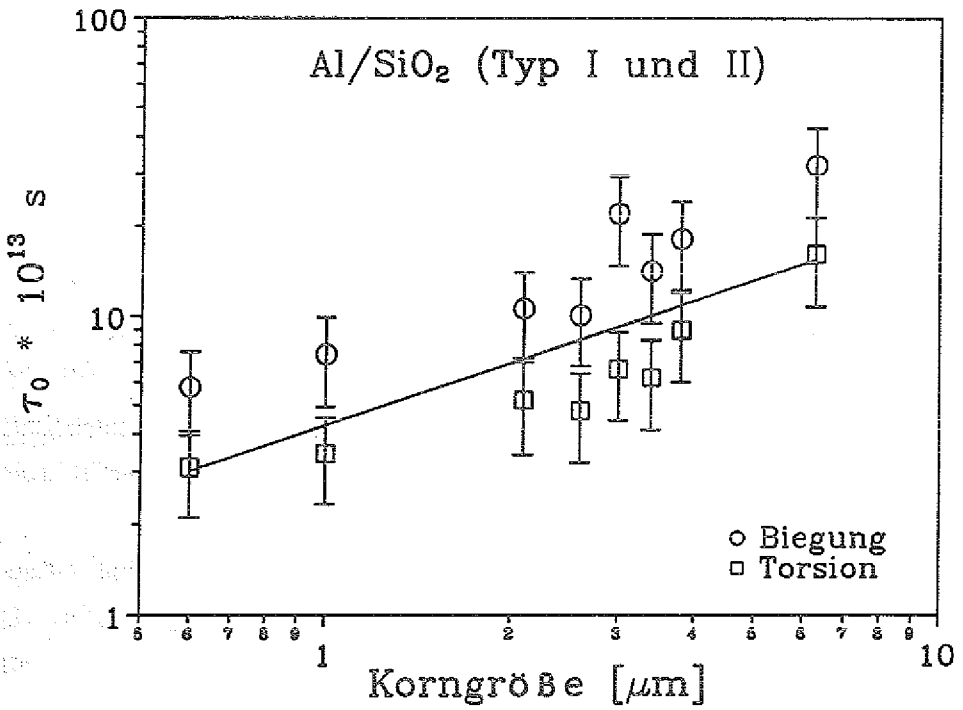


Abb.4.23: Präexponentieller Faktor τ_0 der Relaxationszeit τ als Funktion der Korngröße für die Schichten auf den Si/SiO_2−Substraten nach Tempern der Proben bei 450°C für 30'. Dabei wurde eine Aktivierungsenergie von 0,6 eV angenommen.

Der Effekt des Ansteigens des Dämpfungsmaximums mit steigender Schichtdicke (und damit steigender Korngröße) wurde nur bei den $Si/MoSi_{2.2}$–Substraten gefunden. Bei Verwendung dieser Substrate ist eine Verschiebung des Maximums zu höherer Temperatur mit steigender Schichtdicke und Korngröße zu beobachten.

Nimmt man an, daß die Aktivierungsenergie H = 0,6 eV (vgl. Abb.4.18) unabhängig von der Korngröße ist, so kann man aus der Temperaturlage des Maximums das τ_0 der Relaxationszeit τ gemäß Gl.2.2 ausrechnen. In Abb.4.20 ist das so berechnete τ_0 als Funktion der Korngröße L aufgetragen. Dem Fit der Datenpunkte an ein Potenzgesetz (durchgezogene Linie) entnimmt man, daß $\tau_0 \propto L^1$ ist.

Bei Verwendung der Si/SiO_2–Substrate ist die Höhe der Maxima bei der jeweils verwendeten Al–Sorte weitgehend unabhängig von Korngröße und Schichtdicke (s. Abb.4.21–4.22,4.24). Eine Ausnahme bildet nur die bei 550°C aufgedampfte Probe. Diese wurde noch mit dem Al vom Typ I hergestellt, von den Höhen der Maxima her würde sie jedoch zum Typ II passen. Eine mögliche Erklärung wäre die drastisch veränderte Kornstruktur (vgl. Abb.4.5 und 4.6). Die Verschiebung des Maximums mit steigender Schichtdicke und Korngröße ist kaum zu erkennen.

Rechnet man das τ_0 analog zu den Schichten auf den $Si/MoSi_{2.2}$-Substraten aus, so findet man (trotz der kaum zu erkennenden Verschiebung des Maximums), daß τ_0 mit der Korngröße ansteigt (s. Abb.4.23). Aus dem Fit entnimmt man, daß $\tau_0 \propto L^{0,7}$ ist. Die bei Raumtemperatur aufgedampfte 8,8 μm dicke Schicht sowie die bei 550°C hergestellte Schicht wurden wurden wegen der Besonderheiten der Maxima nicht berücksichtigt.

Auffallend ist die Temperaturlage des Maximums der bei Raumtemperatur aufgedampften 8,8 μm dicken Al–Schicht. Das Maximum ist um ca. 50°C zu höherer Temperatur verschoben. Dieses Ergebnis konnte für weitere ca. 8 μm dicke Al–Schichten, die bei Raumtemperatur hergestellt wurden, reproduziert werden. All diese Proben zeigen die gleiche Temperaturverschiebung des Maximums. Wird die Aufdampftemperatur auf 250°C erhöht, wird diese Verschiebung nicht beobachtet. Dieser Effekt ist unverstanden und soll auch im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht werden.

Alle Maxima der Aufdampfschichten sind gegenüber dem reinen Debye–Maximum aus Abb.2.2 in $\log(\omega\tau)$ um einen Faktor drei verbreitert. Die Relaxationsstärke Δ ist somit größer als $2 \cdot Q^{-1}{}_{F,max}$, was Gl.2.3 für ein reines Debye–Maximum vorhersagt.

In Abb.4.24 ist die Höhe des Dämpfungsmaximums $Q^{-1}{}_{F,max}$ gegen die mittlere Korngröße für die Schichten auf Si/SiO_2–Substraten dargestellt. Die gestrichelten Linien sind dabei als Orientierungshilfe eingezeichnet. Man erkennt die

zwei Typen von Proben. Alle Maxima sind im hier untersuchten Korngrößenbereich von 0,5 – 30 μm unabhängig von der Korngröße.

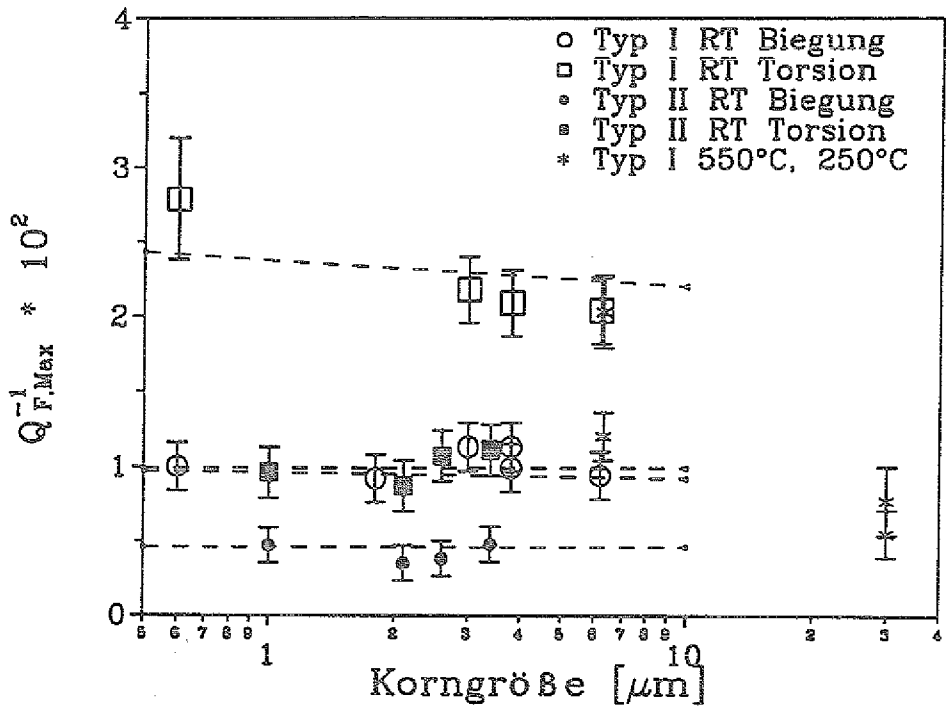


Abb.4.24: $Q^{-1}_{F,max}$ der Schichten auf Si/SiO_2. Zwei Typen von Schichten sind zu unterscheiden: Typ I: Biegung (o), Torsion (□), Typ II: Biegung (•), Torsion (■). Die "*" stellen die Proben mit hoher Aufdampftemperatur dar. (Die gestrichelten Linien dienen nur zur Orientierung)

Abb.4.25 zeigt die Ergebnisse für die Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$. Man erkennt sowohl in der Biegung (o) als auch in der Torsion (□) ein Ansteigen des Dämpfungsmaximums mit der Korngröße. Um diese Tendenz zu überprüfen, wurden zwei Proben bei höherer Temperatur (500°C) nachgetempert, wodurch die Körner etwas vergrößert wurden. Diese Proben sind als "•" (Biegung) und "■" (Torsion) in Abb.4.25 eingezeichnet. Die Vergleichswerte der normalen Temperung (450°C, 30') sind in Abb.4.25 durch die Verbindungspfeile gekennzeichnet. Auch bei diesen Proben wird das Ansteigen des Dämpfungsmaximums mit steigender Korngröße beobachtet.

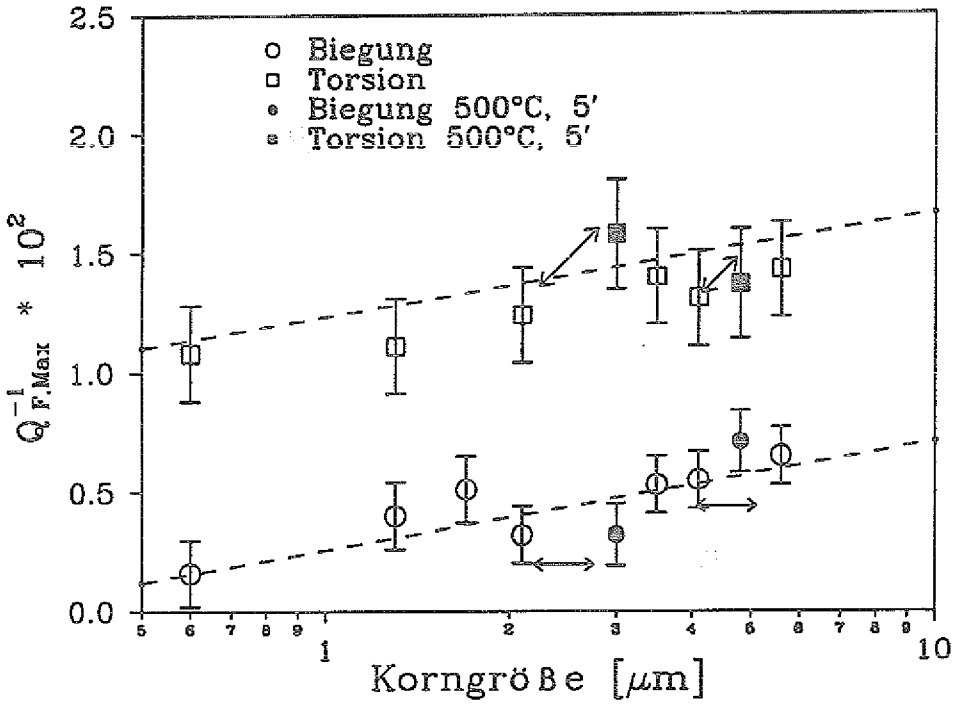


Abb.4.25: $Q^{-1}_{F,max}$ der Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ für Biegung (o) und Torsion (□). Die "●" (Biegung) und "■" (Torsion) repräsentieren Proben, die zusätzlich bei 500°C nachgetempert wurden, um die Korngröße zu erhöhen. Diese sind mit den Punkten jeweils einen Korngrößenwert kleiner zu vergleichen (durch die Verbindungspfeile gekennzeichnet).

In Abb.4.26 ist der R−Faktor als Verhältnis der Maxima in Torsion und Biegung dargestellt. Bei großen Schichtdicken nähert sich R dem Wert 1,7. Die Schichten auf Si/SiO_2 zeigen ein leichtes Ansteigen von R mit kleiner werdender Schichtdicke. Bei den Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ ist das Ansteigen von R zu kleineren Schichtdicken wesentlich ausgeprägter. Nach Bohn und Su /6/ würde dies bedeuten, daß die Al−Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ besser haften als auf Si/SiO_2.

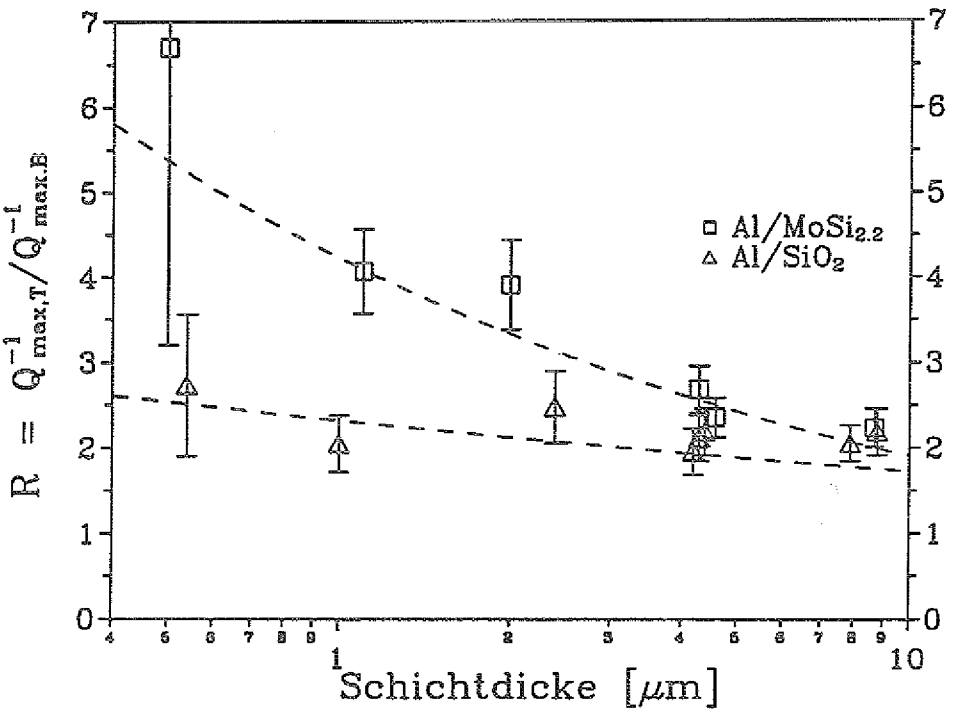


Abb.4.26: Verhältnis der Dämpfungsmaxima in Torsion und Biegung in Abhängigkeit von der Schichtdicke für Al auf Si/SiO_2 (△) bzw. auf $MoSi_{2.2}$ (□).

Weiterhin wurde auch bei fester Korngröße die Abhängigkeit des Dämpfungsmaximums von der Schichtdicke untersucht. Dazu wurde bei einer getemperten Probe sukzessive die Schicht heruntergeätzt und nach jedem Ätzen das Dämpfungsspektrum aufgenommen. Dieses Experiment wurde für Schichten sowohl auf Si/SiO_2– als auch auf $Si/MoSi_{2.2}$–Substraten durchgeführt.

In Abb.4.27 ist $Q^{-1}{}_F$ für die Schicht auf Si/SiO_2 in der Torsionsmode in Abhängigkeit von der Schichtdicke gezeigt, in 4.29 die der Schicht auf $Si/MoSi_{2.2}$. Die gezeigten Effekte sind analog für die Biegeschwingung. Man erkennt, daß mit kleinen Schichtdicken das Maximum deutlich niedriger wird (Abb.4.27 und 4.29).

In Abb.4.28 ist die Höhe des Dämpfungsmaximums $Q^{-1}{}_{F,max}$ in Abhängigkeit vom Verhältnis Schichtdicke t_F zur Korngröße L für eine Probe auf Si/SiO_2 in Biegung und Torsion dargestellt. Die mittlere Korngröße beträgt 3,4 μm, die Ausgangsschichtdicke 4,4 μm. Man erkennt für beide Schwingungsmoden für größere Schichtdicken eine nur geringe Abnahme, die dann für Verhältnisse $t_F/L < 0{,}5$ stärker wird. Der R–Faktor bestimmt sich über den gesamten Bereich zu $1{,}9 \pm 0{,}2$.

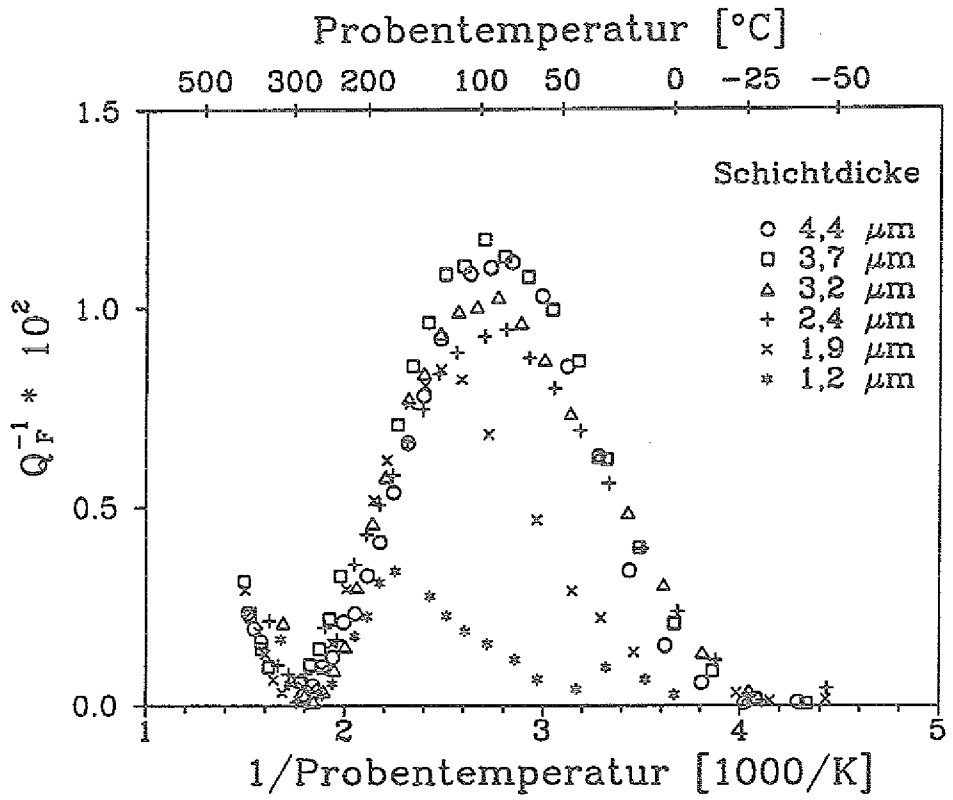


Abb.4.27: Entwicklung von Q^{-1}_F einer Al–Schicht auf Si/SiO_2 mit einer Korngröße von 3,4 µm mit fallender Schichtdicke in der Torsionsschwingung.

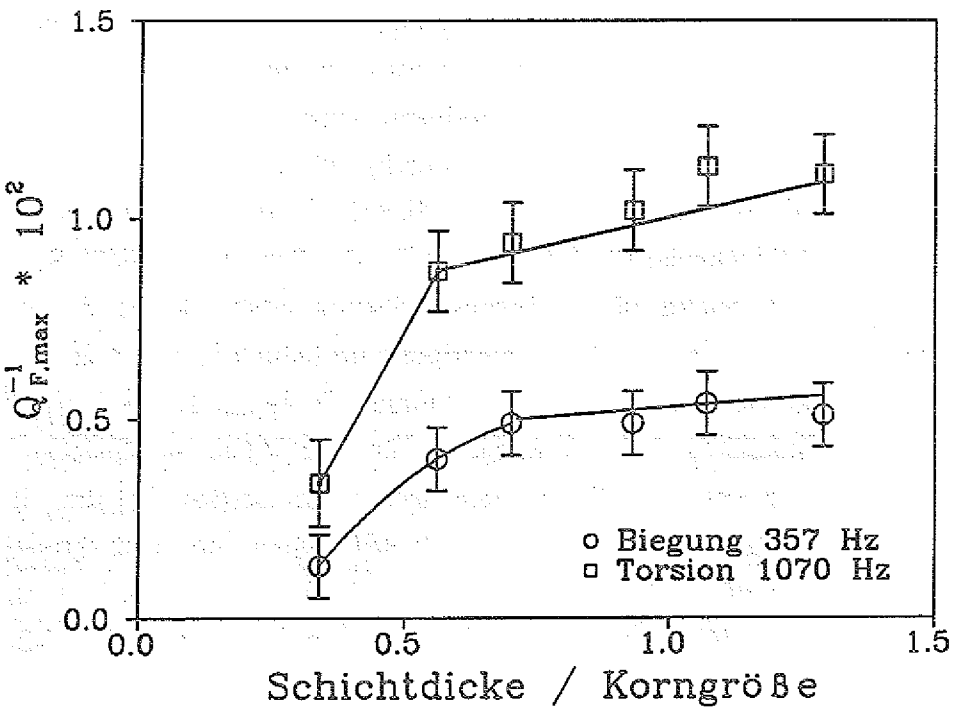


Abb.4.28: $Q^{-1}_{F,max}$ einer Al–Schicht auf Si/SiO_2 in Torsion (□) und Biegung (○) in Abhängigkeit vom Verhältnis Schichtdicke zu Korngröße bei fester Korngröße von 3,4 µm.

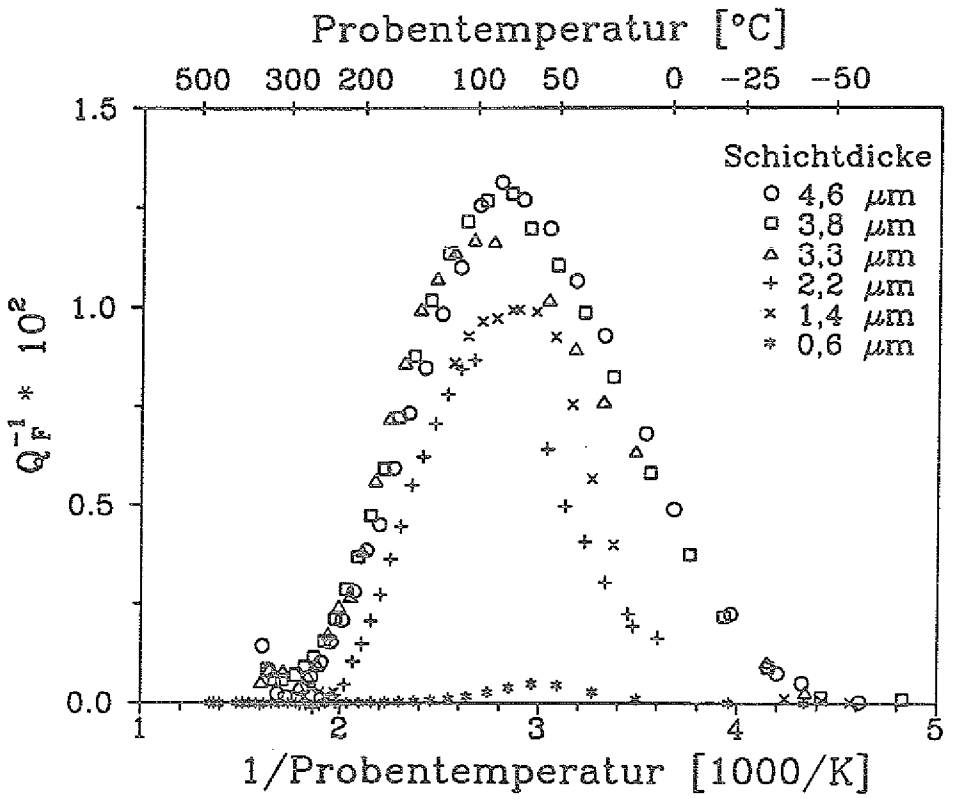


Abb.4.29: Entwicklung von Q^{-1}_F einer Al−Schicht auf $Si/MoSi_{2.2}$ mit einer Korngröße von 4,1 µm mit fallender Schichtdicke in der Torsionsschwingung.

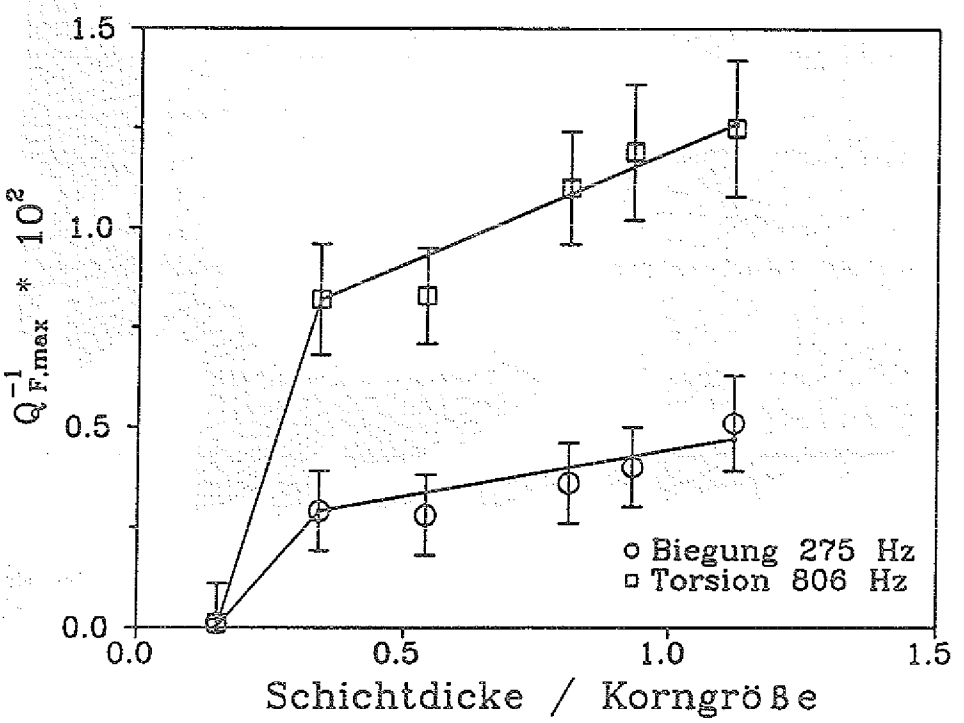


Abb.4.30: $Q^{-1}_{F,max}$ einer Al−Schicht auf $Si/MoSi_{2.2}$ in Torsion (□) und Biegung (○) in Abhängigkeit vom Verhältnis Schichtdicke zu Korngröße bei fester Korngröße von 4,1 µm.

Die Probe auf $Si/MoSi_{2.2}$–Substraten zeigt ein etwas anderes Verhalten (s. Abb.4.30). Sie hat eine Korngröße von 4,1 μm und einer Ausgangsschichtdicke von 4,6 μm. In beiden Schwingungsmoden wird bei großen Schichtdicken ein linearer Anstieg von $Q^{-1}_{F,max}$ mit der Schichtdicke beobachtet. Für Verhältnisse $t_F/L < 0,5$ knickt $Q^{-1}_{F,max}$ auch hier ab und wird deutlich kleiner. Der R–Faktor bestimmt sich hier über den gesamten Verlauf zu $2,7 \pm 0,2$.

Das Verschwinden von $Q^{-1}_{F,max}$ bei kleinen Schichtdicken kann mit Hilfe der Abbildungen 4.31 und 4.32 erklärt werden. Beide zeigen die Ergebnisse von rasterkraftmikroskopischen Untersuchungen der Proben nach dem letzten Ätzschritt. Man erkennt, daß die Schichten an den Korngrenzen bis fast auf das Substrat weggeätzt wurden. Die verwendeten Ätzmischungen ätzen also nicht nur flächig, sondern bevorzugt an den Korngrenzen des Al. Bei großen Schichtdicken fällt diese Einbeulung an den Korngrenzen nicht ins Gewicht. Werden diese Ätzgruben jedoch fast so tief wie die verbleibende Schichtdicke, wird ein Effekt auf das Dämpfungsmaximum deutlich.

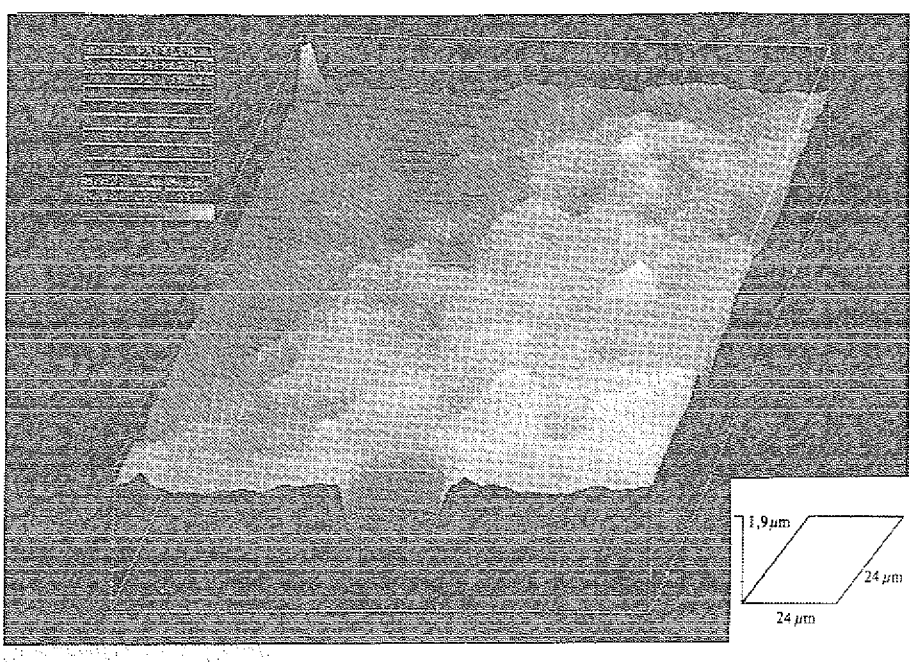


Abb.4.31: Rasterkraftmikroskopische Aufnahme der Schichtoberfläche einer Probe auf Si/SiO_2 mit der Ausgangsschichtdicke von 4,4 μm und einer Korngröße von 3,4 μm nach dem letzten Ätzschritt.

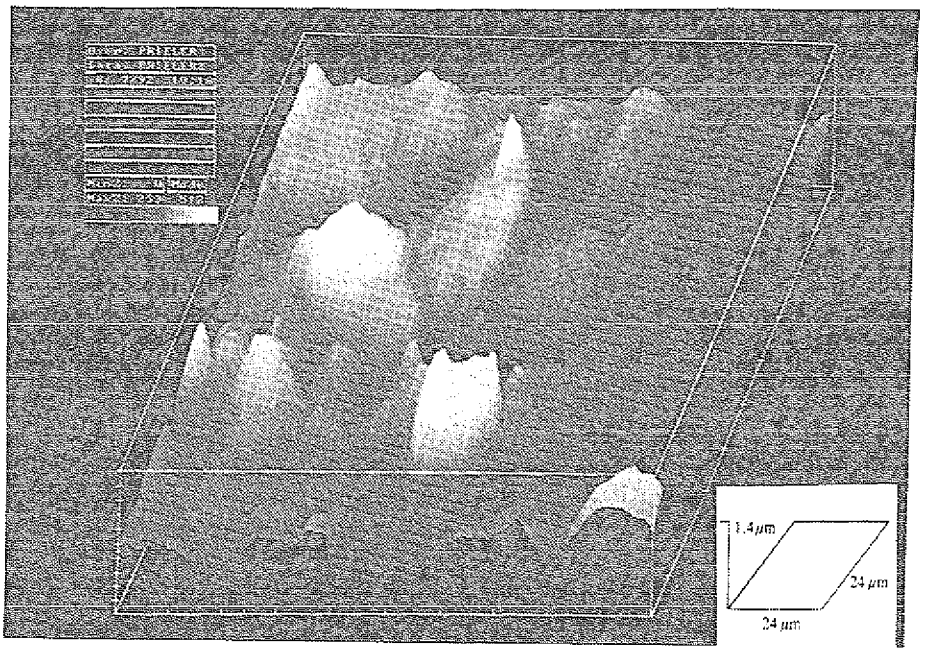


Abb.4.32: Rasterkraftmikroskopische Aufnahme der Schichtoberfläche einer Probe auf $Si/MoSi_{2.2}$ mit der Ausgangsschichtdicke von 4,6 μm und einer Korngröße von 4,1 μm nach dem letzten Ätzschritt.

IV.6.2 Al auf $Si/SiO_2/Au$ und Si/Ti/TiN

Im folgenden sollen noch die Ergebnisse der Schichten auf den restlichen Substraten vorgestellt werden. Abb.4.33 zeigt die Meßkurven für eine 4 μm dicke Al−Schicht auf einem $Si/SiO_2/Au$−Substrat sowie die Meßkurven einer 0,8 μm dicken Schicht auf Si/Ti/TiN jeweils in Biegung und Torsion. Bei Verwendung dieser Substrate tritt offensichtlich kein Dämpfungsmaximum auf.

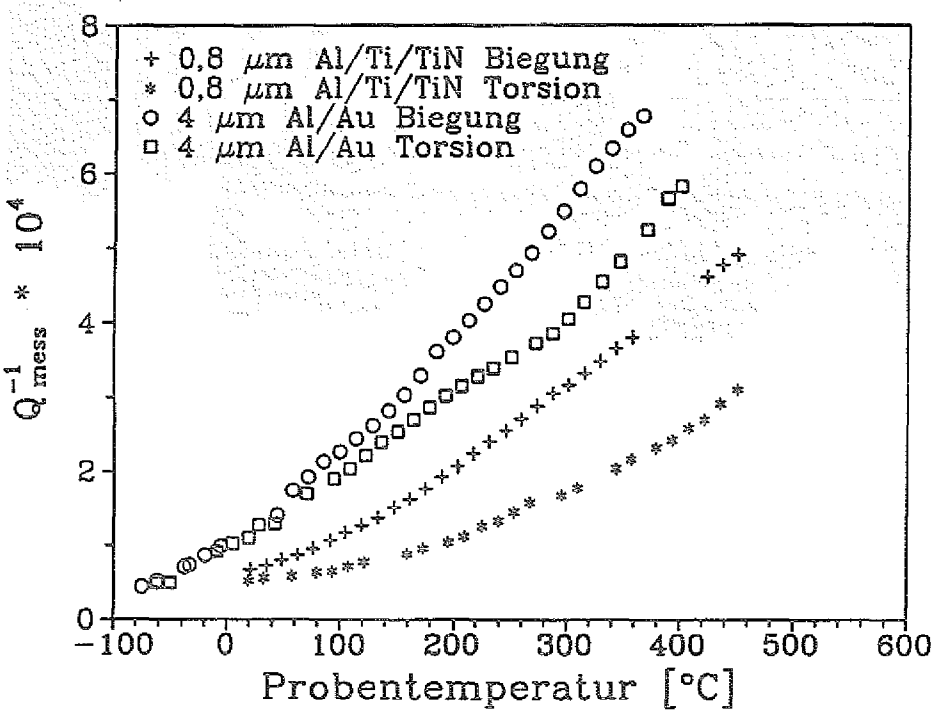


Abb.4.33: Gemessene Dämpfungsspektren einer 4 μm dicken Al−Schicht auf $Si/SiO_2/Au$ und einer 0,8 μm dicken Al−Schicht auf Si/Ti/TiN nach Tempern der Proben bei 450°C für 30' in Biegung und Torsion. In allen Fällen ist kein Maximum zu beobachten.

Das Verschwinden des Maximums könnte sich mit der Bildung einer intermetallischen Phase an den Korngrenzen erklären lassen. Im Fall von Au als Zwischenschicht kann sich die Phase $AuAl_2$ /30/, im Fall des Ti sich die Phase $TiAl_3$ /31/ ausbilden. Diese Phasen scheinen die Korngrenzenstruktur des Al so zu ändern, daß das Maximum ausbleibt.

IV.7 Ergebnisse der strukturierten Proben

Ziel der Untersuchung an den 0,8 μm dicken strukturierten $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$–Proben war es, durch die Herstellung einer definierten Kornstruktur weitere Informationen über den Mechanismus des Dämpfungsmaximums zu gewinnen. Dazu wurden zunächst 2x2–Strukturen (vgl. §III.2.3) mit dem Ziel hergestellt, eine bambusartige Kornstruktur zu erhalten, bei der alle Korngrenzen senkrecht zu den Streifen stehen und über die gesamte Streifenbreite reichen sollten.

Abb.4.34: TEM–Aufnahme der $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$ 2x2–Struktur nach Tempern der Probe bei 450°C für 30'. Die dunklen Streifen zeigen die Schicht, die hellen Streifen zeigen die Bereiche, an denen das Substrat bei der TEM–Probenpräperation komplett weggeätzt wurde.

Dieses Ziel wurde nicht ganz erreicht, wie Abb.4.34 belegt. Auf dieser TEM–Aufnahme erkennt man zwar die Tendenz einer Bambusstruktur, es gibt aber noch große Probenbereiche, in denen Korngrenzentripelpunkte erkennbar sind. Jedoch gibt es fast keine Körner mehr, die an jeder Korngrenze ein Nachbarkorn besitzten, d.h. es gibt keine "normale" polykristalline Struktur mehr. Das Maximum in den Dämpfungsspektren ist im Vergleich zur vollbedeckten Probe nahezu vollständig unterdrückt (s. Abb.4.35).

Das Verschwinden des Maximums ist unabhängig von der Richtung der Streifen zur Probengeometrie. Es wurden Proben hergestellt, bei denen zum einen die Streifen in Probenlängsrichtung angeordnet waren, zum anderen Proben, bei denen die Streifen in Probenquerrichtung angeordnet waren. Bei beiden Probengeometrien ist sowohl in der Biegungs– als auch in der Torsionsmode kein Maximum zu erkennen.

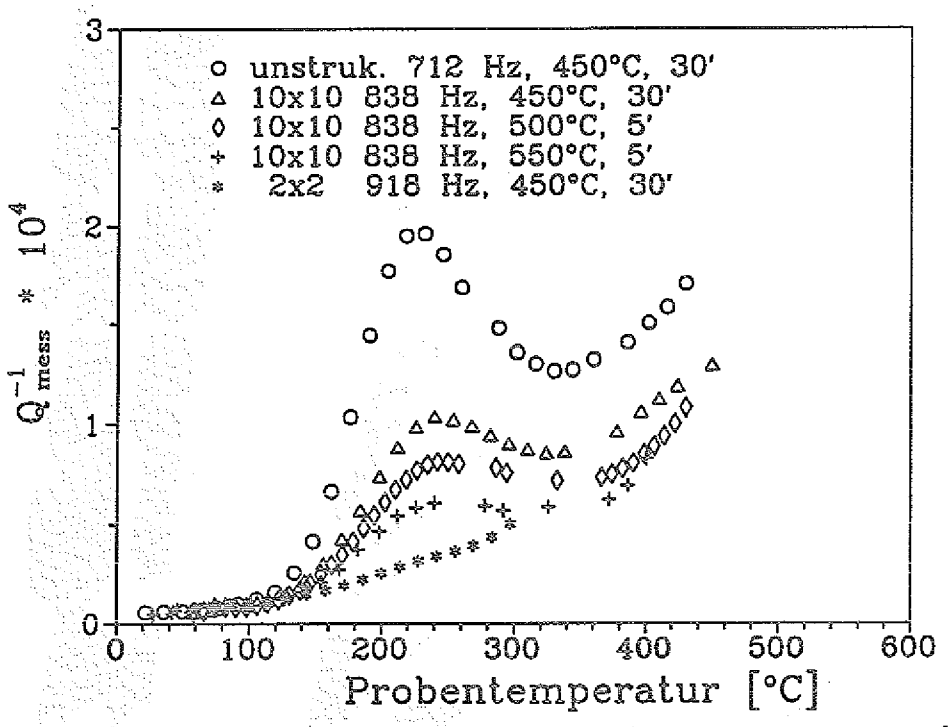


Abb.4.35: Meßkurven der Torsionsschwingung aus aufgestäubten $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$–Filmen strukturierten Proben.

Den gleichen Effekt beobachtet man auch bei den strukturierten Al–Schichten (s. Abb.4.36). Hierbei betrug die Streifenbreite 1,5 μm bei einer Schichtdicke von 1 μm. In der TEM–Aufnahme der Probe (s. Abb.4.37) erkennt man eine fast vollständige Bambusstruktur.

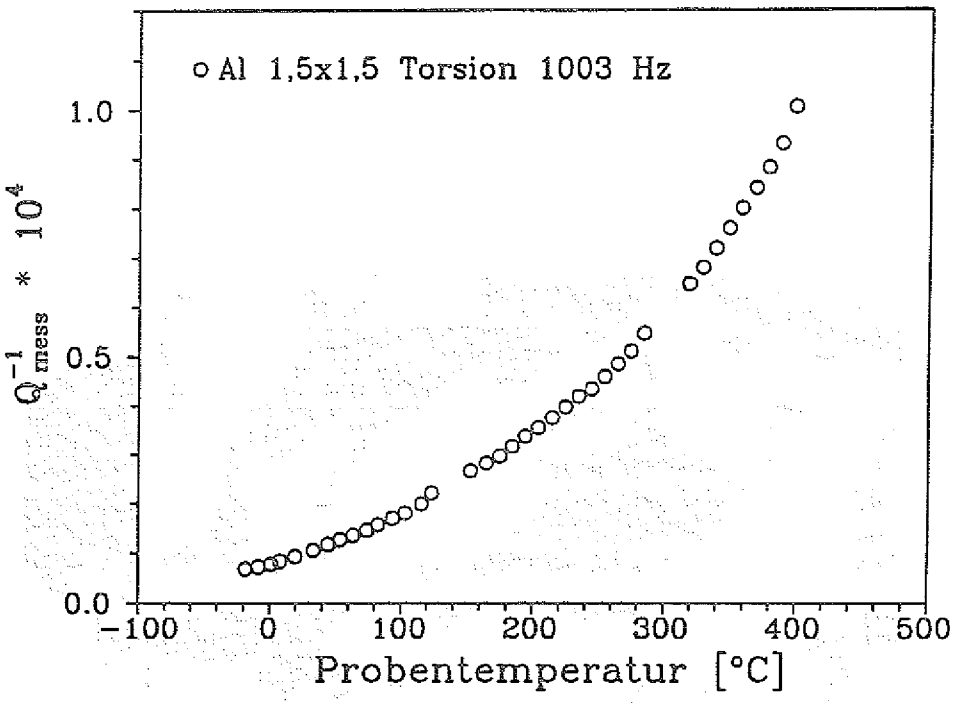


Abb.4.36: Meßkurve der Al−1,5x1,5−Struktur nach Tempern der Probe bei 450°C für 30' in der Torsionsmode.

Abb.4.37: TEM−Aufnahme der Al−1,5x1,5−Struktur nach Tempern der Probe bei 450°C für 30.' Die dunklen Streifen zeigen die Schicht, die hellen Streifen zeigen die Bereiche, an denen das Substrat bei der TEM−Probenpräperarion komplett weggeätzt wurde.

Um diesem Verschwinden des Maximums nachzugehen, wurden 10x10−Strukturen hergestellt. Diese Probe wurde nach dem standardmäßigen Tempern für 30' bei 450°C noch zwei weiteren Temperschritten für jeweils 5' bei 500 und 550°C unterzogen. Damit wird die Korngröße erhöht (s. Abb. 4.38−4.40).

Die Korngröße wurde, wie bei den vollbedeckten Filmen, mit Hilfe des Durchmesserverfahrens bestimmt. Die zugehörigen Schnitte wurden dabei in Richtung der Streifen gelegt.

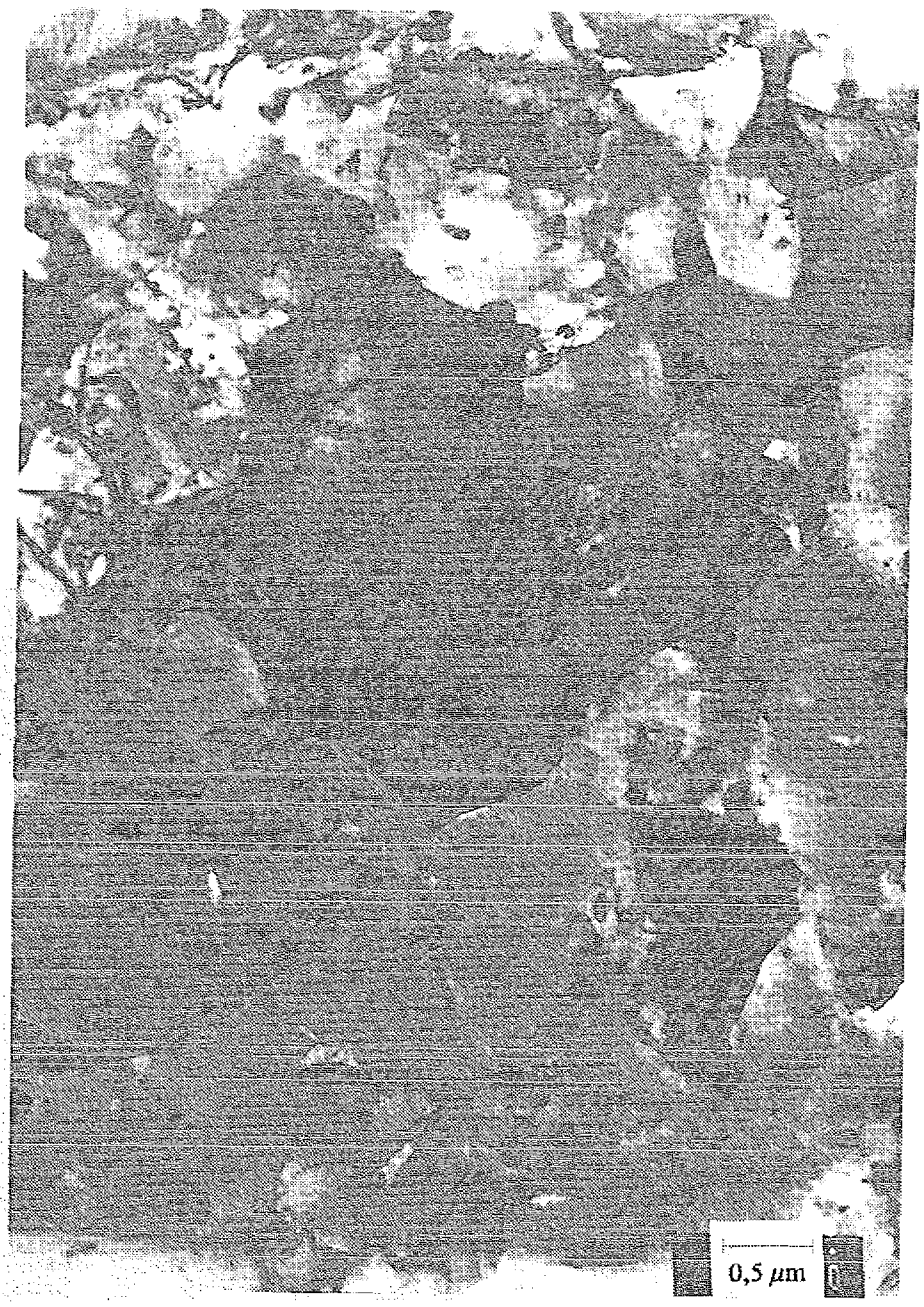


Abb.4.38: TEM−Aufnahme der $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$ 10x10−Struktur nach Tempern der Probe für 30' bei 450°C. Die Korngröße ermittelt sich zu 0,7 μm bei einer Schichtdicke von 0,8 μm. Die Aufnahme zeigt eine Probenstelle mitten auf einem Streifen, deshalb sind die Streifenränder nicht zu sehen.

Abb.4.39: TEM−Aufnahme der $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$ 10x10−Struktur nach Tempern der Probe für 5' bei 500°C. Die Korngröße ermittelt sich zu 1,5 μm bei einer Schichtdicke von 0,8 μm. Die Aufnahme zeigt eine Probenstelle mitten auf einem Streifen, deshalb sind die Streifenränder nicht zu sehen.

Abb.4.40: TEM–Aufnahme der $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$ 10x10–Struktur nach Tempern der Probe für 5' bei 550°C. Die Korngröße ermittelt sich zu 2,4 μm bei einer Schichtdicke von 0,8 μm.

In den zugehörigen Dämpfungsspektren (in Abb.4.35 sind die Meßkurven, in Abb.4.42 das daraus ermittelte Q^{-1}_F der Torsionsschwingung dargestellt) erkennt man eine Abnahme des Maximums mit zunehmender Anlaßtemperatur (respektive steigender Korngröße). Dieser Effekt wird bei vollbedeckten Schichten nicht beobachtet (s .Abb.4.41). Bei diesen Proben wird die Korngröße durch das Nachtempern nicht weiter erhöht.

In Abb.4.43 ist, analog zu den Untersuchungen der Dickenabhängigkeit vollbedeckter Filme, $Q^{-1}_{F,max}$ der 10x10-Strukturen gegen das Verhältnis von Schichtdicke t_F zur Korngröße L aufgetragen. Man erkennt, daß auch hier $Q^{-1}_{F,max}$ für $t_F/L < 0{,}5$ abknickt und verschwindet.

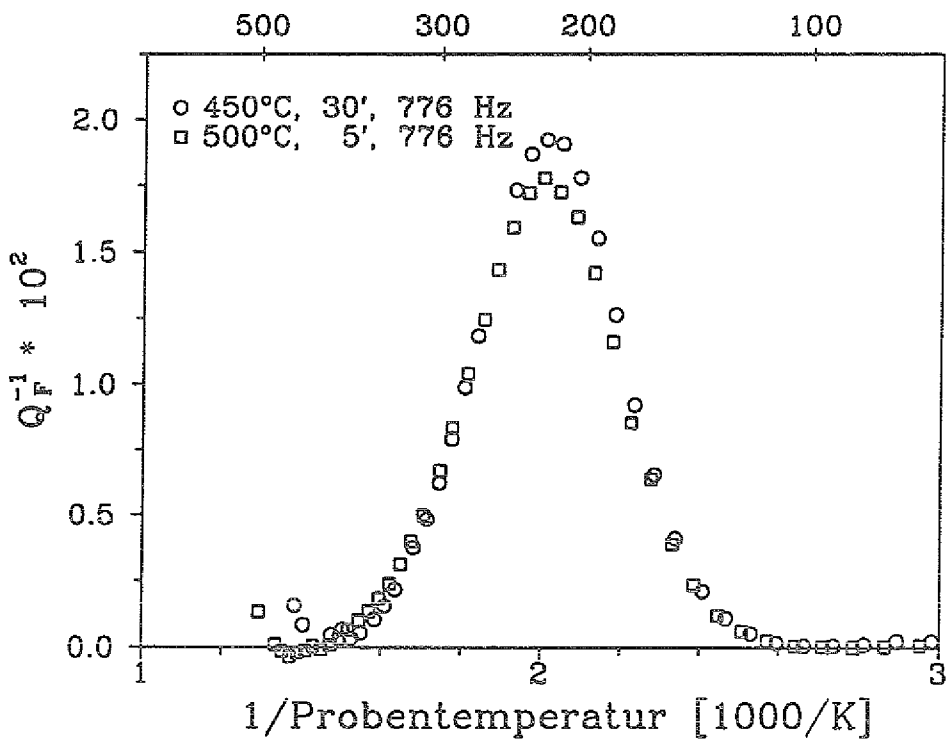


Abb.4.41: Q^{-1}_F einer vollbedeckten $AlSi_{0.01}Cu_{0.005}$-Probe nach Tempern der Probe für 30' bei 450°C und Nachtempern für 5' bei 500°C. Das Maximum bleibt nahezu unverändert.

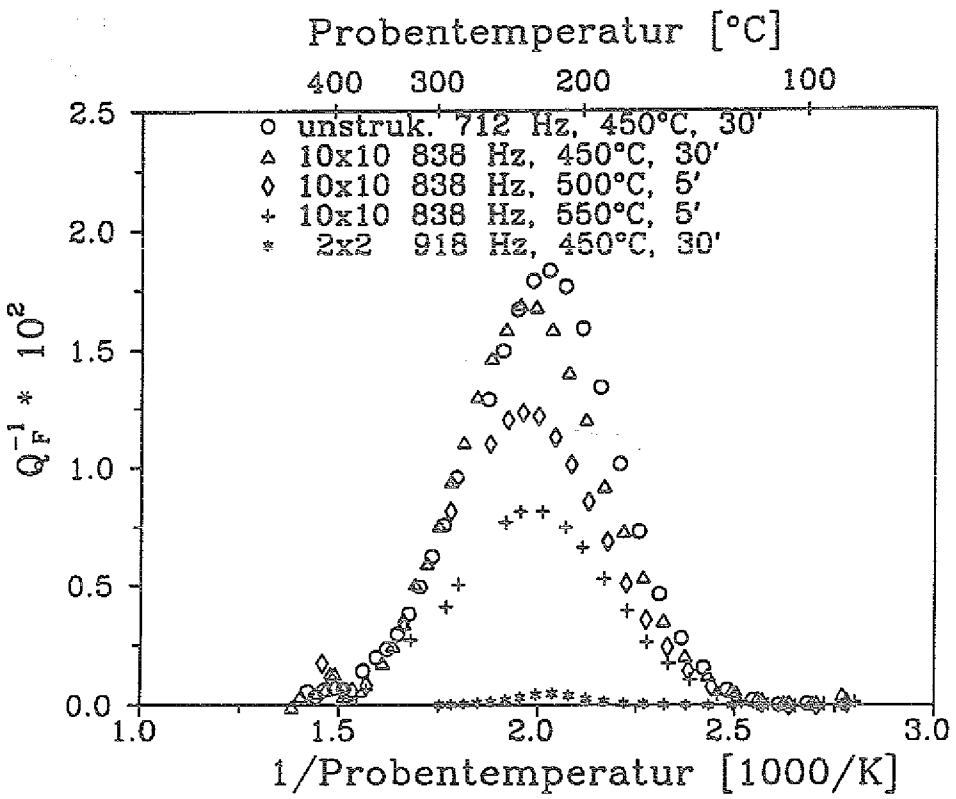


Abb.4.42: Aus Abb.4.35 resultierendes Q^{-1}_F der Torsionsschwingung der strukturierten Proben.

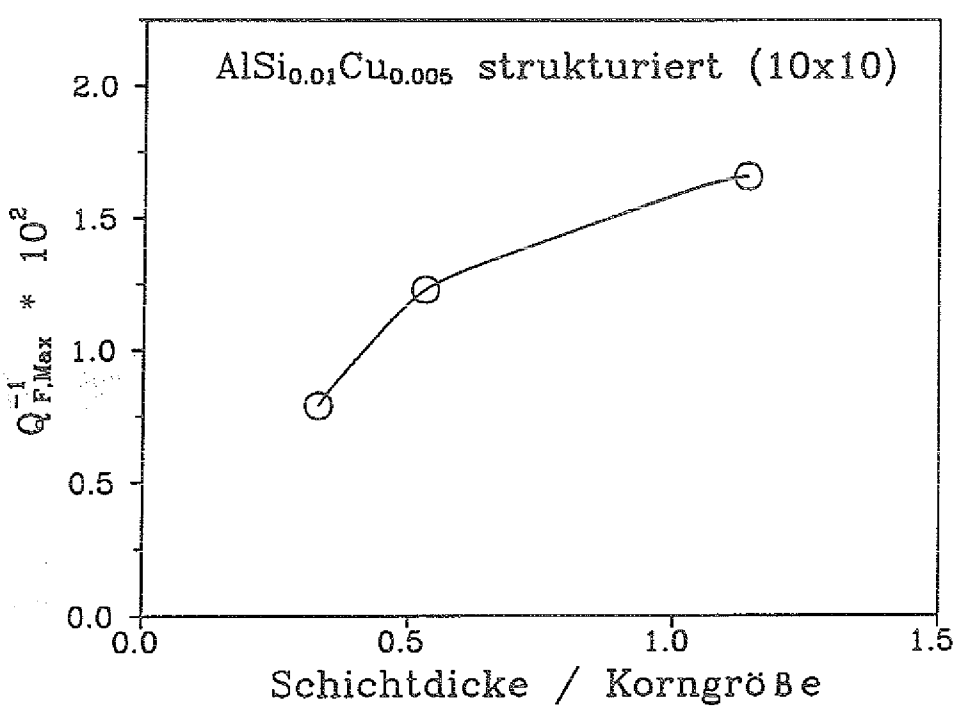


Abb.4.43: $Q^{-1}_{F,max}$ der 10X10-Strukturen gegen das Verhältnis von Schichtdicke t_F zur Korngröße L.

V. Diskussion

V.1 Zusammenfassung der Meßergebnisse

In diesem Abschnitt sollen die wichtigsten Meßergebnisse noch einmal zusammengefaßt werden. Ferner werden die Meßergebnisse anderer Autoren vorgestellt und mit den eigenen Ergebnissen verglichen.

1.) Die Höhe des Dämpfungsmaximums $Q^{-1}_{F,max}$ ist von der Größenordnung Prozent für beide Schwingungsmoden. Sie ist bei der Verwendung der Si/SiO_2–Substrate bei festgehaltenem Verhältnis von Korngröße zu Schichtdicke unabhängig von der Korngröße. Bei der Verwendung der $Si/MoSi_{2.2}$–Substrate steigt $Q^{-1}_{F,max}$ mit steigender Korngröße leicht an. Die Breite der Maxima ist um einen Faktor drei breiter als das Standard–Debye–Maximum. Die Relaxationsstärke Δ bestimmt sich bei den hier vorliegenden Verbreiterungen der Maxima nach /12/ zu $5{,}4 \cdot Q^{-1}_{F,max}$. Damit ist in der Torsionsschwingung $\Delta \approx 0{,}15$, in der Biegeschwingung $\Delta \approx 0{,}08$.

2.) Das Verhältnis R der Maxima in Torsion und Biegung $R = Q^{-1}_{F,max,T}/Q^{-1}_{F,max,B}$ beträgt für große Schichtdicken $R \approx 1{,}7$. Mit fallender Schichtdicke steigt R an. Das Ansteigen von R ist bei den Schichten auf $Si/MoSi_{2.2}$ ausgeprägter als bei den Schichten auf Si/SiO_2.

3.) Die Temperaturlage des Maximums schiebt mit zunehmender Korngröße zu höherer Temperatur. Dabei ist die zugehörige Relaxationszeit $\tau = \tau_0 \cdot e^{H/kT}$ proportional zur Korngröße L. Aus den Messungen anderer Autoren /3–5, 29/ bestimmt sich die Aktivierungsenergie $H = 0{,}6 \pm 0{,}05$ eV für den dem Dämpfungsmaximum zugrunde liegenden Prozeß als Aktivierungsenergie der Korngrenzendiffusion. Der präexponentielle Faktor τ_0 der Relaxationszeit bestimmt sich dabei zu $\tau_0 = 10^{-12{,}7 \pm 1{,}5}$ s für eine Korngröße von 1 μm.

4.) Bei konstanter Korngröße ist bei vollbedeckten Proben $Q^{-1}_{F,max}$ zunächst nahezu unabhängig von der Schichtdicke. Wird die Korngröße viel größer als die Filmdicke, wird das Maximum erniedrigt. Ist der Film an den Korngrenzen fast komplett weggeätzt, verschwindet das Dämpfungsmaximum. Auch bei den in 10 μm breite Streifen strukturierten Proben ist $Q^{-1}_{F,max}$ konstant, solange die Filmdicke ungefähr gleich der Korngröße ist. Wird die Korngröße deutlich größer als die Filmdicke, wird das Dämpfungsmaximum erniedrigt.

5.) Su et al. /32/ ließen kontrolliert Cu in $AlSi_{0.01}$–Filme eindiffundieren. Wenn die meisten Korngrenzen mit der Al_2Cu–Θ–Phase dekoriert sind, verschwindet das Dämpfungsmaximum. Dies gibt einen weiteren Hinweise darauf, daß die Relaxation über einen Korngrenzendiffusionsprozeß abläuft.

In §V.2 sollen zunächst die bisherigen Modellvorstellungen über das Korngrenzengleiten vorgestellt werden. Es wird sich zeigen, daß diese Modelle das Maximum im Massivmaterial erklären können. In §V.3 wird dann gezeigt, daß diese Modelle auch die in dieser Arbeit gefundenen Maxima in Schichten auf Substraten erklären.

V.2 Erklärung der Dämpfungsmaxima durch Korngrenzengleiten

V.2.1 Das Kê–Maximum

V.2.1.1 Experimentelle Ergebnisse

In Abb.5.1 sind zunächst die Meßergebnisse von Kê /2/ dargestellt. In den Kurven I–III (Korngröße kleiner als der Drahtdurchmesser) erkennt man das Kê–Maximum (Typ 1).

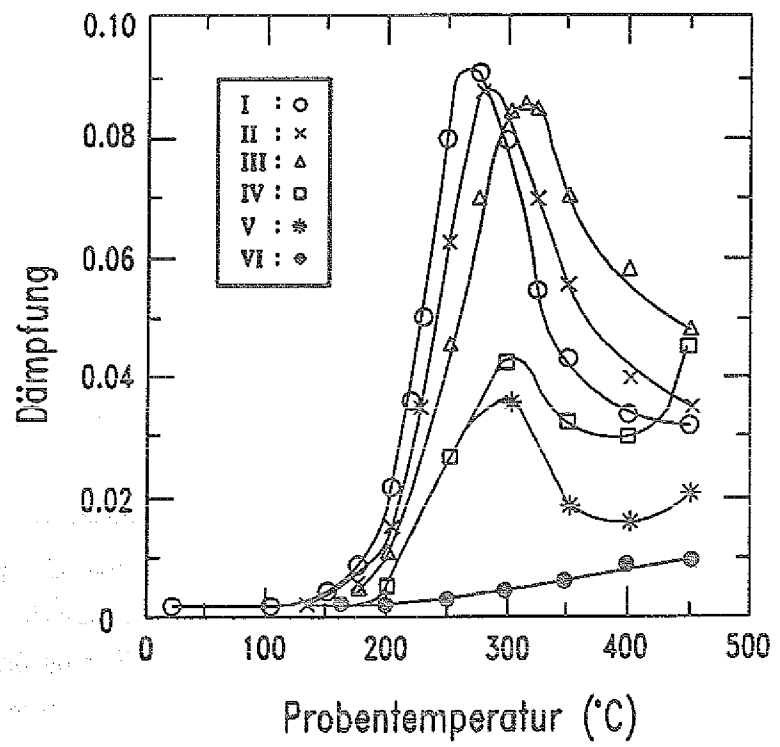


Abb.5.1: Meßergebnisse an einem Al–Draht mit dem Durchmesser 840 μm (nach Kê /2/). Bei den Kurven I–III ist die Korngröße kleiner als der Drahtdurchmesser. Die Kurven IV und V zeigen Proben mit Körnern, die größer als der Drahtdurchmesser sind. Kurve VI zeigt die Messung an einem Einkristall.

Das Maximum verschiebt sich mit steigender Korngröße zu höherer Temperatur, die Höhe des Maximums bleibt nahezu konstant. Die Auswertung der Maxima liefert eine

Aktivierungsenergie von H ≈ 1,4 eV, also eine Energie, die für Temperaturen von ca. 300°C im Bereich der Aktivierungsenergie der Volumendiffusion (H_K = 1,28 eV /33/) liegt. Das Maximum in den Kurven IV und V (Korngröße größer als der Drahtdurchmesser, Bambusstruktur) repräsentiert das sog. Bambusmaximum (Typ 2), das sich für steigende Korngröße durch eine Temperaturverschiebung zu tieferen Temperaturen und abnehmende Höhe auszeichnet. In Kurve VI (Einkristallstruktur) ist kein Maximum mehr zu erkennen.

Su /6/ fand in den Dämpfungsspektren von hochreiner (99,999%) 100 μm dicker Al−Folie (die Korngröße betrug ca. 1 mm) ein ähnliches Maximum wie das von Kê gefundene.

Vergleicht man diese Maxima im Massivmaterial mit denen in substratgebundenen Filmen, so findet man sie bei deutlich unterschiedlichen Temperaturen. Würde man die Kê−schen Daten auf die in dieser Arbeit verwendeten Probenfrequenzen von ca. 200 Hz und typische Korngrößen von 1 μm unkritisch übertragen, indem man die Relaxationszeit linear auf die hier verwendeten Korngrößen extrapoliert und dabei die Aktivierungsenergie beibehält, so sollte das Kê−Maximum bei ca. 250−300°C liegen. In diesem Temperaturbereich wurde kein Maximum gefunden. Umgekehrt scheinen die Maxima in substratgebundenen Filmen in den Messungen an Massivmaterial nicht aufzutreten. Ferner fällt beim Vergleich der beiden Fälle auf, daß die Höhe des Maximums und damit, bei (fast) gleicher Breite des Maximums, auch die Relaxationsstärke im Massivmaterial um etwa einen Faktor 4 höher als die in Schichten auf einem Substrat ist. Bei letzteren ist die Relaxationsstärke in der Biegung gegenüber der Torsion noch weiter reduziert.

Im folgenden sollen die Modellvorstellungen der Dämpfungsmaxima von Typ 1 /1,2,7/ vorgestellt werden. Zur Erklärung der Effekte bei der Bambusstruktur (Typ 2) sei auf die Literatur /34−36/ verwiesen.

V.2.1.2 Modellvorstellung zur Relaxationsstärke

Die Erklärung des Maximums vom Typ 1 wird über das viskose Gleiten von Korngrenzen gegeben. Gleiten zwei Körner 1 und 2 unter Wirkung einer Scherspannung σ_s gegeneinander (s. Abb.5.2), so wird die Verschiebung u durch die sich an den Korngrenzentripelpunkten A und B aufbauende Gegenspannung begrenzt. Die durch diesen Prozeß hervorgerufene Verschiebung $u = \epsilon_s \cdot L$ (ϵ_s ist die anelastische Scherdehnung) der gleitenden Korngrenzen ist proportional zur Korngröße L. Die dabei in einem Korn dissipierte Energie W_{dis} läßt sich schreiben als

$$W_{dis} = \gamma \cdot u \cdot \sigma_s \cdot L^2 \qquad \text{(Gl.5.1)}$$

wobei L^2 die Korngrenzenfläche beschreibt und γ ein Geometriefaktor ist.

Damit ist W_{dis} proportional zum Kornvolumen L^3. Die Relaxationsstärke $\Delta \propto W_{dis}/W_{ges}$ ist dann unabhängig von der Korngröße L, da die in einem Korn gespeicherte Gesamtenergie W_{ges} ebenfalls proportional zu L^3 ist.

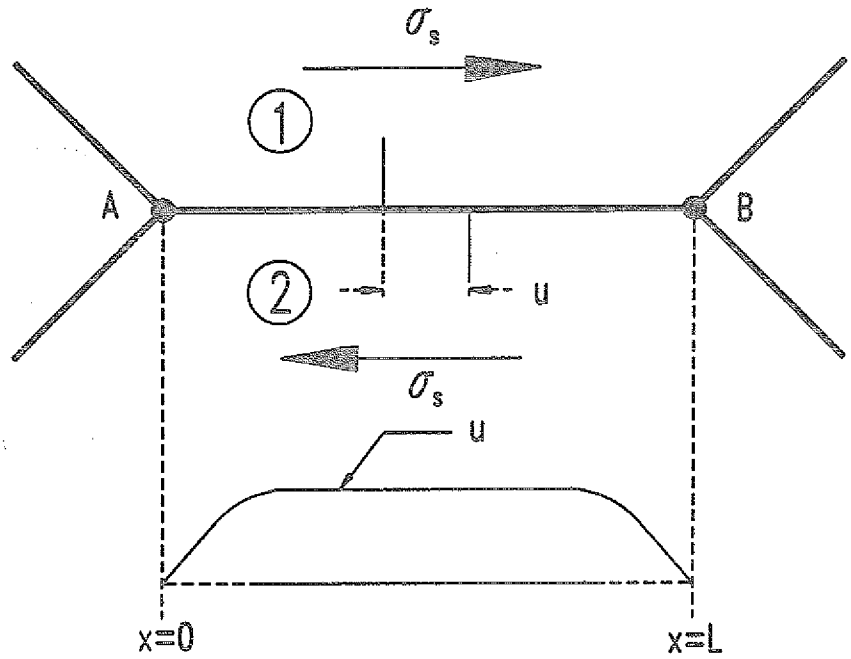


Abb.5.2: Spannungsrelaxation durch Korngrenzengleiten.

Zener /37/ und Kê /1,2/ untersuchten das Abgleiten von Körnern in elastisch isotropem Massivmaterial unter Wirkung einer (äußeren) Spannung, um die Größe von Δ abzuschätzen. Durch das Abgleiten der Körner gegeneinander werden (wie oben beschrieben) in den Korngrenzentripelpunkten elastische Gegenspannungen aufgebaut. Man spricht deshalb vom Korngrenzengleiten mit elastischer Anpassung. Ein diffusiver Spannungsabbau an den Korngrenzentripelpunkten wurde bei den Überlegungen nicht berücksichtigt. Zener /37/ und Kê /1,2/ nehmen an, daß jedes Korn als elastische Kugel aufgefaßt werden kann. Zur Berechnung der Relaxationsstärke vergleichen beide Autoren die elastische Energie eines kugelförmigen Korns unter einer uniaxialen Spannungsverteilung mit der elastischen Energie, wenn bei gleicher mittlerer Spannung keine Scherspannung in der Korngrenze auftritt. Für die Relaxation des Elastizitätsmoduls Δ_E bei uniaxialem Zug fand Zener /37/:

$$\Delta_E = (E_U/E_R) - 1 = 2(7+\nu-5\nu^2)/(7+5\nu) - 1 \qquad \text{(Gl.5.2)}$$

(ν ist dabei die Querkontraktionszahl). Für einen typischen Wert von $\nu = 1/3$ ergibt sich Δ_E zu 0,56.

Kê /1,2/ hat die für elastisch isotropes Massivmaterial geltende Beziehung $1/K = 9/E - 3/G$ /9/ (K: Kompressionsmodul) mit $\Delta_K = 0$ benutzt, um eine Formel für die Relaxation des Schermoduls Δ_G bei einem Torsionsversuch abzuschätzen. Er fand:

$$\Delta_G = (G_U/G_R) - 1 = 5(7-4\nu)/\{2(7+5\nu)\} - 1 \qquad \text{(Gl.5.3)}$$

Für $\nu = 1/3$ ergibt sich Δ_G zu 0,63. Somit ergibt sich das Verhältnis der Relaxationsstärke des Schermoduls G (Torsionsschwingung, Index T) und des Elastizitätsmoduls E (Biegeschwingung, Index B) für elastisch isotropes Massivmaterial unter dem oben beschriebenen Voraussetzungen zu:

$$R \equiv \Delta_G/\Delta_E = Q^{-1}{}_T/Q^{-1}{}_B = 3/\{2(1+\nu)\} = 3G_U/E_U \qquad \text{(Gl.5.4)}$$

Damit sollte unter diesen Bedingungen für $\nu = 1/3$ das Dämpfungsmaximum in der Torsion einen Faktor 1,13 höher als bei einer mit uniaxialem Zug verbundenen Biegung sein.

Raj und Ashby /38–40/ betrachteten bei ihren Berechnungen der Relaxation durch Korngrenzengleiten mit elastischer Anpassung ein zweidimensionales Problem mit sechseckigen Körnern. Diese Annahme erscheint realistischer als die Annahmen von Zener /37/ und Kê /1,2/, da kugelförmige Körner den Raum nicht ausfüllen. Unter dieser Annahme fanden die Autoren für die Relaxation des Schermoduls /38/:

$$\Delta_G = 0{,}57\cdot(1-\nu) \qquad \text{(Gl.5.5)}$$

und damit $\Delta_G = 0{,}38$ für $\nu = 1/3$. Auch hier ist die Relaxationsstärke Δ unabhängig von der Korngröße L. Sie ist aber deutlich kleiner als die durch Gl.5.3 gegebene.

In diesem Zusammenhang sei bemerkt, daß man bei der Definition der Relaxationsstärke bei Dämpfungsmessungen die Differenz des unrelaxierten und relaxierten Moduls besser auf den Mittelwert dieser Größen als auf den relaxierten Modul beziehen sollte. Dadurch wird die Relaxationsstärke entsprechend Gl.5.3 von 0,63 auf 0,48 und gemäß Gl.5.5 von 0,38 auf 0,32 erniedrigt. Unabhängig davon kann man sagen, daß der Absolutwert der Relaxationsstärke noch sehr unsicher ist.

An dieser Stelle sollen zunächst für eine einfache zweidimensionale Geometrie (Säulenstruktur) anschaulich die Gemeinsamkeiten und Unterschiede zwischen Torsions- und Biegeschwingung erklärt werden. Abb.5.3 stellt eine Aufsicht auf den Film dar, der der Einfachheit halber aus Körnern mit quadratischem Querschnitt bestehen soll. Sowohl bei der Torsions– (Abb.5.3a) als auch bei der Biegeschwingung (Abb.5.3b) hängt die Größe der Spannungsscherkomponente in der

Korngrenze von der Orientierung der Korngrenzen zur von außen angelegten Spannung σ ab. Im Mittel über alle Orientierungen ist die Wirkung der Scherspannungen in beiden Fällen gleich. Im Torsionsfall hat man reine Scherung, d.h. die Spannung besteht ausschließlich aus Scherkomponenten. Im Biegefall hingegen läßt sich die äußere Spannung in einen Dilatationsanteil (dünne Pfeile) und einen Scheranteil (dicke Pfeile) zerlegen. Der Dilatationsanteil verursacht keine resultierende Scherung der Korngrenze und damit auch keine Relaxation. Somit erwartet man bei einem Torsionsversuch eine höhere Relaxationsstärke als bei einem Biegeversuch.

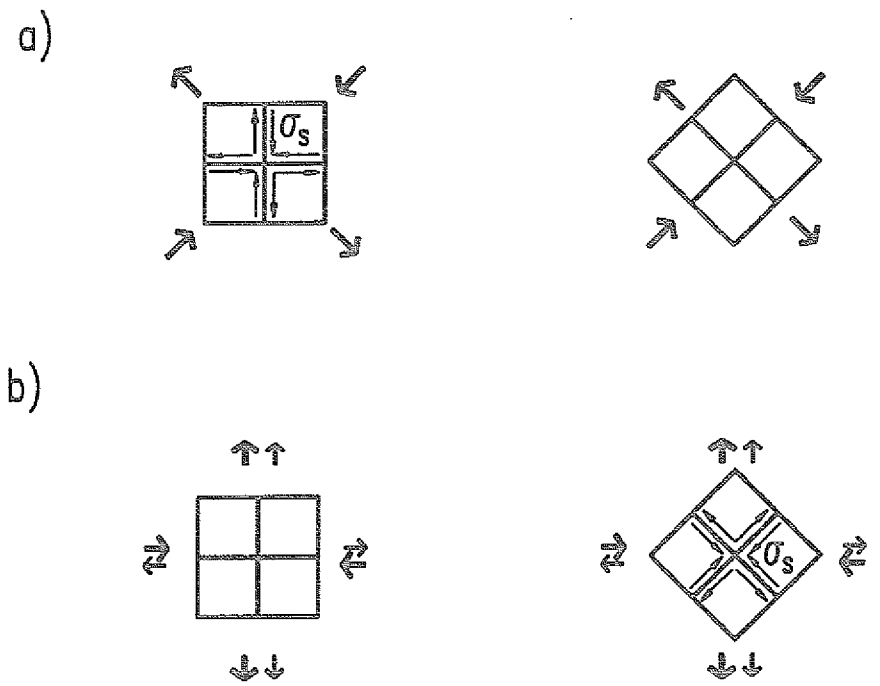


Abb.5.3: Resultierende Scherkomponenten in der Korngrenze in Abhängigkeit von der Korngrenzenorientierung in der Torsions– (a) und der Biegeschwingung (b). Die Darstellung beschreibt eine Aufsicht auf den Film. Die dicken Pfeile kennzeichnen die Scherkomponenten der äußeren Spannung, die dünneren die Dilatationsanteile und die Pfeile an den Korngrenzen die dort wirkende Scherspannung σ_s.

Im Gegensatz zum Absolutwert der Relaxationsstärke kann das Verhältnis der Relaxationsstärken für die zwei verschiedenartigen Schwingungsmoden quantitativ zuverlässig angegeben werden, selbst für eine nicht dreidimensionale Verteilung der Korngrenzenorientierungen (z.B. Säulenstruktur der Körner wie im hier vorliegenden Fall). Am günstigsten ist es, die Relaxationsstärke einer zu untersuchenden Schwingungsmode auf die Relaxationsstärke einer reinen Schermode im Raum der Korngrenzenorientierungen zu beziehen. Das entsprechende Verhältnis R^{-1} ist durch den relativen Anteil der in Scherkomponenten (nur diese können durch Gleiten

relaxieren) enthaltenen elastischen Energie an der elastischen Gesamtenergie gegeben, das man folgendermaßen schreiben kann /41/:

$$R^{-1} = 1 - [(\text{Spur } \underline{\sigma})\cdot(\text{Spur } \underline{\epsilon})] \,/\, [\underline{\sigma}\cdot\underline{\epsilon}\cdot d] \qquad \text{(Gl.5.6)}$$

Dabei gibt d die Dimension des Raumes der Korngrenzenorientierungen an. Diese ist gleich drei für eine statistische Verteilung der Orientierungen im dreidimensionalen Raum und gleich zwei im hier interessierenden Fall der Säulenstruktur. Letztere läßt sich als planares System beschreiben. Für eine uniaxiale Spannung und d = 3 erhält man das durch Gl.5.4 gegebene Ergebnis R als Spezialfall. In Tabelle 5.1 sind die Werte von R^{-1} für einige Spezialfälle aufgelistet.

Für reine Torsion ist $R^{-1} = 1$. Der Spannungszustand für die Biegung liegt, je nach Probengeometrie und Einspannung der Probe, zwischen den beiden Extremen "einachsiges Biegemoment" und "einachsige Biegeverformung". Das "einachsige Biegemoment" läßt sich durch

$$\sigma_{xx} = E\cdot\epsilon_{xx},\ \sigma_{yy} = 0,\ \sigma_{zz} = 0,\ \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = -\nu\cdot\epsilon_{xx} \qquad \text{(Gl.5.7)}$$

beschreiben, die "einachsige Biegeverformung" durch

$$\sigma_{xx} = E\cdot\epsilon_{xx}/(1-\nu^2),\ \sigma_{yy} = \nu\cdot E\cdot\epsilon_{xx}/(1-\nu^2),\ \sigma_{zz} = 0,$$
$$\epsilon_{yy} = 0,\ \epsilon_{zz} = -\nu\cdot\epsilon_{xx}/(1-\nu). \qquad \text{(Gl.5.8)}$$

Im hier interessierenden Fall (d = 2) rechnet man mit einem Wert von R zwischen 1,5 und 3 (s. Tabelle 5.1). Der exakte Zustand muß mit Hilfe einer numerischen Simulation ermittelt werden.

	d	R^{-1}	$R(\nu=1/3)$
reine Torsion	2 und 3		1
einachsiges Biegemoment	2	$1/2\cdot(1+\nu)$	1,5
	3	$2/\{3\cdot(1+\nu\}$	1,13
einachsige Biegeverformung	2	$1/2\cdot(1-\nu)$	3,0
	3	$2(1-\nu+\nu^2)/\{3(1-\nu)\}$	1,3

Tabelle 5.1: Sich aus dem relativer Anteil R^{-1} der Energie der Scherkomponenten an der Gesamtenergie ergebendes Verhältnis R der Relaxationsstärken in Torsion und Biegung in Abhängigkeit vom Verformungsmodus bei der Biegeschwingung.

V.2.1.3 Modellvorstellung der Relaxationszeiten

Die durch Korngrenzengleiten und Korngrenzendiffusion bestimmten Relaxationszeiten sind von verschiedenen Autoren abgeschätzt worden /38–40, 42, 43/. Wir betrachten hier die in Abb.5.4 skizzierte abgestufte Korngrenze. Das Gleiten der beiden aneinander grenzenden Körner läßt sich nach diesem Bild durch Gleiten und Klettern von Korngrenzenversetzungen beschreiben (Abb.5.4a). Durch die schnelle Gleitbewegung werden die Scherspannungen σ_s an den horizontalen Teilen der Korngrenze relaxiert und dafür Spannungen normal zu den Stufen aufgebaut (Abb.5.4b). Diese Normalspannungen treiben das Klettern der Versetzungen, das als langsamer Prozeß zeitbestimmend ist.

Das Klettern der Versetzungen kann als Materietransport von Stufen unter Druckspannung zu Stufen unter Zugspannung beschrieben werden. Es soll hier angenommen werden, daß die Ströme von den Stufen weg oder zu den Stufen hin durch Korngrenzendiffusion bestimmt sind, also innerhalb der Korngrenze verlaufen. Für diesen Fall ist im stationären Zustand die Verschiebungsrate der Körner gegeneinander gegeben durch

$$\dot{u} = 2\cdot\delta\cdot\Omega/h\cdot|j_{KG}|, \qquad \text{(Gl.5.9)}$$

wobei j_{KG} die Stromdichte innerhalb der Korngrenze, Ω das Atomvolumen ($\Omega_{Al} = 1{,}5\cdot10^{-29}\ m^3$) und h die Stufenhöhe ist. Die Stromdichte ist proportional zur Diffusionskonstante D_{KG}, zum Spannungsunterschied $2\sigma_n$ und umgekehrt proportional zum Stufenabstand l gemäß

$$|j_{KG}| = 2\cdot\sigma_n\cdot D_{KG}/(l\cdot kT), \qquad \text{(Gl.5.10)}$$

wobei δ die effektive Korngrenzenbreite ist. Mit der Gleichgewichtsbeziehung

$$\sigma_n = \sigma_s\cdot l/h \qquad \text{(Gl.5.11)}$$

ergibt sich die Verschiebungsrate $\dot{u}$ zu:

$$\dot{u} = 4\cdot\frac{\sigma_S\cdot\Omega\cdot\delta}{kT\cdot h^2}\cdot D_{KG} \qquad \text{(Gl.5.12)}$$

Der Gleitprozeß hört auf, wenn die gesamte Verschiebung die Größenordnung $\epsilon_s\cdot L$ erreicht hat. Mit Gl.5.12 und $\epsilon_s = \sigma_s/2G$ ergibt sich daraus die Relaxationszeit τ als:

$$\tau = \sigma_s \cdot L/(2 \cdot G \cdot \dot{u}) = kT \cdot h^2 \cdot L/(8 \cdot G \cdot \Omega \cdot D_{KG} \cdot \delta) \qquad \text{(Gl.5.13)}$$

Für Diffusion durch die angrenzenden Körner (also nicht durch die Korngrenze, sondern durch das Kornvolumen) findet man eine ähnliche Formel /38–40/, wobei allerdings D_{KG} durch $D_K \cdot l/\delta$ ersetzt werden muß (D_K: Diffusionskonstante im Volumen). Der Einfluß beider Beiträge zusammen läßt sich demnach durch eine effektive Diffusionskonstante

$$D_{eff} = D_K \cdot l/\delta + D_{KG} \qquad \text{(Gl.5.14)}$$

beschreiben.

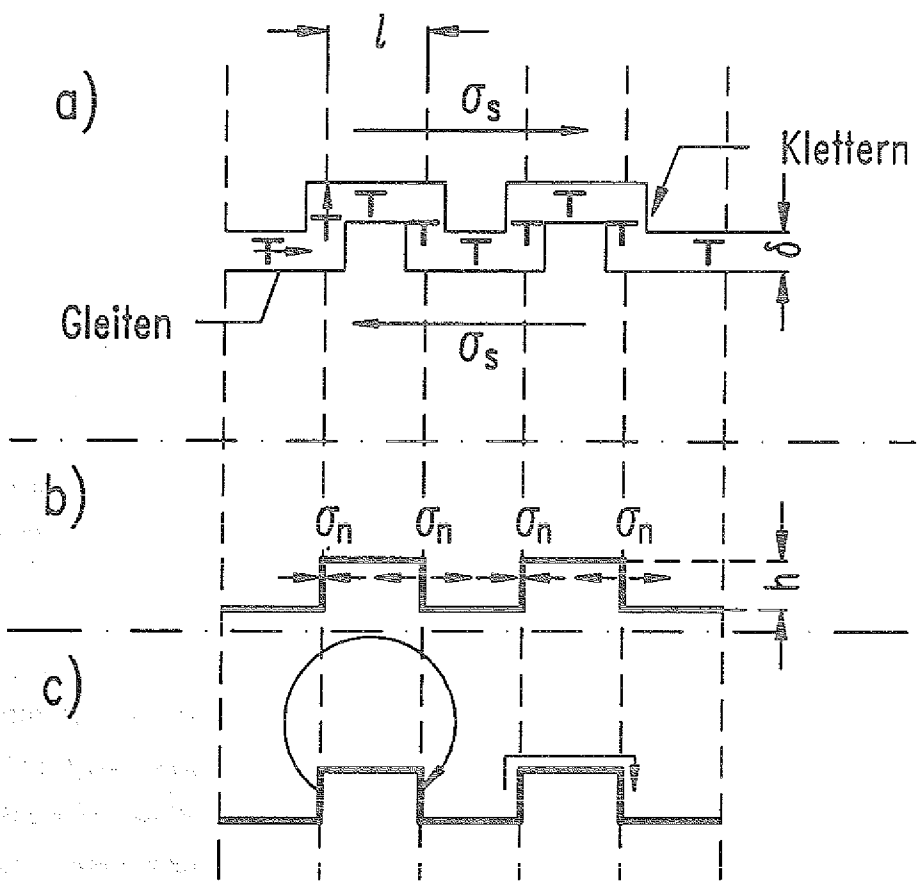


Abb.5.4: Korngrenzengleiten:
a) schematische Darstellung des Gleitens und Kletterns von Korngrenzenversetzungen in einer Korngrenze der Breite δ unter Wirkung einer Scherspannung σ_s.
b) Bildung von Normalspannungen σ_n mit wechselnden Vorzeichen an den Korngrenzenstufen.
c) Abbau der Normalspannungen durch Diffusion: links durch Volumen–, rechts durch Korngrenzendiffusion.

Nach Gl.5.13 ist die Relaxationszeit proportional zur Korngröße L. Die Temperaturabhängigkeit von τ rührt hauptsächlich von den Diffusionskonstanten her. Für eine quantitative Untersuchung entnimmt man die Temperaturabhängigkeit der Diffusionskonstanten zu /33/:

$$D_K = D_{K,0} \cdot \exp(-H_K/kT) \text{ und } D_{KG} = D_{KG,0} \cdot \exp(-H_{KG}/kT)$$

mit

$$H_{KG} = 0{,}62 \text{ eV}, \; H_K = 1{,}28 \text{ eV}$$

sowie

$$D_{K,0} = 1{,}37 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}, \; D_{KG,0} = 10^{-6} \ldots 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$$

Die Zahlenwerte für den präexponentiellen Vorfaktor der Korngrenzendiffusion sind nur schlecht zu bestimmen, weil in allen Messungen die (schwer zugängliche) Korngrenzenbreite eingeht. Je nach Literaturzitat schwankt die Größenordnung von 10^{-6} m²/s /33/ bis 10^{-5} m²/s /44/.

Kê fand in seinen Messungen ein Dämpfungsmaximum bei ca. 300°C. Die Auswertung liefert eine Aktivierungsenergie, die im Bereich der Energien für die Volumendiffusion liegt. Die kleinste Korngröße in den Messungen betrug 200 μm, die größte einige mm. Für einen vernünftigen Wert von $l \approx 100$ μm soll $D_{KG,0}$ für den Fall abgeschätzt werden, daß in Gl.5.14 die Volumendiffusion dominiert. Setzt man die entsprechenden Zahlenwerte ein, so erhält man einen Wert des präexponentiellen Faktors der Korngrenzendiffusion von $3 \cdot 10^{-6}$ m²/s. Dieser liegt im Bereich der in der Literatur angegebenen Werte, d.h. bei den von Kê untersuchten Korngrößen und Temperaturlagen der Maxima dominiert somit die Volumendiffusion.

Für kleinere Werte von l werden die Beiträge von Korngrenzen– und Volumendiffusion zunächst vergleichbar, dann dominiert die Korngrenzendiffusion. Allerdings kann die Volumendiffusion selbst für kleinere Werte von l dominieren, wenn die Aktivierungsenergie für die Korngrenzendiffusion erhöht wird. Tatsächlich scheinen schon geringe Verunreinigungen von Al durch Cu, Pt und W die Aktivierungsenergie H_{KG} von 0,62 eV auf bis zu 1 eV zu erhöhen /45/. Nimmt man den Extremfall von $H_{KG} = 1$ eV an, so ergibt sich l nach Gl.5.14 für eine Temperatur von 300°C zu $l \approx 0{,}1$ μm. Selbst für diese mikroskopischen Stufenabstände würde bei 300°C die Volumendiffusion dominieren. In diesem Zusammenhang ist zu beachten, daß in einem Polykristall der Anteil des Korngrenzenvolumens am Gesamtvolumen mit der Korngröße abnimmt. Bei gleicher Reinheit des Materials steigt so der Anteil der Verunreinigungen in den Korngrenzen mit der Korngröße an und auch die Aktivierungsenergie für die Korngrenzendiffusion.

Die präexponentiellen Faktoren von τ erhält man, indem man in Gl.5.13 in Verbindung mit Gl.5.14 bei Dominanz eines Diffusionsmechanismus die Diffusionskonstanten durch ihre präexponentiellen Faktoren ersetzt. Bei Dominanz

der Volumendiffusion erhält man mit h = 2 nm, l = L/10 und L = 500 μm ein τ_0 in der Größenordnung von 10^{-14} s in Übereinstimmung mit dem von Kê aus der Temperaturlage seiner Maxima berechneten Wert. Bei Dominanz der Korngrenzendiffusion und Korngrößen im Bereich μm erhält man mit h = $\delta \approx$ 1 nm (l geht nicht mehr ein) für τ_0 Werte von der Größenordnung 10^{-12} s in Übereinstimmung mit den in dieser Arbeit gefundenen Werten.

Dieser Abschnitt soll mit einer Bemerkung über die der Relaxation durch Gleiten nachfolgenden Relaxationsprozesse abgeschlossen werden. Die durch Gleiten an den Tripelpunkten aufgebauten Spannungsspitzen können durch Korngrenzendiffusion relaxiert werden. Dieser Prozeß ist nach einer Zeit

$$\tau^{(1)} \approx k \cdot T \cdot L^3 / (30 \cdot G \cdot \Omega \cdot D_{KG} \cdot \delta) \qquad \text{(Gl.5.13)}$$

abgeschlossen /42/. Diese Zeitskala ist also proportional zu L^3 und ist um viele Größenordnungen länger als die Relaxationszeit für Gleiten. Daher scheidet dieser Prozeß als mögliche Ursache für die beobachteten Dämpfungsmaxima aus.

V.3. Diskusion der Meßergebnisse

V.3.1 Interpretation der Maxima in Schichten durch Korngrenzengleiten

V.3.1.1 Relaxationsstärke in Filmen auf Substraten

An dieser Stelle sollen noch einige Bemerkungen zur Relaxationsstärke gemacht werden. Die hier gefundenen Relaxationsstärken sind mit $\Delta_G = 0{,}15$ gegenüber den Vorhersagen von Raj und Ashby /38/, die $\Delta_G = 0{,}38$ (bzw. 0,32) angeben, um einen guten Faktor 2 zu klein. Die Relaxationsstärke ist aber, wie die Modelle des Korngrenzengleitens vorhersagen, unabhängig von der Korngröße. Die hier beobachtete Reduktion um einen Faktor 2 gegenüber den Vorhersagen von Raj und Ashby kann mit der Haftung des Films auf dem Substrat erklärt werden.

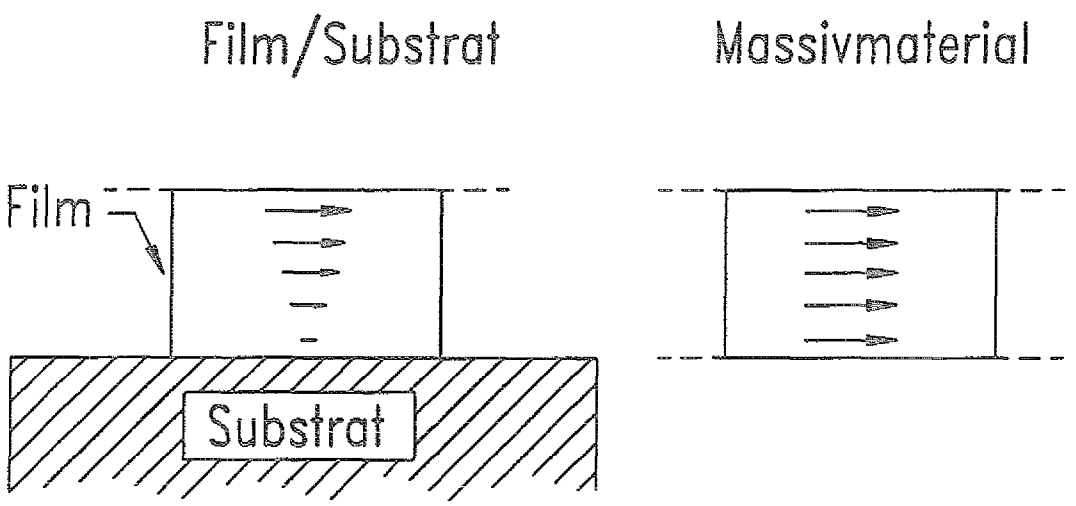


Abb.5.5: Reduktion der Relaxationsstärke im substratgebundenen Film durch Haftung (links) im Vergleich zum Massivmaterial (rechts).

In Abb.5.5 ist die Seitenansicht einer gescherten Korngrenze gezeigt. Die Pfeile kennzeichnen die Verschiebung der Körner gegeneinander. Durch die Haftung des Films auf dem Substrat treten an der Grenzfläche Film/Substrat keine Verschiebungen auf, während im Massivmaterial die gesamte Korngrenze verschoben wird. Damit kann im substratgebundenen Film nicht der gleiche Bruchteil der elastischen Energie relaxieren wie im Massivmaterial, sondern für $L = t_F$ nur ungefähr die Hälfte.

Im vorherigen Abschnitt (§V.2.1.2) wurde der R−Faktor als Verhältnis der Relaxationsstärken in Torsion und Biegung hergeleitet. Je nach Proben− und Korngrenzengeometrie ergibt sich $1{,}5 < R < 3$. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem experimentell für größere Schichtdicken gefundenen Wert von $R = 1{,}7$. Das Ansteigen von R mit fallender Schichtdicke ist noch unverstanden.

Bei der Messung der 10x10−Strukturen wurde eine Abnahme des Maximums mit steigender Korngröße (und damit auch steigendem Verhältnis von Korngröße zur Schichtdicke) gefunden. Die Messung der Schichtdickenabhängigkeit zeigt ebenfalls eine Abnahme des Maximums mit steigendem Verhältnis von Korngröße zur Schichtdicke. Zur Erklärung der Reduktion des Maximums betrachte man der Einfachheit halber eine Bambusstruktur (s. Abb.5.6). Diese Abbildung zeigt im oberen Teil eine Bambusstruktur, deren Korngröße L gleich der Probenbreite B ist. Im unteren Teil beträgt die Korngröße $L = 2 \cdot B$, der Anteil des Volumens, in dem die Relaxation stattfindet, ist daher erniedrigt. Die Relaxationsstärke muß somit mit steigendem Verhältnis von Streifenbreite zur Korngröße abnehmen. Abb.5.6 kann auch als Seitenansicht auf die Probe aufgefaßt werden. Dabei ist B durch t_F zu ersetzen. Die Argumentation verläuft analog: wird die Korngröße größer als die Filmdicke, so nimmt das Relaxationsvolumen im Vergleich zum Probenvolumen ab und damit sinkt auch die Relaxationsstärke. Der Effekt des Absinkens des Maximums mit steigender Korngröße bei den 10x10−Strukturen ist somit kein Effekt des Strukturierens, sondern ein Effekt des Verhältnisses Relaxations− zu Probenvolumen. Der gleiche Effekt erklärt die Abnahme des Dämpfungsmaximums bei der Untersuchung der Schichtdickenabhängigkeit.

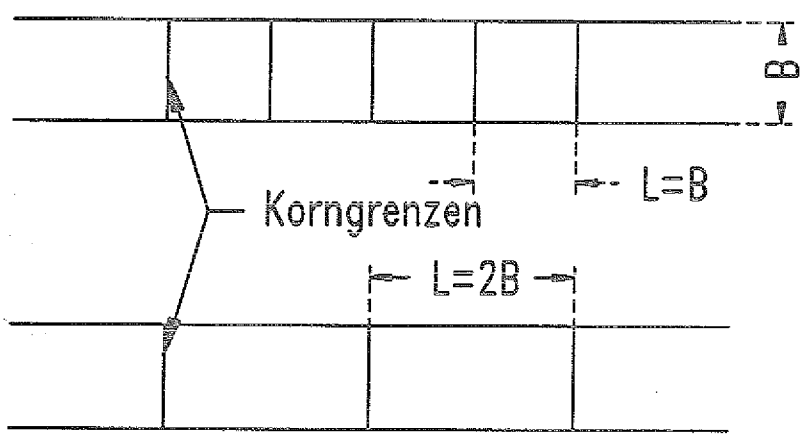


Abb.5.6: Bambusstruktur mit zwei verschiedenen Verhältnissen von Streifenbreite B zur Korngröße L

Bei den 2x2−Strukturen handelt es sich jedoch um einen Strukturierungseffekt. Diese Strukturen bestehen fast nur aus freien Oberflächen, an denen keine Spannungen aufgebaut werden können (s. Abb.5.7). Links in dieser Abbildung ist eine 2x2−Struktur, rechts eine 10x10−Struktur abgebildet. Der im Film schraffierte Teil kennzeichnet den Probenbereich, in dem Spannungen aufgebaut werden. In den 10x10−Strukturen können (fast) über den gesammten Streifenquerschnitt Spannungen

aufgebaut und somit auch relaxiert werden. Bei den 2x2−Strukturen können hingegen nur in der Nähe der Grenzfläche Film/Substrat Spannungen aufgebaut werden. Diese können aber, nach den obigen Überlegungen, wegen der Haftung des Films auf dem Substrat nicht zum Dämpfungsmaximum beitragen. Damit wird die Relaxationsstärke bei diesen Strukturen bis fast auf Null erniedrigt.

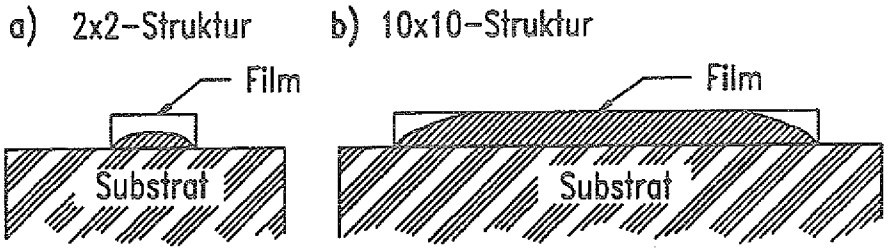


Abb.5.7: Anteil des Streifenquerschnitts bei strukturierten Proben, in denen Spannungen aufgebaut werden können.

V.3.1.2 Relaxationszeit in Filmen auf Substraten

Das wichtigste Ergebnis, daß die gemessenen Relaxationszeiten linear mit der Korngröße ansteigen, ist in Übereinstimmung mit der theoretischen Vorhersage für Relaxation durch Korngrenzengleiten. Auch die Absolutwerte der Relaxationszeiten stimmen mit den Vorhersagen gut überein. Im Temperaturbereich der hier gefundenen Maxima dominiert bei den hier untersuchten Korngrößen (0,5−30 μm) nach den Überlegungen aus §V.2.1.3 die Korngrenzendiffusion D_{KG} die Gesamtdiffusion D_{eff}. Der Ansatz $h = \delta = 1$ nm ergibt nach Einsetzen der Zahlenwerte in Gl.5.13 $\tau_0 \approx 1 \cdot 10^{-12}$ s in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen, wo $\tau_0 = 10^{-12,7 \pm 1,5}$ s gefunden wurde. Weiterhin liefert die Auswertung der Maxima die Aktivierungsenergie der Korngrenzendiffusion.

Der Gleitprozeß ist, schon bei einheitlicher Kornstruktur, genau genommen mit einem breiten Spektrum von Relaxationszeiten um die oben angegebenen Werte verbunden, da die Relaxation an den Korngrenzentripelpunkten anders abläuft wie in der Mitte der Korngrenze. Auch die Stufenhöhen, Stufenlängen und Korngrößen sind statistisch um ihre Mittelwerte verteilt. Die beobachtete Verbreiterung der Dämpfungsmaximua kann qualitativ mit der durch diese Effekte bedingten Verteilung der Relaxationszeiten erklärt werden.

V.3.1.3. Zusammenfassung der Modellvorstellungen

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß in den letzten Abschnitten die Meßergebnisse qualitativ erklärt werden konnten. Im einzelnen sind dies:

1.) Relaxation erfolgt durch Abgleiten von Korngrenzen unter Wirkung einer Scherspannung. Die Relaxationsstärke ist dabei unabhängig von der Korngröße.
2.) Die Relaxationszeit bestimmt sich aus der mikroskopischen Struktur der Korngrenze. Letztere bestimmt auch, ob der dem Gleiten einhergehende Diffusionsprozeß durch die Volumen– oder durch die Korngrenzendiffusion bestimmt wird.
3.) Punkt 2.) verbindet so die Dämpfungsmaxima im Massivmaterial mit denen in dünnen Schichten.
4.) Bei den in schmale Streifen strukturierten Proben kann das Verschwinden des Maximums durch das kleiner werdende Verhältnis von Relaxations– zu Probenvolumen erklärt werden.
5.) Der Einfluß der Haftung des Films auf dem Substrat äußert sich in der Höhe des Maximums.

VI. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die sog. "Korngrenzenmaxima" der Inneren Reibung dünner Al–Schichten auf Substraten untersucht. Ziel der Arbeit war es, die Unterschiede zwischen Al–Schichten auf Substraten und Massivaluminium aufzuklären. Dazu wurden Schichten verschiedener Schichtdicken auf Si–Substraten bei verschiedenen Aufdampftemperaturen hergestellt. Ferner wurde die Zwischenschicht zwischen Al–Film und Substrat variiert (thermisches SiO_2, $MoSi_{2.2}$, Au, Ti/TiN). Damit konnte sowohl die Korngröße der Schicht als auch die Haftung verändert werden. Außerdem wurden aufgestäubte AlSiCu–Schichten in schmale Streifen strukturiert, um so eine möglichst definierte Kornstruktur zu erreichen. Die Messungen der Inneren Reibung wurden in zwei verschiedenen Spannungsmoden (Biegung und Torsion) durchgeführt.

Die wichtigsten Meßergebnisse sind zum einen die weitgehende Konstanz der aus der Höhe der Maxima abgeleiteten Relaxationsstärke, solange die Korngröße ungefähr gleich der Schichtdicke ist. Zum anderen wird ein lineares Ansteigen der aus der Temperaturlage der Maxima gewonnenen Relaxationszeit mit der Korngröße beobachtet. Aus den Messungen anderer Autoren (z.B./29/) ergibt sich die Aktivierungsenergie für den dem Dämpfungsmaximum zugrunde liegenden Relaxationsprozeß als Aktivierungsenergie der Korngrenzendiffusion.

Die Deutung der Meßergebnisse erfolgt über ein lokales Abgleiten von Korngrenzen zwischen den Korngrenzentripelpunkten unter Wirkung einer äußeren Scherspannung. Die theoretische Relaxationsstärke ist dabei unabhängig von der Korngröße, solange diese nicht wesentlich größer als die Filmdicke wird. Die Relaxationszeit bestimmt sich aus der mikroskopischen Struktur der Korngrenze. Diese Struktur bestimmt auch, ob der für die Relaxation verantwortliche diffusive Materietransport entlang der Korngrenze oder durch das Kornvolumen erfolgt. Damit kann das unterschiedliche Verhalten des Korngrenzenmaximums im Massivmaterial gegenüber dem Maximum in dünnen Filmen erklärt werden. Der Einfluß der Haftung des Films auf dem Substrat äußert sich in der Höhe des Maximums. Bei den in schmale Streifen strukturierten Proben kann das Verschwinden des Maximums durch das kleiner werdende Verhältnis von Relaxations– zu Probenvolumen erklärt werden. Dieser Effekt erklärt auch die beobachtete schwache Abnahme des Maximums mit abnehmendem Verhältnis von Filmdicke zu Korngröße bei der Untersuchung der Dickenabhängigkeit der Dämpfung von vollbedeckten Filmen.

Die Meßergebnisse können nicht durch Relaxationsprozesse erklärt werden, die auf einer Kornverformung (mit gleichzeitigem Abgleiten der Körner gegeneinander), d.h. auf dem sog. Korngrenzenkriechen, beruhen. Diese Prozesse sind im Massivmaterial irreversibel. Bei substratgebundenen Filmen hingegen können sie durch die rücktreibende Wirkung des Substrats reversibel und somit in den Messungen

der Inneren Reibung sichtbar werden. Die sich aus diesen Prozessen ergebenden Abhängigkeiten der Relaxationszeit von der Korngröße und die Absolutwerte der Relaxationszeit stimmen nicht mit den Ergebnissen überein.

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, daß sich mit Hilfe der Inneren Reibung die Aktivierungsenergie für Diffusionsprozesse in der Korngrenze bestimmen läßt (vgl. /1–5/). Weiterhin liefert diese Methode auch Aussagen über die zugehörige Diffusionskonstante. Die Innere Reibung läßt sich somit als schnelle und einfache Meßmethode in der Materialentwicklung einsetzen, wobei solche Fragen interessant sind, in denen Diffusionsprozesse eine tragende Rolle spielen, wie z.B. Untersuchungen zur Elektromigrationsfestigkeit von Leiterbahnmaterialien in integrierten Schaltkreisen. Insbesondere für Aluminium und Aluminiumlegierungen ist die Innere Reibung die wahrscheinlich einzige Untersuchungsmöglichkeit für Korngrenzendiffusionsprozesse, da keine geeigneten Isotope für Tracerdiffusionsexperimente existieren und die Empfindlichkeit der NMR nicht ausreicht.

VII. Anhang

Fehlerbetrachtungen

Der relative Fehler $\Delta y/y$ einer Größe $y = a \cdot b$ oder $y = a/b$ ergibt sich nach den Grundlagen der Fehlerrechnung (z.B. /46/) als Wurzel der Summe der quadratischen relativen Fehler $\Delta a/a$ und $\Delta b/b$ der Einzelgrößen a und b zu:

$$\Delta y/y = \sqrt{\{ (\Delta a/a)^2 + (\Delta b/b)^2 \}} \qquad \text{(Gl.7.1)}$$

Bei der Umrechnung nach Gl.2.20 der gemessenen Dämpfung $Q^{-1}_{F,unk}$ auf Q^{-1}_F gehen Fehler in der Bestimmung der Filmdicke t_F, der Substratdicke t_S und in der Bestimmung der gemessenen Dämpfung $Q^{-1}_{F,unk}$ ein. Diese Fehler werden dann auch bei der Bestimmung von

$$R \equiv Q^{-1}_{F,max}(\text{Torsion})/Q^{-1}_{F,max}(\text{Biegung}) \qquad \text{(Gl.7.2)}$$

wirksam.

Somit berechnet sich der relative Fehler $\Delta Q^{-1}_F/Q^{-1}_F$ zu:

$$\Delta Q^{-1}_F/Q^{-1}_F = \sqrt{\{ (\Delta Q^{-1}_{F,unk}/Q^{-1}_{F,unk})^2 + (\Delta t_S/t_S)^2 + (\Delta t_F/t_F)^2 \}} \qquad \text{(Gl.7.3)}$$

Der (relative) Fehler $\Delta Q^{-1}_{F,unk}/Q^{-1}_{F,unk}$ beträgt 3%, der Fehler $\Delta t_S/t_S$ 5% und der Fehler $\Delta t_F/t_F$ 10%. Letzterer Fehler dominiert $\Delta Q^{-1}_F/Q^{-1}_F$. Er ist so groß, weil Inhomogenitäten der Schichtdicke bei der hier durchgeführten Schichtdickenbestimmung nicht erfaßt werden (vgl. §III.2.4). Somit bestimmt sich der Fehler $\Delta Q^{-1}_F/Q^{-1}_F$ zu 12%.

Der Fehler $\Delta R/R$ bestimmt sich nach Gl.7.1 zu:

$$\Delta R/R = \sqrt{\{ (\Delta Q^{-1}_{F,B}/Q^{-1}_{F,B})^2 + (\Delta Q^{-1}_{F,T}/Q^{-1}_{F,T})^2 \}} \qquad \text{(Gl.7.4)}$$

Die Einzelfehler $\Delta Q^{-1}_F/Q^{-1}_F$ wurden nach Gl.7.3 für die Biegung (B) und Torsion (T) zu jeweils 12% bestimmt. Damit ergibt sich $\Delta R/R$ zu 17%.

In §IV.5 wurde erwähnt, daß die Bestimmung der Aktivierungsenergie H in dieser Arbeit mit großen Fehlern behaftet ist. Dies soll im folgenden belegt werden. Aus Gl.2.2 folgt mit der Bedingung $\omega\tau = 1$ für die Lage des Maximums:

$$H = k \cdot \ln(\omega_T/\omega_B) \cdot (T_T \cdot T_B) / (T_T - T_B) \qquad \text{(Gl.7.5)}$$

Dabei sind T_B und T_T die (absoluten) Temperaturlagen der Dämpfungsmaxima in Biegung und Torsion. Führt man als fehlerbehaftete Größe die Differenz der absoluten Temperaturen $\delta T = T_T - T_B$ der Maxima ein (die Frequenz wird auf 10^{-6} genau gemessen), so erhält man den relativen Fehler $\Delta H/H$ zu:

$$\Delta H/H = \Delta\delta T/\delta T \qquad \text{(Gl.7.6)}$$

Bei einer typischen Temperaturverschiebung von $\delta T \approx 10$ K und einem Fehler in der Temperaturmessung von $\Delta\delta T \approx 5$ K ist H nicht zu bestimmen, da sich $\Delta H/H$ nach Gl.7.6 zu 50% bestimmt.

Die Temperaturverschiebung ist abhängig vom Frequenzhub ω_T/ω_B (hier 3,4). Nimmt man zur Bestimmung von H die Maxima der Grundschwingung und der ersten harmonischen Oberwelle, so wird das Verhältnis der beiden Frequenzen größer (Frequenzhub ≈ 6). Da die Temperatur in der Beziehung $\omega\tau = 1$ exponentiell eingeht, wird δT im Vergleich zu ω_2/ω_1 sehr viel größer (bei $\omega_2/\omega_1 \approx 6$ ist $\delta T \approx 30$ K), damit beträgt $\Delta H/H \approx 15\%$ bei einem gleichem Fehler von $\Delta\delta T \approx 5$ K in der Temperaturbestimmung der Maxima. Der resultierende Fehler in H wird also um so kleiner, je größer das Verhältnis der beiden Frequenzen ist.

VIII. Literaturverzeichnis

/1/ T.S. Kê, Phys. Rev. 71, 533 (1947)

/2/ T.S. Kê, Phys. Rev. 72, 41 (1947)

/3/ B.S. Berry, W.C. Pritchet, J. de Physique, 42, C5−1111 (1981)

/4/ F. Vollkommer, Dissertation RWTH Aachen, Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül−2321 (1989)

/5/ F. Vollkommer, H.G. Bohn, K.−H. Robrock, W. Schilling, 28th Annual Proceedings Reliability Physics, 51 (1990)

/6/ H.G. Bohn, C.M. Su, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 239, 215 (1992)

/7/ B.S. Berry, in Diffusion Phenomena in Thin Films and Microelectronic Materials, edited by D. Gupta und P.S. Ho (Noyes, Park Ridge, NJ, 1988) Kap.II

/8/ S. Timoshenko, in "Collected Papers" (Mac Graw Hill 1953), p.360-370

/9/ C.J. Smithells, Metals Reference Handbook, (Butterworths, London, 1967), Seite 709

/10/ American Institute of Physics Handbook, Third Edition, (Mac−Graw−Hill, 1972)

/11/ L.D. Landau, E.M. Lifschitz, Lehrbuch der theoretischen Physik, Bd.VII: Elastizitätstheorie, (Akademie-Verlag, Berlin, 1970), S. 73 ff.

/12/ A.S. Nowick, B.S. Berry, Anelastic Relaxation in Crystalline Solids (Academic Press, NY, 1972)

/13/ W.E. Newell, Science 161, 1320 (1968)

/14/ Ultraschall GmbH, 6148 Heppenheim, Deutschland

/15/ Asyst Software Technologies, Inc. Rochester N.Y.

/16/ Aurell GmbH, 8910 Landsberg

/17/ Von Dr. P. Kücher, Siemens AG, 8000 München, zur Verfügung gestellt.

/18/ V. Dietz, Dissertation RWTH Aachen, Berichte des Forschungszentrum Jülich, Jül−2565 (1991)

/19/ A. Heuberger (Hrsg.), Mikromechanik, (Springer−Verlag, Berlin, 1989)

/20/ Fertig strukturiert von J. Sanchez, z.Zt. Max Planck Institut für Metallforschung, 7000 Stuttgart, zur Verfügung gestellt

/21/ Fa. Sloan, Vertrieb in Deutschland durch VEECO Instruments, 8044 Unterschleißheim

/22/ H. Schumann, Metallographie, (VEB Dt. Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1967)

/23/ L.G. Schulz, J.Appl.Phys. 20, 1030 (1949)

/24/ R. Seifert&Co., 2070 Ahrensburg

/25/ M. Prieler, Diplomarbeit RWTH Aachen, April 1989

/26/ J.W. Mayer, S.S. Lau, Electronic Materials Science for integrated circuits in Si and GaAs, (Macmillan Publishing Company, N.Y., 1990), Kap.10.3

/27/ C.R.M. Grovenor in "Microelectronic Materials", (Graduate Student Series in Metals Science and Engeneering, Series edt. B. Cambor, Adam Hilger, Bristol and Philadelphia, 1989)

/28/ C.C. Smith, G.M. Leak, Il Nuovo Cimento, Vol.33B N.1, 388 (1976)

/29/ C.M. Su, private Mitteilung

/30/ wie /26/, Kap.11.5

/31/ wie /26/, Kap.11.6

/32/ C.M. Su, H.G. Bohn, K.–H. Robrock, W. Schilling, J. Appl. Phys. 70, 2086 (1991)

/33/ Landolt–Börnstein, Neue Serie III/26, Springer–Verlag 1990

/34/ T.S. Kê, J.dePhysique, Colloque C10, Supplement au no.12, Tome 46, dec.1985, p.C10-351

/35/ T.S. Kê, Grain Boundary Structure and Related Phenomena, Proceedings of JIMIS-4 (1986), Supplement to Transactions of the Japan Institute of Metals

/36/ T.S. Kê, C.M. Su, Acta metall. Vol.37, No.11, 2953 (1989)

/37/ C. Zener, Phys. Rev. 60, 906 (1941)

/38/ R. Raj, M.F. Ashby, Metallurgical Transactions 2, 1113 (1971)

/39/ M.F. Ashby, R. Raj, Scripta Met. 4, 737 (1970)

/40/ M.F. Ashby, Surface Science 31, 498 (1972)

/41/ H. Trinkaus, unveröffentlicht

/42/ H. Trinkaus und M.H. Yoo, Phil. Mag. A 57 No.4, 543 (1988)

/43/ H. Trinkaus, Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 82, 249 (1978)

/44/ I. Kaur, W. Gust, Handbook of Grain and Interface Boundary Diffusion Data, (Ziegler Press, Stuttgart, Germany 1989)

/45/ H.G. Bohn, C.M. Su, Proceedings ECIFUAS, Krakau (1991)

/46/ W. Walcher, Praktikum der Physik (B.G. Teubner, Stuttgart, 1985)

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Institut IX Gitterfehlordnung des Instituts für Festkörperforschung des Forschungszentrums Jülich angefertigt.

Ich danke Herrn Prof. Dr. W. Schilling für die Möglichkeit, in seinem Institut zu promovieren, die interessante Themenstellung, sein Interesse an dieser Arbeit und die vielen hilfreichen Diskussionen.

Herrn Dr. H.G. Bohn möchte ich für die hervorragende Betreuung der Arbeit danken. Seine stete Hilfsbereitschaft bei physikalischen Fragen sowie bei der Erstellung des Meßprogramms werden mir in Erinnerung bleiben.

Bedanken möchte ich mich ganz herzlich bei Herrn Dr. H. Trinkaus für seinen großen Einsatz bei der theoretischen Erklärung der Meßergebnisse.

Großen Dank möchte ich auch Herrn Rolf Speen aussprechen. Ohne seine ständige freundschaftliche Hilfe bei allen Hardware–Fragen wäre diese Arbeit nur in wesentlich längerer Zeit zu bewerkstelligen gewesen.

Den Herren Hans Haselier und Reinhard Pollak möchte ich an dieser Stelle für die Herstellung der Aufdampfschichten danken. Für die Bereitstellung der aufgestäubten Schichten danke ich den Herren Dr. P. Kücher und St. Galleitner von der Siemens AG.

Bei Michael Rötepohl, Detlef Beckers und F. Schröteler bedanke ich mich für die Herstellung der strukturierten Proben.

Frau E.M. Würtz danke ich für die vielen REM–Aufnahmen. Dem TEM–Team Dr. W. Jäger, Wilma Sybertz, Doris Meertens und Gabi Wassenhoven möchte ich für die sorgfältige Probenpräperation und die prompte Anfertigung der Aufnahmen danken.

Herrn Dr. D. Guggi möchte ich an dieser Stelle für die Texturaufnahmen danken.

Bei F. Köhne und F. Römer bedanke ich mich für das Sputtern der Pt– und Au–Schichten.

Den Herren Dr. Frank Saurenbach und Matthias Kostmann danke ich für die rasterkraftmikroskopischen Untersuchungen.

Bedanken möchte ich mich auch bei den Mitarbeitern der IFF–Werkstatt und der Glaswerkstatt der KFA für die sorgfältige und rasche Ausführung der angefallenden Arbeiten.

Frau Maria Garcia sei gedankt für die Erledigung des in dieser Arbeit angefallenden Papierkriegs.

Allen nicht namentlich genannten Mitarbeitern des Instituts möchte ich für das gute Arbeitsklima danken.

Last not least möchte ich meiner Ehefrau Marion danken, die mich, insbesondere im letzten halben Jahr der Arbeit, immer wieder moralisch unterstützt und aufgebaut hat.

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

KFA

Jül-2780
Juni 1993
ISSN 0944-2952