

12

© 1992 г.

ДВУМЕРНЫЙ АНАЛИЗ АНОДНООБРАБОТАННЫХ СЛОЕВ

Л. М. Лыньков, С. Л. Прищепа, В. А. Самохвал, Л. В. Семеняков

Разработан метод двумерного анализа, основанный на определении пространственной корреляции исследуемых пористых аноднообработанных (ПАО) слоев Al_2O_3 . Приводятся корреляционные функции прямой и «обратной» поверхностей ПАО пленки Al_2O_3 . Рассматриваются процессы, проходящие при анодировании двухслойной структуры Al-Nb.

Введение

При создании новых объектов микроэлектроники на основе пористых аноднообработанных слоев алюминия возникает необходимость качественной и количественной оценки структур. На практике часто можно ограничиться субъективными оценками. Однако при определении степени упорядоченности расположения пор требуется дополнительная информация, которую можно получить только в результате специальной обработки или измерений. Развитие вычислительной техники способствует широкому применению средств цифровой обработки изображений в научных исследованиях. Количественную информацию о степени упорядоченности расположения пор можно применять для оценки качества технологии. В [1] степень упорядоченности расположения пор оценивалась нами по одной скалярной величине — расстоянию между ближайшими соседними элементами. В этом случае мы определяем среднее расстояние между порами и другие гистограммные признаки. Однако этот метод не позволяет получить полную информацию о пространственной корреляции образцов.

В данной работе предложен сравнительно простой метод двумерного анализа, основанный на определении пространственной корреляции исследуемых пористых аноднообработанных структур. В его основе — умножение исходного и смещенного изображений. Для компонент r и вектора смещения строится усредненная автокорреляционная матрица. Предполагается, что для некоррелированной (аперриодической) структуры распределение будет стремиться к равномерному. Периодические, т. е. скоррелированные структуры, выявляются по характерным максимумам двумерного распределения при соответствующих значениях r и φ .

Алгоритм обработки изображения

Поверхность пористообработанного материала можно представить как дискретное изображение — массив чисел $F(x,y)$. Преобразование непрерывного (аналогового) изображения в эквивалентный цифровой массив можно осуществить на интерактивной планшете оцифровкой контуров пор под управлением ЭВМ.

Пусть функция $F(x,y)$ описывает исходное непрерывное изображение, пред-

ставляя распределения оптической плотности (яркости) . В идеальной системе дискретизации изображений пространственные отсчеты исходного изображения получаются фактически путем перемножения этой функции с пространственно дискретизирующей функцией

$$S(x, y) = \sum_{j_1=-\infty}^{\infty} \sum_{j_2=-\infty}^{\infty} \delta(x - j_1 \Delta x, y - j_2 \Delta y), \quad (1)$$

состоящей из бесконечного числа δ -функций, заданных в узлах решетки с шагом $(\Delta x, \Delta y)$. Тогда дискретизированное изображение описывается соотношением

$$F_D(x, y) = F(x, y)S(x, y) = \sum_{j_1=-\infty}^{\infty} \sum_{j_2=-\infty}^{\infty} F(j_1 \Delta x, j_2 \Delta y) \delta(x - j_1 \Delta x, y - j_2 \Delta y). \quad (2)$$

В выражении (2) учитывается, что функцию $F(x, y)$ можно внести под знак суммирования и задать ее значение только в точках отсчета $(j_1 \Delta x, j_2 \Delta y)$. Величина шага сканирования выбирается из условия $\Delta x, \Delta y \ll D$, где D — средний размер поры .

В случае однофазной структуры (отсутствует квантование по яркости) имеет смысл провести пороговое преобразование каждой точки изображения $F_D(x, y)$ по принципу «да-нет», так что для точек структуры (в местах расположения пор) $F_D(x, y) = 1$, а для фоновых точек (между порами) $F_D(x, y) = 0$.

Двумерный анализ структуры проводили на основе операции сдвига . Введем оператор сдвига $S(\delta)$ [], так что

$$F(x, y, \delta) = S(\delta) [\tilde{F}(x, y)]. \quad (3)$$

Рассмотрим операцию логического умножения исходного и сдвинутого изображений

$$\Phi(x, y, \delta) = F(x, y) \times S(\delta) [F(x, y)]. \quad (4)$$

Учитывая, что $F(x, y)$ и $F(x, y, \delta)$ принимают значения либо 0, либо 1, и, просуммировав все выражения по x, y , получим количественную оценку этой операции

$$\Phi(\delta) = \sum_x \sum_y \Phi(x, y, \delta). \quad (5)$$

Выражение (5) по существу представляет собой площадь, занимаемую изображением $\Phi(x, y, \delta)$, т. е.

$$\Phi(\delta) = \text{area} \{F(x, y) \times F(x, y, \delta)\}. \quad (6)$$

Можно утверждать, что $\Phi(\delta)$ представляет собой некоторый абсолютный показатель степени наложения изображения $F(x, y)$ на себя при некотором сдвиге на вектор δ .

Для установления пространственных признаков изображения определим величины $\Phi(\delta)$ для определенного набора значений компонент r и φ вектора сдвига δ . Если значения r и φ квантованы в диапазонах $0 \leq r \leq M-1$, $0 \leq \varphi \leq N-1$, то $\Phi(\delta) = \Phi(r, \varphi)$ представляет собой матрицу размером $M \times N$. Для нерегулярной структуры распределение $\Phi(r, \varphi)$ должно стремиться к равномерному. В случае периодической структуры при некоторых r и φ $\Phi(r, \varphi)$ будет достигать выраженного максимума при достаточной пространственной корреляции. Удобнее рассматривать нормированную величину

$$S(r, \varphi) = \Phi(r, \varphi) / \text{area} \{F(x, y)\}. \quad (7)$$

При этом в случае идеальной периодической структуры для величин r_T и φ_T , определяющих ее пространственные периоды, имеет место полное наложение

при сдвиге на вектор δ_{τ} , так что $S(r_{\tau}, \varphi_{\tau}) = 1$. По существу $S(\delta)$ представляет собой пространственную автокорреляционную функцию, вычисленную для некоторой области изображения. На рис. 1 приведен вид функции $S(r, \varphi)$ для искусственно синтезированной идеальной структуры — элементы локализованы в узлах треугольной решетки. Видно, что максимумы первого порядка функции наблюдаются с периодом по φ в 60° , что соответствует идеальной треугольной решетке. Пик при $R = 0$ соответствует наложению изображения на самого себя.

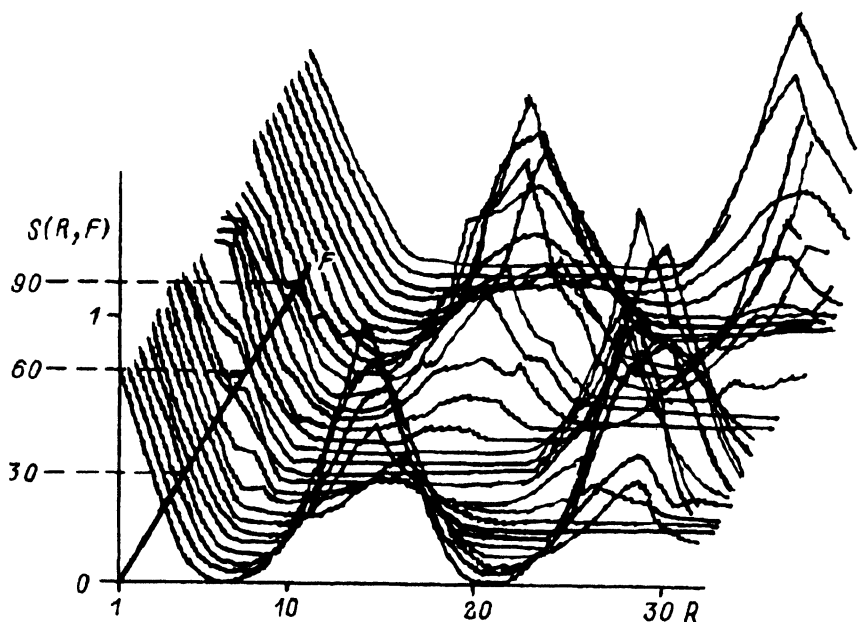


Рис. 1. Автокорреляционная функция $S(r, \varphi)$ для структуры, представляющей собой идеальную треугольную решетку.

Ось OX — R -направление вектора сдвига, ось OY — F -направление вектора сдвига, ось OZ — $S(R, F)$ (автокорреляция).

Алгоритм реализовывался на текстурно-анализирующей системе Leitz-TAS (ФРГ).

Результаты и обсуждение

Объект исследования — поверхности пористых аноднообработанных слоев Al выбран нами неслучайно. Процессы анодной обработки металлов, полупроводников, тонкопленочных структур на их основе все шире используются для создания элементов микроэлектроники. Благодаря методам сканирующей и просвечивающей электронной микроскопии установлено, что анодные пленки Al представляют собой ячеисто-пористую структуру и состоят из гексагонально расположенных плотно упакованных оксидных ячеек, каждая из которых содержит расположенную по оси пору [2, 3].

Характерный размер ячеек составляет $0.1 \dots 0.5$ мкм. Он определяется условиями протекания процесса электрохимического анодирования: природой электролита и его концентрацией, плотностью анодного тока (величиной анодного потенциала), а также качеством исходной поверхности. Таким образом, идеальная структура пор представляет собой треугольную решетку.

Кроме того, исследовался порядок расположения пор и внутри слоев Al_2O_3 . Для этого использовалась методика приготовления образцов, описанная в [4]. Суть ее заключается в анодировании двухслойной структуры $Al-Nb$. Первоначаль-

чально формирование ячеисто-пористой структуры анодной оксидной пленки Al происходит по обычному процессу [5, 6] : зарождение и рост оксидных ячеек, упорядочение образованной ячеисто-пористой структуры, рост анодного оксида при установившемся потенциале или плотности анодного тока. Этот процесс сопровождается встречной миграцией через барьерный слой ионов O^{2-} из электролита и ионов Al^{3+} , в ходе которого происходит частичное растворение барьерного слоя у основания пор и одновременное его наращивание в глубь пленки алюминия. В этот период все анодные процессы протекают приблизительно с одинаковой скоростью при постоянном анодном токе и потенциале.

В момент достижения фронта анодирования пленки Nb установившееся равновесие нарушается: в гальваностатическом режиме происходит увеличение анодного потенциала, а в потенциостатическом — снижение плотности анодного тока. В этот период в рассматриваемой системе начинают происходить следующие процессы. Под воздействием электрического поля ионы O^{2-} , диффундирующие из электролита, достигают поверхности Nb в месте его контакта с барьерным слоем и окисляют его. Но так как образуемая пленка Nb_2O_5 обладает более высокими барьерными свойствами (более высоким сопротивлением полному току), то происходит перераспределение плотности анодного тока от центра основания поры к ее краям, что и приводит к росту анодного потенциала и утолщению локально окисляемой области Nb_2O_5 . Постоянно продолжающееся растворение барьерного слоя со стороны поры также способствует росту оксидной области у Nb. После того как доанодирование (боковое окисление Al) завершается, система опять стремится к равновесию. Под порами в Al_2O_3 образуются окисленные области Nb_2O_5 , размеры которых определяются размерами пор в пленке Al_2O_3 и величиной установившегося анодного потенциала E_a [4, 7, 8]. Оксид Nb имеет коэффициент объемного роста $n \sim 2.5$ [9]. За счет этого Nb_2O_5 встраивается в пору Al_2O_3 . Расположение и размеры выступов Nb_2O_5 идентичны расположению и размерам пор в Al_2O_3 . Стравливая слой Al_2O_3 в водном растворе HNO_3 , получим «след» поверхности пористообработанной пленки Al_2O_3 в виде столбчатой структуры из Nb_2O_5 на поверхности ниобиевой пленки (рис. 2).

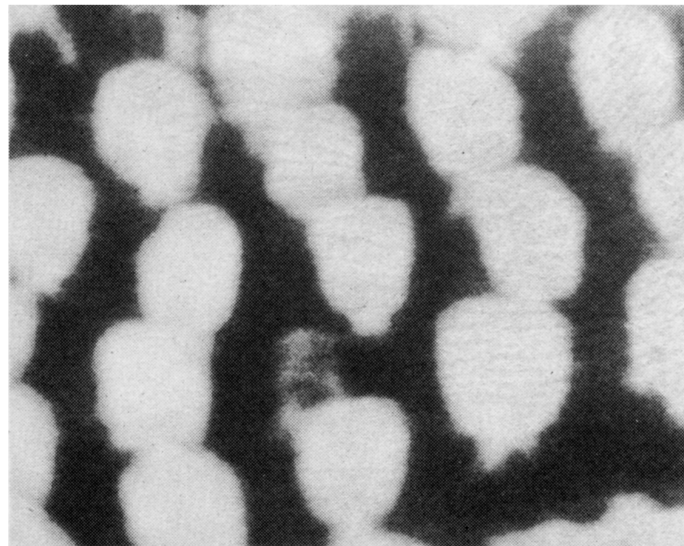


Рис. 2. Поверхность пленки Nb после анодной обработки через поры в Al_2O_3 . Столбики — участки Nb_2O_5 .

На рис. 3, а приведена автокорреляционная функция поверхности пористой аноднообработанной пленки Al_2O_3 , а на рис. 3, б — автокорреляционная функция «обратной» поверхности этой пленки. Очевидно, что степень регуляр-

ности выше во втором случае. В первом случае корреляционные максимумы расположены через 60° , во втором — через 55° . Максимальное значение $S(r, \varphi)$ для «обратной» поверхности в 2.5 раза больше, чем для поверхности Al_2O_3 . Этот факт находит свое объяснение в том, что на начальной стадии анодирования поры могут образовываться в местах повышенного тепловыделения при протекании тока: на границе зерен, в местах дислокаций, расположения посторонних примесей на поверхности пленки, в участках аномально больших внутренних напряжений.

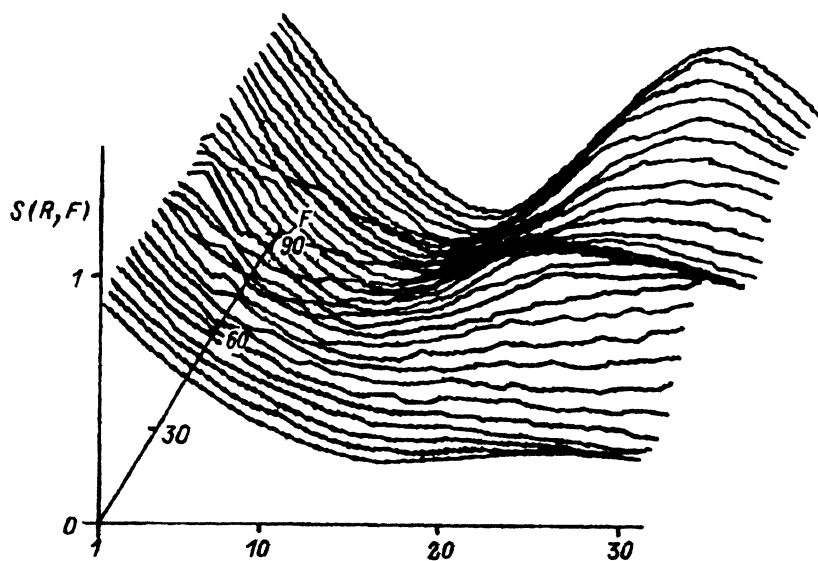
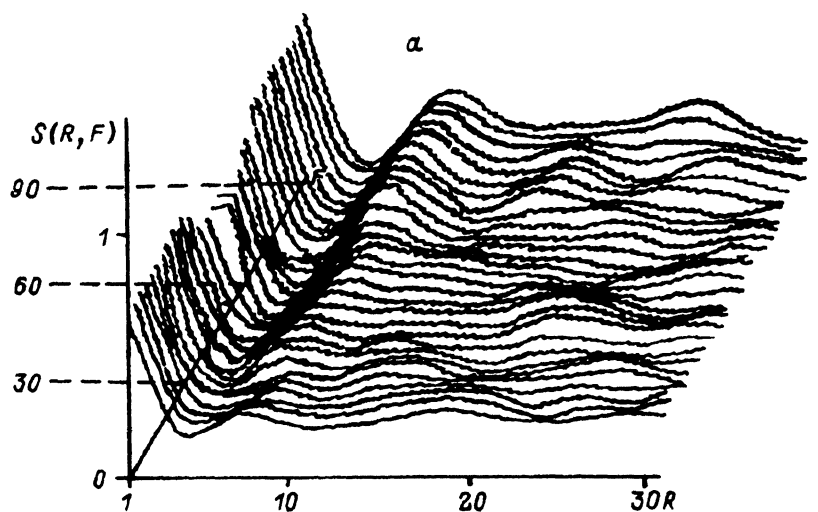


Рис. 3. Автокорреляционные функции.

Ось OX — R -направление вектора сдвига, ось OY — F -направление. Значения отложены в градусах. Ось OZ — $S(R, F)$ (автокорреляция); a — поверхность пористой аноднообработанной пленки Al_2O_3 (1 шаг сдвига равен 22.03 нм), b — «обратная» поверхность пористой аноднообработанной пленки Al_2O_3 (1 шаг сдвига равен 7.34 нм).

Исходная пленка Al поликристаллическая, имеет дефектную структуру с плотностью дислокаций на поверхности $10^{15} \dots 10^{16} \text{ м}^{-2}$. Кроме того, сам алюминий покрыт естественной оксидной пленкой с плотностью дефектов поверхности, сравнимой с дефектностью алюминия [10]. Повышение температуры вызывает увеличение степени растворения оксида. Поэтому при толщинах пленок Al менее 1 мкм не удастся, как правило, стабилизировать процесс формирования ячеистой плотноупакованной структуры [11]. Необходимо повышать формирующее напряжение, а значит, и глубину пор, чтобы между имеющимися ячейками образовались новые, постепенно заполняя всю поверхность металла. При этом в неизменных режимах анодирования (анодном потенциале, плотности анодного тока) происходит перераспределение ячеистых структур по глубине пленки. Так называемые «лишние» поры сливаются с «основными». С ростом глубины анодирования повышается степень упорядоченности, что и находит свое отражение в увеличении пиков автокорреляционной функции на рис. 3, б.

Выводы

1. Разработана методика двумерного анализа однофазных тонкопленочных структур, основанная на определении пространственной корреляционной функции.
2. Впервые построены экспериментальные автокорреляционные функции поверхности пористообработанного Al. Доказано увеличение степени корреляции расположения пор с ростом толщины пленки Al.
3. Разработанная методика в совокупности с традиционными методами может быть использована для контроля качества пористых анодных оксидов.

Список литературы

- [1] Дедю В. И., Лыков А. Н., Прищеп С. Л. и др. // Препринт ФИАН СССР. М., 1988. № 27. 39 с.
- [2] Thompson G. E., Wood G. C. // Treatise on Materials Science and Technology. New York, 1983. Vol. 23. P. 203–329.
- [3] Keller F., Hunter M. S., Robinson D. L. // Electrochem. Soc. 1953. Vol. 100. N 9. P. 411–419.
- [4] Лышков Л. М., Прищеп С. Л., Семеняков Л. В. // Тез. докл. I Всесоюз. конф. «Электрохимическая анодная обработка металлов». Иваново, 1988. С. 28.
- [5] Thompson G. E., Furneaux R. G., Wood G. C. et al. // Nature. 1978. Vol. 272. N 5648. P. 433–435.
- [6] Labunov V. A., Sarganov V. F., Gorokh G. G., Mozalev A. M. // Extended abstracts of XI Intern. Congress on Electron Microscopy. Kyoto (Japan), 1986. P. 1020–1021.
- [7] Лышков Л. М., Прищеп С. Л., Семеняков Л. В. // Матер. V конф. «Микроэлектроника». Братислава, 1989.
- [8] Субанов В. Ф., Мозалев А. М. // ДАН БССР. 1990. № 3. С. 234–237.
- [9] Кургашевский О., Гопкинс Б. Окисление металлов и сплавов. М.: Металлургия, 1965.
- [10] Гутман Э. М. Механохимия металлов и защита от коррозии. М.: Металлургия, 1981.
- [11] Томашев Н. Д., Тюкина М. Н., Заливалов Ф. П. Толстослойное анодирование алюминия и его сплавов. М.: Машиностроение, 1968.

Минский радиотехнический институт
Поступило в Редакцию
6 августа 1990 г.