結晶粒径の異なる銅薄膜の ヒロック形成温度と初期残留応力の関係[†]

日 下 一 也^{*} 山 田 祐 馬^{**}

The Relationship between Hillock Formation Temperature and Initial Residual Stress in Copper Thin Films with Different Crystal Grain Size

by

Kazuya KUSAKA^{*} and Yuma YAMADA^{**}

We deposited copper films which have a different grain size on the silicon single crystal wafer with dc magnetron sputtering. The crystal grain size of the copper films was varied by changing the substrate temperature T_s , which is one of the sputtering deposition conditions, between 64°C and 200°C. The obtained copper films were set on an optical microscope equipped with a vacuum heating device. The films surface were observed with the microscope throughout the thermal cycling between room temperature to 800°C. Next, we examined the temperature which hillocks begin to form. As a result, we confirmed the clear relationship between the temperature which the hillocks begin to form and the initial grain size of the copper film. In the case of low substrate temperature of $T_s = 64^\circ\text{C}$, the initial grain size of copper film was very small, and many hillocks were formed at low heating temperature of 300°C. On the other hand, in the case of high substrate temperature of $T_s = 200^\circ\text{C}$, the initial grain size of copper film was large, and hillocks were not formed below heating temperature of 800°C.

Key words : Copper film, Hillock formation, In-situ observation, Residual stress, Thermal stress, Crystal grain size

1 緒 言

1997 年にアメリカの IBM 社が銅配線の実用化を発表して以降、LSI 配線材料はアルミニウム (Al) から銅 (Cu) へと急速に移り変わった。Al の抵抗率 $2.66 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ に対し Cu の抵抗率は $1.67 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ と約 60% 小さくなるので、エレクトロマイグレーション耐性が向上する。一方、Cu 配線に変わってからストレスマイグレーション損傷が大きく問題として注目されるようになった。^{1)~4)} Cu 配線はダマシン法により埋め込み形成されるため、製作工程の熱処理で大きな熱残留応力が発生する。圧縮残留応力はヒロック形成の要因となり短絡を引き起こし、引張残留応力はボイド形成の要因となり断線を引き起こす。これらはストレスマイグレーション損傷と呼ばれて LSI の寿命に影響する。形成される応力と直接損傷の原因となるヒロックやボイド形成の関係を明らかにすることは、信頼性の高い配線を設計するための重要な指針となる。

本研究では結晶粒径に着目し、結晶粒径がヒロックおよびボイド形成に対してどのような影響を与えるのかを調べることを目的とする。また、本研究はストレスマイグレーション損傷の基礎的研究と位置づけし、正確な応力評価が実施できる Cu 薄膜を試料として用い、結晶粒径とヒロック形成温度および初期残留応力の関係を明らかにする。

2 実 験 方 法

2・1 試料

DC マグネトロンスパッタリング装置を用いて面方位 $\langle 111 \rangle$ の単結晶 p 型シリコン基板上に Cu 薄膜を作製した。Table 1 に製膜条件を示す。ターゲットは直径 100mm、厚さ 5mm、純度 99.96% の Cu 円板を用い、雰囲気ガスは純度 99.99% のアルゴンガスを用いた。本研究では、Cu 結晶粒の大きさを変化させるために基板温度を変化させた。基板温度は基板表面に設置させた熱電対により測定し、温度コントローラにより一定温度になるように制御した。基板温度 $T_s = 64^\circ\text{C}$ の試料は、初期設定基板温度を 50°C としたものの、製膜開始後 10 分間でスパッタリングエネルギーによる温度上昇が発生した。したがって、製膜開始後 10 分後の安定した温度 (64°C) を基板温度と

Table 1 Sputtering conditions of Cu film preparation.

Base pressure, Pa	$< 2.0 \times 10^{-3}$
Atmosphere gas pressure, Pa	1.2
Substrate temperature T_s , °C	64, 100, 150, 200
Discharge current, mA	80
Deposition time, min	120
Film thickness, μm	1.8~2.1

[†] 原稿受理 平成 24 年 11 月 14 日 Received Nov. 14, 2012 ©2013 The Society of Materials Science, Japan

^{*} 正 会 員 徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部 〒770-8506 徳島市南常三島町, Inst. of Tech. and Sci., The Univ. of Tokushima, Minamijousanjima-cho, Tokushima, 770-8506

^{**} 徳島大学工学部機械工学科 〒770-8506 徳島市南常三島町, Faculty of Eng., The Univ. of Tokushima, Minamijousanjima-cho. Tokushima, 770-8506

した。堆積時間は120minとした。これにより1.8から2.1 μm の膜厚のCu膜が形成された。

2・2 高温その場観察

Nikon社製ECLIPSE ME600P光学顕微鏡とジャパンハイテック社製10042型顕微鏡用加熱装置を用いてCu膜表面の高温その場観察を行った。真空ポンプにより加熱装置内を6.67Pa以下にし、室温から800 $^{\circ}\text{C}$ までを昇温率20 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で加熱した。その後800 $^{\circ}\text{C}$ で10分間保持し、再び室温まで冷却した。冷却時の降温率は20 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ とした。顕微鏡像はHDDレコーダーにより映像として記録した。記録した映像を解析することでヒロックおよびボイドの形成開始温度、大きさ、観察領域内の数を調べた。また、試料は3mm四方に切り分け1つの試料につき3回ずつ高温その場観察を実施した。

2・3 AFMによる表面観察

製膜後および高温その場観察後の試料について、セイコー電子工業社製の走査型プローブ顕微鏡による表面観察を行い、Cu薄膜の結晶粒径を測定した。3N/mのSi単結晶のカンチレバーを使用し、非接触モードで測定を行った。

2・4 X線回折による評価

リガク社製X線回折装置Rint2100を用いてスパッタリングで面方位<111>の単結晶p型シリコン基板上に堆積させたCu薄膜の結晶配向特性および残留応力測定を行った。特性X線はCuK α を用いた。製膜後室温におけるCu薄膜の残留応力は $2\theta = 136.5^{\circ}$ に現れる331回折線を用いて式(1)⁵⁾により求めた。

$$\sigma_f = -\frac{1}{2} \cdot \frac{E_f}{1+\nu_f} \cdot \cot\theta_0 \cdot \frac{\pi}{180} \cdot \frac{\partial 2\theta_\psi}{\partial \sin^2\psi} \quad (1)$$

ここで $E_f/(1+\nu_f)$ はCu膜のX線の弾性定数であり、Krönerモデル⁶⁾で計算した値109.7GPaを使用した。計算に使用したCu単結晶の弾性スティフネス定数は $C_{11} = 170.0\text{GPa}$ 、 $C_{12} = 122.5\text{GPa}$ および $C_{44} = 75.8\text{GPa}$ である。⁷⁾Table 2に残留応力測定条件を示す。 $2\theta_\psi$ - $\sin^2\psi$ 線図を描くために $\sin^2\psi$ は0から0.7までの0.1刻み8点で測定を実施した。

Table 2 Conditions of X-ray stress measurement.

Characteristic X-rays	CuK α
Diffraction method	Ω diffraction
Optical system	Bragg-Brentano
Tube voltage	40 kV
Tube current	20 mA
Divergence slit	1 deg
Scattered slit	1 deg
K β filter	Nickel film
Peak $2\theta_0$	136.5 deg
Range of $\sin^2\psi$	0~0.7

3 実験結果

3・1 X線回折図形

Fig. 1に面方位<111>の単結晶p型シリコン基板上に堆積させたCu薄膜のX線回折図形を示す。シリコン単結晶基板からの強い回折線を消滅させるために θ - 2θ 軸(Ω 軸)に対して基板面を1deg傾斜させて取り付けた。すべての試料においてCuすべての回折線が得られる。また、 $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ の試料のみ低角に非晶質のハローパターンが確認され、低角のバックグラウンドが上昇している。

次に各試料において111回折線と200回折線の強度比を調べた結果をTable 3に示す。完全なランダム配向の場合、111回折線と200回折線の強度比は0.46となる。したがって、すべての試料において111回折線と200回折線の強度比は0.46よりも小さくなることから、完全ランダム体ではなく、弱い{111}配向を有していることがわかる。さらに、基板温度 T_s が小さいほど{111}配向度が大きくなっている。

3・2 初期残留応力

Fig. 2に高温その場観察前の各試料の $\sin^2\psi$ 線図を示す。回折強度が非常に小さく正確なピーク位置が評価できない測定点は削除した。すべての試料においてばらつきがあるもののプロットはほぼ直線上に並ぶ。 $\sin^2\psi$ 線図の直線の勾配より算出されるCu膜の製膜後室温での残留応力と基板温度との関係をFig. 3に示す。すべての試料において引張残留応力が発生していた。低基板温度 $T_s = 64^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜には110MPaの引張残留応力が発生し、基板温度の増加とともに引張残留応力は増加する。基板温度 $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ で引張残留応力は最大となり、高基板温度 $T_s = 200^{\circ}\text{C}$ で引張残留応力は減少する。

Fig. 3に示した直線は製膜終了後から室温(約20 $^{\circ}\text{C}$)まで冷却するときに発生する熱残留応力を示す。熱残留応力 σ_{th} は式(2)で計算できる。

Fig. 1 Diffraction patterns of Cu film deposited on Si wafer.

Table 3 Intensity ratio between 111 diffraction and 200 diffraction.

$T_s, ^{\circ}\text{C}$	I_{200} / I_{111}
64	0.14
100	0.20
150	0.32
200	0.34

Fig. 2 $\sin^2\psi$ diagrams of Cu film deposited on Si wafer.

Fig. 3 Effect of substrate temperature on residual stress in Cu film deposited on Si wafer.

$$\sigma_{th} = \frac{E_f}{1 - \nu_f} (\alpha_{f(T_s)} - \alpha_{s(T_s)}) (T_s - RT) \quad (2)$$

ここで、 E_f および ν_f は室温での Cu 膜のヤング率およびポアソン比、 $\alpha_{f(T_s)}$ および $\alpha_{s(T_s)}$ は製膜中の基板温度 T_s と室温 RT 間の Cu 膜および Si ウエハの平均熱膨張係数である。 $\alpha_{f(T_s)}$ および $\alpha_{s(T_s)}$ は Fig. 4 に示す各温度における熱膨張係数⁸⁾により算出する。熱膨張係数は温度により線形に推移していることから直線近似を行った結果、各温度に対する熱膨張係数は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \alpha_{Cu} &= 9.06 \times 10^{-3} T + 16.0 \text{ [} 10^{-6}/^{\circ}\text{C]} \\ \alpha_{Si} &= 2.19 \times 10^{-3} T + 2.77 \text{ [} 10^{-6}/^{\circ}\text{C]} \end{aligned} \quad (3)$$

製膜中の基板温度 T_s と室温 RT 間の Cu 膜および Si ウエハの平均熱膨張係数 $\alpha_{f(T_s)}$ および $\alpha_{s(T_s)}$ は、それぞれ式 (3) を室温 RT から製膜中の基板温度 T_s の範囲で積分したものを $(T_s - RT)$ で除算したものとなる。熱残留応力の算出

に使用した数値を Table 4 にまとめた。Cu の熱膨張係数は Si よりも大きいため熱残留応力 σ_{th} は正の値、すなわち、引張応力となる。

残留応力は膜自身が有する真応力（固有応力）と熱応力の和となる。したがって、本研究で作製した Cu 膜の真応力は圧縮応力となり、基板温度が大きいほど大きくなることが分かった。

3・3 結晶粒径

Fig. 5 は高温その場観察前後の AFM 表面像を示す。上段が高温その場観察（熱処理）前、下段が熱処理後である。熱処理前の低基板温度 $T_s = 64^{\circ}\text{C}$ で作製した Cu 膜には直径約 $0.01\mu\text{m}$ の非常に小さな結晶粒が確認できた。さらに、それらがいくつか集まって直径約 $0.2\mu\text{m}$ の島状組織を形成していた。また、表面の凹凸は約 $0.08\mu\text{m}$ と平坦であった。次に $T_s = 100^{\circ}\text{C}$ で生成した Cu 膜の結晶の直径は約 $0.2\mu\text{m}$ と大きくなり、これらがいくつか集まって直径約 $0.8\mu\text{m}$ の島状組織を形成していた。また、表面の凹凸は約 $0.1\mu\text{m}$ と大きくなった。さらに、 $T_s = 200^{\circ}\text{C}$ で生成した Cu 膜の結晶の直径は約 $0.2\mu\text{m}$ の小さなものと約 $0.7\mu\text{m}$ の大きなものが混ざっていた。

Fig. 6 は高温その場観察前後の各試料の結晶粒径を示す。黒印が熱処理前、白印が熱処理後の結晶粒径を示す。

Table 4 The values used to calculate thermal stress formed in Cu film.

Young's modulus of Cu film	E_f	128 GPa
Poisson's ratio of Cu film	ν_f	0.342
Average coefficient of thermal expansion of Cu film between room temperature RT and substrate temperature during film deposition, T_s	$\alpha_{f(T_s=64^{\circ}\text{C})}$	$16.4 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{f(T_s=100^{\circ}\text{C})}$	$16.6 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{f(T_s=150^{\circ}\text{C})}$	$16.8 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{f(T_s=200^{\circ}\text{C})}$	$17.0 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
Average coefficient of thermal expansion of Si wafer substrate between room temperature RT and substrate temperature during film deposition, T_s	$\alpha_{s(T_s=64^{\circ}\text{C})}$	$2.81 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{s(T_s=100^{\circ}\text{C})}$	$2.81 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{s(T_s=150^{\circ}\text{C})}$	$2.81 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
	$\alpha_{s(T_s=200^{\circ}\text{C})}$	$2.81 \times 10^{-6} /^{\circ}\text{C}$
Room temperature	RT	20°C

Fig. 4 Thermal expansion coefficient of Cu and Si at each temperature.⁸⁾

Fig. 5 AFM images of Cu film surface before and after heat treatment.

Fig. 6 Change of crystal grain size before and after heat treatment.

すべての試料において熱処理により結晶粒径が増加していることがわかる。また、熱処理前の試料においては、高基板温度で堆積させたCu膜の結晶粒径が大きくなることが確認された。

3・4 高温その場観察

Fig. 7に $T_s = 64^\circ\text{C}$ で堆積させたCu膜表面の高温その場観察結果(1回目)を示す。加熱を開始して 280°C 付近からヒロックが形成し始めた。その後、温度上昇とともにヒロックは 400°C 付近まで成長を続け、それ以降 800°C まで変化はなかった。ヒロックの直径は約 $0.03 \sim 0.07\text{mm}$ であった。顕微鏡観察領域 $720 \times 560\mu\text{m}^2$ 内で確認されたヒロックの数は大小合わせ9個であった。また、冷却時は 320°C 付近でひび割れが生じ、温度下降とともにひび割れが拡大した。

Fig. 8に $T_s = 100^\circ\text{C}$ で堆積させたCu膜表面の高温その場観察結果(3回目)を示す。加熱を開始して 560°C 付近からヒロックが形成し始めた。その後 750°C 付近まで成長を続けた。この時のヒロックの直径は約 0.07mm の円形であった。冷却時は 50°C 付近まで変化は現れなかったが、 50°C 付近でひび割れが生じた。

Fig. 7 Microscopic images of the surface of Cu film deposited at $T_s = 64^\circ\text{C}$ during heat treatment.

Fig. 9に $T_s = 150^\circ\text{C}$ で堆積させたCu膜表面の高温その場観察結果(2回目)を示す。1回目の高温その場観察においてヒロックおよびポイドが全く観察されなかったので、2回目以降は倍率を2倍に拡大して観察を行った。

加熱を開始して 680°C 付近からヒロックが形成し始めた。その後ヒロックは 800°C まで成長を続けた。ヒロック

(a) $T=RT$ (b) $T=300^{\circ}\text{C}$ (Heating) (c) $T=800^{\circ}\text{C}$ (Holding) (d) $T=600^{\circ}\text{C}$ (Cooling) (e) $T=RT$ (Cooling)100 μm Fig. 8 Microscopic images of the surface of Cu film deposited at $T_s = 100^{\circ}\text{C}$ during heat treatment.

は円形のものや細長い形のヒロックが形成された。円形ヒロックの大きさは直径約0.04mm、細長い形のヒロックは幅0.03mm、長さ0.12mmであった。冷却時にはヒロックの数や大きさの変化はなかった。

$T_s = 200^{\circ}\text{C}$ で堆積させたCu膜表面の高温その場観察において3回ともCu膜表面に変化が現れなかった。

高温その場観察結果の詳細をTable 5にまとめた。低

(a) $T=RT$ (b) $T=300^{\circ}\text{C}$ (Heating) (c) $T=700^{\circ}\text{C}$ (Heating) (d) $T=800^{\circ}\text{C}$ (Holding) (e) $T=400^{\circ}\text{C}$ (Cooling) (f) $T=RT$ (Cooling)Fig. 9 Microscopic images of the surface of Cu film deposited at $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ during heat treatment.

基板温度 $T_s = 64^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は加熱過程の 300°C 近傍で多くのヒロックが発生した。 $T_s = 100^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は加熱過程の 600°C 近傍で、 $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は加熱過程の 700°C 近傍でヒロックが発生した。高基板温度 $T_s = 200^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は加熱過程 800°C までにヒロックは発生しなかった。

4 考 察

本研究で作製した単結晶シリコン基板上的Cu膜には引張残留応力が発生していた。Cu膜の熱膨張係数はシリコン基板の熱膨張係数よりも6.3倍大きいことから、成膜後の冷却時にCu膜に引張熱応力が発生するためである。また、基板温度が高い試料ほど計算で得られる熱応力よりも小さな残留応力となったのは、Cu膜が有する真応力（固有応力）が原因と考えられる。低基板温度 $T_s = 64^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は光沢のある茶色、 $T_s = 100^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は赤茶色、 $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は茶色、 $T_s = 200^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜は黒ずんだ茶色となっていた。基板温度の増加とともに酸化が進行したと思われる。また、 $T_s = 150^{\circ}\text{C}$ で作製したCu膜から得られる回折線の低角にハローが現れたのは、Cu膜表面に非晶質の酸化膜が形成されたためと思われる。 $T_s = 200^{\circ}\text{C}$ でハローが現れなかったのは、酸化膜が結晶化したためと考えられる。したがって、この酸化膜の存在がCu膜の圧縮真応力の要因になったと考えられる。

Table 5 Results of in-situ observation.

$T_s, ^\circ\text{C}$	Times	Hillock formation temperature, $^\circ\text{C}$	Shape of hillock	Size of hillock, mm	Number of hillock	Notes
64	1	280	Circle	0.03~0.07	9	Crack formation
	2	350	Circle	0.25	12	Peel from substrate
	3	300	Circle	0.03~0.12	Large 6 Small many	
100	1	560	Circle	0.05~0.08	2	
	2	700	Circle	0.01~0.08	1	
	3	560	Circle	0.07	1	Crack formation
150	1	—	—	—	—	
	2	680	Circle	0.04	1	
	3	680	Circle	0.03~0.12	1	
200	1	—	—	—	—	
	2	680	Circle	0.07	1	
	3	680	Circle	0.04~0.15	1	Crack formation
200	1~3	—	—	—	—	

Cu 薄膜の結晶粒径は加熱処理を行うことによって再結晶化し、結晶粒径が増加したと考えられる。加熱処理をする前は低基板温度で形成した Cu 薄膜が最も結晶粒径が小さく、製膜温度が高くなるにつれ結晶粒径が大きくなっていることが分かる。成膜温度が低いほどヒロックが形成・成長したことから、加熱処理を行う前の結晶粒径が小さいほどヒロックが形成され易いことが分かる。

粒界拡散と粒内拡散では、粒界拡散の方が活性化エネルギーは小さいことが分かっている。つまり粒界拡散の方が拡散は起こり易いため、ヒロックは粒界三重点を起点として形成されていると考えられている。そのため、結晶粒径が小さければ粒界三重点の数が多くなるのでヒロックが形成され易かったと考えられる。

最後にヒロックが形成される圧縮熱応力について検討する。ヒロックが形成される圧縮熱応力 σ_{Hillock} は式 (4) で計算される。

$$\sigma_{\text{Hillock}} = \sigma_{\text{RS}} + \frac{E_f^*}{1 - \nu_f^*} (\alpha_{f(T_{\text{Hillock}})} - \alpha_{s(T_{\text{Hillock}})}) (RT - T_{\text{Hillock}}) \quad (4)$$

ここで、 σ_{RS} は初期残留応力、 E_f^* および ν_f^* はヒロック形成温度における Cu 膜のヤング率およびポアソン比、 $\alpha_{f(T_{\text{Hillock}})}$ および $\alpha_{s(T_{\text{Hillock}})}$ はヒロック形成温度 T_{Hillock} と室温 RT 間の Cu 膜および Si ウエハの平均熱膨張係数である。Fig. 10 に Cu のヤング率 E_{Cu} とポアソン比 ν_{Cu} の温度依存性を示す。⁷⁾ここに示したヤング率 E_{Cu} は Voigt モデル⁹⁾と Reuss モデル¹⁰⁾で計算される2つのヤング率の平均値である。また、同様の方法で剛性率 G_{Cu} を求め、式 (5)によりポアソン比を算出した。

$$\nu_{\text{Cu}} = \frac{E_{\text{Cu}}}{2G_{\text{Cu}}} - 1 \quad (5)$$

Fig. 10 の結果より Cu のヤング率およびポアソン比は温度 T に対して線形関係になる。したがって、Cu 膜のヤング率 E_f^* およびポアソン比 ν_f^* はヒロック形成温度 T_{Hillock} に対して式 (6) で表される。

$$\begin{aligned} E_f^* &= -4.72 \times 10^{-2} T_{\text{Hillock}} + 129 \text{ [GPa]} \\ \nu_f^* &= 3.06 \times 10^{-5} T_{\text{Hillock}} + 0.341 \end{aligned} \quad (6)$$

Table 5 に示すヒロック形成温度から式 (4) を用いて算出したヒロック形成熱応力を Fig. 11 に示す。横軸は加熱前の初期結晶粒の大きさと整理した。高基板温度 $T_s = 200^\circ\text{C}$ で作製した Cu 膜は 800°C に加熱してもヒロックが形成されなかったことから、 800°C における Cu 膜に発生する圧縮熱応力を (-) 記号で表現し、ヒロック形成応力はそれ以下のため矢印で表現した。結晶粒径の増加とともにヒロック形成応力は比例的に増加することが明らかとなった。

5 結 言

本研究では単結晶シリコン基板上にスパッタリング法で生成した Cu 膜の高温その場観察を行い、ヒロック形成に関する条件を調べた。スパッタリング製膜条件の一つである基板温度を変えることで Cu 膜の結晶粒径を変化させ、結晶粒径がヒロック形成温度にどのような影響を与えるかを明らかにした。本研究で得られた成果を以下にまとめる。

- (1) 面方位 $\langle 111 \rangle$ の単結晶 p 型シリコン基板上にスパッタリング法で生成した Cu 膜は弱い $\{111\}$ 配向を有する。さらに、基板温度 T_s が小さいほど $\{111\}$ 配向度が大きくなる。
- (2) スパッタリング生成後の Cu 膜にはシリコン基板との熱膨張差により引張残留応力が発生する。

Fig. 10 Young's modulus and Poisson's ratio of Cu at each temperature.⁷⁾

Fig. 11 Relationship between initial grain size and calculated hillock formation stress.

(3) 基板温度の増加とともに Cu 膜の結晶粒径は増加する。また、800℃まで加熱して室温に冷却すると Cu 膜の結晶粒径は加熱前よりも大きくなる。結晶粒径の増加量は低基板温度で作製した Cu 膜の方が大きくなる。

(4) 低基板温度 $T_s = 64^\circ\text{C}$ で作製した Cu 膜は加熱過程の 300℃近傍で多くのヒロックが発生した。基板温度の増加とともにヒロック形成温度は上昇し、高基板温度 $T_s = 200^\circ\text{C}$ で作製した Cu 膜は 800℃まで加熱してもヒロックは形成されなかった。

(5) ヒロック形成応力 (圧縮) は初期結晶粒径が小さいほど小さく、粒径が増加するとともに比例的に増加する。

参 考 文 献

- 1) T. Suzuki, T. Nakamura, Y. Mizushima, T. Kouno, M. Shiozu, S. Otsuka, T. Hosoda, H. Matsuyama and K. Shono, "Stress migration phenomenon in narrow copper interconnects", Journal of Applied Physics, Vol.101, No.4, p.044513 (2007).
- 2) Luhua Xu, Di Xu, K. N. Tu, Yuan Cai, Ning Wang, Pradeep Dixit, John H. L. Pang and Jianmin Miao, "Structure and migration of (112) step on (111) twin boundaries in nanocrystalline copper", Journal of Applied Physics, Vol.104, No.11, p.113717 (2008).
- 3) E. Zschech, R. Huebner, D. Chumakov, O. Aubel, D. Friedrich, P. Guttman, S. Heim and G. Schneider, "Stress-induced phenomena in nanosized copper interconnect structures studied by x-ray and electron microscopy", Journal of Applied Physics, Vol.106, No.9, p.093711 (2009).
- 4) A. Heryanto, K. L. Pey, Y. K. Lim, W. Liu, N. Raghavan, J. Wei, C. L. Gan, M. K. Lim and J. B. Tan, "The effect of stress migration on electromigration in dual damascene copper interconnects", Journal of Applied Physics, Vol.109, No.1, p.013716 (2011).
- 5) The Society of Materials Science, Japan, "Standard for x-ray stress measurement", p.1 (2002) the Society of Materials Science, Japan.
- 6) E. Kröner, "Berechnung der elastischen konstanten des vielkristalls aus den konstanten des einkristalls", Zeitschrift für Physik, Vol.151, No.4, pp.504-518 (1958).
- 7) Y. A. Chang and L. Himmel, "Temperature dependence of the elastic constants of Cu, Ag, and Au above room temperature", Journal of Applied Physics, Vol.37, No.9, pp.3567-3572 (1966).
- 8) The Japan Society of Mechanical Engineers, "JSME Data book : heat transfer 5th edition", pp.281-283 (2009) Maruzen.
- 9) W. Voigt, "Lehrbuch der kristalphysik", p.962 (1928) teubner Berlin.
- 10) A. Reuss, "Berechnung der fließgrenze von mischkristallen auf grund der plastizitätsbedingung für einkristalle", Journal of Applied Mathematics and Mechanics, Vol.9, No.1, pp.49-58 (1929).