

Elektrotransportversuche mit epitaktischen Goldschichten

W. Kleinn und H. Hübner
Fachhochschule Karlsruhe

Z. Naturforsch. 34a, 1196–1202 (1979); eingegangen am 23. Juni 1979

Electrotransport Experiments with Epitaxial Gold Films

Electrotransport in gold films of 60 nm thickness grown epitaxially onto hot (100) NaCl substrate is determined from the growth rate of voids forming in the temperature gradient in short specimens observed in the transmission electron microscope while loaded with direct current densities of several 10^6 A/cm^2 . For the temperature range 631–1214 K an activation energy $(1,19 \pm 0,05) \text{ eV}$ is found.

1. Einleitung

Der mit dem Ladungstransport in Metallen verknüpfte Massetransport wurde an dünnen Schichten vielfältig untersucht, seit sich gezeigt hatte, daß dieser Vorgang die Leiterbahnen in Mikroelektronik-Schaltkreisen beeinträchtigen kann. Zusammenfassende Darstellungen darüber wurden vor einigen Jahren von verschiedenen Autoren [1, 2, 3] gegeben. Die Mehrzahl der Untersuchungen wurde, den Anwendungsbedingungen entsprechend, mit polykristallinen Schichten durchgeführt, und die Leiterbahnen wurden auf dem Substrat — häufig SiO_2 — untersucht, auf dem sie durch Bedampfung oder Zerstäubung niedergeschlagen worden waren. In einigen Fällen wurde in das Silizium unter dem SiO_2 -Substrat ein kleines Loch geätzt, und die Bildung von Löchern und Hügeln in Schichten aus Al [4], Al-Cu [5] und Au [6] wurde im Durchstrahlungselektronenmikroskop verfolgt. Bei den Bemühungen um eine Klärung der Transportmechanismen wurden zum Vergleich auch Versuche mit einkristallinen Schichten aus Al [7] oder Al-Legierungen [8, 9] angestellt. Jedoch blieben diese Versuche wegen der präparativen Schwierigkeiten nur sehr vereinzelt [9]. Elektrotransportversuche mit epitaktischen Goldschichten fehlten bisher, wenn man von den wenig ergiebigen Ansätzen von Ho und Glowinski [10] absieht. Über derartige Versuche soll hier berichtet werden.

2. Untersuchungsmethode

2.1. Massstrom-Temperatur-Beziehung

Für die Versuche wurde eine schon früher bei epitaktischen Silberschichten [11] und bei poly-

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. W. Kleinn, Fachhochschule Karlsruhe, Postfach 6240, D-7500 Karlsruhe 1.

0340-4811 / 79 / 1000-1196 \$ 01.00/0.— Please order a reprint rather than making your own copy.

kristallinen Goldschichten [12] angewandte Ver- suchstechnik weiterentwickelt. Abbildung 1 soll einer Veranschaulichung des Verfahrens dienen. Streifenförmige Proben der dünnen Schichten werden vom Substrat abgelöst und freitragend auf einen spaltförmigen Träger präpariert, der sich

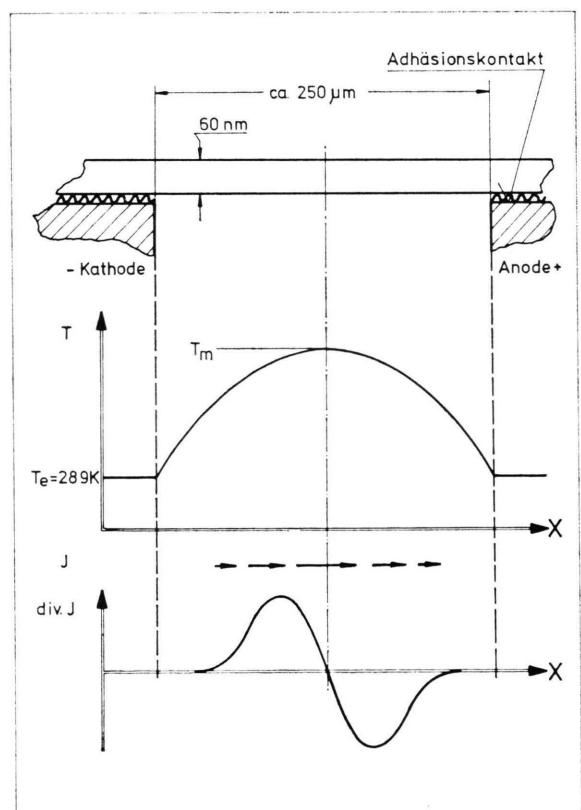


Abb. 1. Schematische Darstellung des freitragenden Teils der Probe mit den Adhäsionskontakte zu den Elektroden; Verlauf der Temperatur T , des Massestroms J und der Massestromdivergenz $\text{div } J$ längs der Probe.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

in das Durchstrahlungs-Elektronenmikroskop einsetzen läßt. Die Spaltkanten bestehen aus Gold und stellen die Elektroden für den Stromdurchgang sowie Wärmesenken für die im freitragenden Teil des Streifens entwickelte Stromwärme dar. Bei Stromdurchgang erwärmt sich der freitragende Teil, wobei die Temperatur in der Mitte ein Maximum hat. In den Temperaturgradienten hat der Massestrom aufgrund seiner Temperaturabhängigkeit positive Divergenz, wenn er in Richtung steigender Temperatur, und negative Divergenz, wenn er in Richtung fallender Temperatur fließt. Positive Divergenz ist mit Materieabbau, negative Divergenz mit Materieanbau verknüpft. Der Materieabbau führt im fortgeschrittenen Stadium des Versuchs zur Bildung und dem Wachstum von Löchern in der Goldschicht. Sofern der Abbau nur in den Löchern erfolgt, ist das Produkt aus der Flächenzuwachsrate aller Löcher und der Schichtdicke gleich dem Massestrom, der an der Stelle des Temperaturmaximums fließt [4, 5, 6]. An dieser Stelle hat der Massestrom seinen größten Betrag und ist divergenzfrei. Die Temperaturabhängigkeit des Massestroms wird ermittelt, indem die Flächenzuwachsrate aller Löcher im Abbaubereich bei verschiedenen Maximaltemperaturen gemessen wird.

2.2. Spannungs-Maximaltemperatur-Beziehung

Die Maximaltemperatur T_m hängt nur vom Spannungsabfall über der Probe ab, sofern die Stromwärme aus der Probe ausschließlich durch longitudinale Wärmeleitung zu den Elektroden der konstanten Temperatur T_e hin abgeführt wird. Diese Voraussetzung ist um so besser erfüllt, je kürzer die Proben sind. Wird die Spannung U über einen Zuleitungswiderstand R_z an die Probe gelegt, so ist nach Kohlrausch [13]

$$T_m = [(U - IR_z)^2/4L + T_e^2]^{1/2}, \quad (1)$$

wobei I die Stromstärke und L das Wiedemann-Franz-Verhältnis bedeuten. Für L wird nach den bis zu 1200 K reichenden Messungen von Laubitz [18] für Gold der konstante Wert $0,024 \text{ mV}^2/\text{K}^2$ angenommen. Solange im Verlauf eines Versuches der Spannungsabfall über der Probe konstant bleibt, wird die Höhe der Maximaltemperatur durch die mit der Löcherbildung verbundene Querschnittsverringerung nicht beeinflußt. Der Ort der Maximaltemperatur stimmt dabei jeweils mit dem Ort der Potentialmitte zwischen den beiden Elektroden

überein und verschiebt sich mit diesem von der geometrischen Probenmitte aus in Richtung zum Löcherfeld hin. Da im Experiment die angelegte Spannung U konstant gehalten wird, muß der Zuleitungswiderstand R_z möglichst klein sein, damit bei der durch die Querschnittsverringerung verursachten Abnahme der Stromstärke die Zunahme des Spannungsabfalls über der Probe möglichst gering bleibt.

Ungesichert ist bei dem Verfahren, ob die in Gl. (1) zugrunde gelegten Voraussetzungen über die Leitungsvorgänge auch bei den durch Adhäsion gebildeten Kontakten zwischen der dünnen Schicht und den als Elektroden dienenden Spaltkanten erfüllt sind. Bei den früheren Versuchen mit polykristallinen Goldschichten [12] war zu einer Prüfung der Zuverlässigkeit der U - T_m -Beziehung nach Gl. (1) die Maximaltemperatur T_m aufgrund der durch Elektronenbeugung ermittelten Gitteraufweitung gemessen worden, wobei sich in den Grenzen der Meßgenauigkeit von $\pm 15 \text{ K}$ eine Bestätigung von Gl. (1) ergab. Bei epitaktischen Schichten läßt sich dieses Verfahren nicht ohne weiteres anwenden, da zur Erreichung der genannten Temperaturmeßgenauigkeit die Mittelwertbildung über die von vielen Kristalliten gebeugten Reflexe eines Beugungsrings erforderlich ist. Bei den epitaktischen Goldschichten wird daher die Gültigkeit der U - T_m -Beziehung nach Gl. (1) auf eine andere Weise geprüft, indem die Schmelztemperatur des Goldes als Eichpunkt für T_m herangezogen wird. In einem fortgeschrittenen Stadium der Löcherentwicklung wird die Spannung so weit erhöht, daß der der Schmelztemperatur entsprechende Wert der Spannung überschritten wird, und es wird diejenige Spannung gemessen, bei der die Stromstärke steil abfällt.

2.3. Strom-Spannungs-Beziehung

Wegen der Bedeutung der Spannungsmessung für die Bestimmung der Maximaltemperatur wird die Strom-Spannungs-Beziehung der Proben einschließlich der Adhäsionskontakte genauer untersucht. Die Strom-Spannungs-Kurven werden registriert und mit einer Modellrechnung verglichen, in die nur die Temperaturabhängigkeiten des spezifischen Widerstandes ϱ und der Wärmeleitfähigkeit λ eingehen sowie der Widerstand R_e der Probe bei einer sehr kleinen Strombelastung, die keine merkliche Erwärmung hervorruft. Für die

Temperaturabhängigkeiten $\varrho(T)$ und $\lambda(T)$ werden das Wiedemann-Franz-Gesetz $\varrho \cdot \lambda = L \cdot T$ und die Matthiessen-Regel $\varrho(T) = \varrho_t(T) + \varrho_0$ angenommen. Für das Wiedemann-Franz-Verhältnis L und für den temperaturabhängigen Anteil $\varrho_t(T)$ des spezifischen Widerstandes werden die Werte von Laubitz [18] verwendet. Der spezifische Restwiderstand ϱ_0 wird in der Form des inversen Restwiderstandsverhältnisses $RRR^{-1} = \varrho_0/\varrho(289\text{ K}) = R_0/R(289\text{ K})$ für jede Probe als Anpassungsparameter bestimmt. Die Formel zur Berechnung der Stromstärke wurde im Zusammenhang mit der Anwendung des gleichen Verfahrens bei polykristallinen Goldschichten [12] angegeben. Eine ausführlichere Darstellung soll an anderer Stelle [19] veröffentlicht werden.

3. Experimente

3.1. Probenherstellung

Die Goldstreifen werden durch eine Metallmaske mit $70\text{ }\mu\text{m} \times 1\text{ mm}$ großen Öffnungen hindurch bei einem Druck von 3 mPa 60 nm dick auf eine NaCl-Spaltfläche aufgedampft, die zur Erleichterung der Epitaxie mit Wasserdampf vorbehandelt [20] und dann im Vakuum auf $400\text{ }^\circ\text{C}$ erwärmt worden war. Die Streifen werden vom Kristall auf eine Wasseroberfläche abgeflottet, mit einer dünnen Kollodiumhaut von 12 mm Durchmesser aufgefangen und mit dieser auf einen vorbereiteten spaltförmigen Träger aufgelegt. Zur Erzielung eines guten Kontakts zur Dünnschichtprobe werden die gereinigten Goldflächen an den Spaltkanten mit einem feinen Abziehstein aufgerauht, in Methylacetat mit Ultraschall behandelt und kurz vor dem Auflegen der Probe mit einer ca. 80 nm dicken Goldaufdampfschicht bedeckt. Nach dem Auflegen wird auf die Kollodiumhaut ein Tropfen Toluol gesetzt. Toluol löst die Kollodiumhaut nicht. Beim Eintrocknen des Toluols bildet sich der niederohmige Adhäsionskontakt aus. Vor dem Aufheizen durch Strombelastung wird die Probe im Durchstrahlungselektronenmikroskop mit 100 keV -Elektronen in einer Dosis von ca. 0.1 As/cm^2 bestrahlt. Dadurch wird die Kollodiumhaut verkohlt und durch die Kohlenwasserstoffkontamination aus dem Restgas des Elektronenmikroskops verstärkt.

3.2. Durchführung der Messungen und Auswertung

Die Elektrotransportversuche werden in einem Durchstrahlungselektronenmikroskop Siemens

Elmiskop IA mit der Stromzuführung für die Objektheizeeinrichtung durchgeführt. Der Zuleitungswiderstand R_z zu den Proben wird unter Verwendung eines Trägers mit kurzgeschlossenen Elektroden zu $0.063\text{ }\Omega$ gemessen. Die Elektrodentemperatur T_e wird durch die Kühlwassertemperatur des Elektronenmikroskops bestimmt, die 289 K beträgt. Nach dem Einsetzen eines mit einem Goldstreifen belegten Trägers in das Elmiskop und der oben erwähnten Vorbestrahlung wird die Probe zunächst durch Stromdurchgang getempert, wobei die Temperatur in der Probenmitte bis etwa 1150 K ansteigt. Danach wird die Strom-Spannungs-Kurve mittels eines Koordinatenschreibers sowie mittels zweier Digitalvoltmeter mit angeschlossenem Meßwertdrucker registriert. Die an die Probe gelegten Spannungen werden einer speziellen Spannungsquelle [21] mit digitaler Steuerung und einem schnellen Spannungsfolger entnommen. Für den Elektrotransportversuch wird eine vorgewählte Spannung angelegt und während der Versuchsdauer konstant gehalten. Damit bleibt auch die Maximaltemperatur in der Probenmitte nahezu konstant. In geeigneten Zeitabständen werden Bilder der Probe aufgenommen, aus denen das Wachstum der Löcher in der einen Probenhälfte zu erkennen ist. Es werden 14 Proben untersucht, bei denen die Maximaltemperaturen in der Probenmitte zwischen 631 K und 1214 K liegen. Die Dauer des Elektrotransportversuchs bei 1214 K Maximaltemperatur beträgt 30 s . Bei der Maximaltemperatur 631 K wird nach 50 Stunden eine gesamte Versuchsdauer von 500 bis 1000 Stunden geschätzt. Zur Abkürzung dieses Versuchs wird in diesem Zeitpunkt die Maximaltemperatur auf 719 K erhöht. An 7 Proben wird nach einem durch die fortschreitende Löcherentwicklung bedingten Absinken der Stromstärke um 4% die Spannung mit einer Geschwindigkeit von 100 mV/s so weit erhöht, daß die Probe durchschmilzt, und es wird diejenige Spannung gemessen, bei der die Stromstärke steil abfällt. Bei geringeren Anstiegsgeschwindigkeiten wird der Stromabbruch durch den bei Annäherung an die Schmelztemperatur sehr schnell verlaufenden Elektrotransport mit beeinflußt. Bei höheren Anstiegsgeschwindigkeiten erschwert die Trägheit des Koordinatenschreibers die Bestimmung der Schmelzspannung. An einer Probe wird die Löcherentwicklung bei konstanter Spannung U bis zum Durchbruch beobachtet.

In den elektronenmikroskopischen Negativen wird die Löcherfläche nach einem Verfahren der elektronischen Bildanalyse gemessen. Bei einer solchen Messung bildet eine Fernsehkamera das rückwärtig beleuchtete Negativ ab. Das Bildamplitudensignal der Kamera wird mittels eines schnellen Komparators mit einer einstellbaren Konstantspannung verglichen. Die Zeitintervalle der Unterschreitung der Konstantspannung werden im 10,7-MHz-Takt ausgezählt und über den auszumessenden Bildausschnitt aufsummiert.

4. Ergebnisse und Diskussion

4.1. Maximaltemperatur und Strom-Spannungs-Beziehung

Daten und Ergebnisse der mit den 14 Proben angestellten Versuche sind in Tab. 1 zusammengestellt. Die Länge l des freitragenden Teils der Goldstreifen wurde durch die Breite der Spaltöffnung bestimmt. Die Maximaltemperaturen wurden nach Gl. (1) berechnet. Für eine im Verlauf des Versuchs eintretende Abnahme der Stromstärke um 4% ergibt sich aus dem Zuleitungswiderstand 0,063 Ω und der größten vorkommenden Anfangstromstärke eine Erhöhung der Maximaltemperatur um 1,2 K. Bei der Bestimmung der Schmelzspannungen wurden der Spannungsabfall über dem Zuleitungswiderstand und das dynamische Verhalten des verwendeten Koordinatenschreibers berücksichtigt. Die so erhaltenen Ergebnisse stimmen

mit dem nach Gl. (1) mit $I=0$ für die Schmelztemperatur des Goldes von 1336 K berechneten Wert von 404 mV im Mittel gut überein.

Die als Anpassungsparameter für die Strom-Spannungs-Kurven bestimmten Werte des inversen Restwiderstandsverhältnisses RRR^{-1} sind deutlich niedriger als die bei früheren Versuchen mit polycristallinen Goldschichten [12] gefundenen, die zwischen 0,36 und 0,52 lagen. Dieser Unterschied wird der Verbesserung der Kontakte durch die Vorbedampfung der Elektroden zugeschrieben. Zwischen der auf den Elektroden frisch niedergeschlagenen Goldschicht und der Probe bilden sich metallisch leitende Berührpunkte [22] in der Nähe des Elektrodenrands mit geringerem Restwiderstand aus. Es wird angenommen, daß bei einem inversen Restwiderstandsverhältnis um 0,06 der Anteil der Kontakte am Restwiderstand nur noch gering ist. Bei der hier vorgenommenen Bestimmung des Restwiderstandes werden Einflüsse einer Begrenzung der freien Weglänge der Leitungselektronen aufgrund der geringen Probendicke nicht erfaßt, da das Verfahren nur auf Messungen bei hohen Temperaturen beruht. Widerstandsmessungen bei Heliumtemperaturen würden daher nur dann zu den gleichen Ergebnissen führen, wenn man an dickeren Proben mißt, die den gleichen Störgrad aufweisen wie die hier verwendeten dünnen Schichten. Der Betrag der gefundenen RRR^{-1} -Werte läßt erkennen, daß die Proben sehr stark gestört sind.

Tabelle 1.

Nr. der Probe	Länge	Angelegte Spannung	Anfangsstromstärke	Versuchsdauer	Schmelzspannung	Inverses Restwiderstandsverhältnis	Maximaltemperatur	Zuwachsrate der Fläche aller Löcher
	l [μm]	U [mV]	I [mA]	t [min]	U_{Schm} [mV]	RRR^{-1}	T_m [K]	dA/dq [m^2/As]
19	250	330	144	2	—	0,11	1076	$1,62 \cdot 10^{-11}$
20	280	332	123	3	—	0,11	1085	$3,93 \cdot 10^{-11}$
22	280	281	144	24	—	0,095	925	$1,35 \cdot 10^{-12}$
24	220	281	147	18	404	0,07	924	$1,25 \cdot 10^{-12}$
25	280	311	111	12	—	0,11	1023	$2,85 \cdot 10^{-12}$
26	220	251	142	90	401	0,10	833	$3,33 \cdot 10^{-13}$
27	280	312	132	9	401	0,07	1020	$4,70 \cdot 10^{-12}$
29	265	376	158	0,5	405	0,06	1214	$5,90 \cdot 10^{-11}$
30	245	212	127	780	401	0,09	719	$3,33 \cdot 10^{-14}$
31	260	282	116	35	403	0,10	931	$1,68 \cdot 10^{-12}$
32	250	312	136	6	—	0,10	1020	$1,24 \cdot 10^{-11}$
33	250	371	132	0,5	—	0,09	1206	$1,13 \cdot 10^{-10}$
34	245	251	137	125	—	0,06	835	$5,17 \cdot 10^{-13}$
35a	270	181	119	3000	—	0,12	631	$2,03 \cdot 10^{-15}$
35b		212	125	1200	403		719	$2,63 \cdot 10^{-14}$

Bei den RRR^{-1} -Werten um 0,06 wurde auch das bei ca. 360 mV gelegene Maximum der Strom-Spannungs-Kurve beobachtet, das Greenwood und Williamson [14] bei der Untersuchung von Goldkontakte gefunden hatten, und das sich auch aus den Modellrechnungen für die Strom-Spannungs-kurven ergibt.

4.2. Massestrom-Temperatur-Beziehung

Die Löcher bildeten sich in allen Proben in der kathodischen Hälfte. Daraus ist zu schließen, daß das Gold unter der Wirkung des Elektronen-, „winds“ in Richtung des Elektronenstroms transportiert wird. Die Form des Goldanbaus in der anodischen Hälfte wurde an den Proben nicht untersucht. Unter den auf die Beobachtung des Löcherwachstums ausgerichteten Abbildungsbedingungen wurde eine Bildung von Hügeln im Anbaubereich nicht bemerkt.

In Abb. 2 sind die Ergebnisse der Löcherflächenmessung für die bis zum Durchbruch beobachtete

Probe in Abhängigkeit von der bis zur jeweiligen Aufnahme geflossenen Ladung dargestellt. Der Kurve fehlen zwei Merkmale entsprechender von anderen Autoren [4, 5, 6, 23] beschriebener Kurven: die Inkubationszeit und der linear ansteigende Teil. Das Fehlen der Inkubationszeit erklärt sich einfach dadurch, daß für die Temperung vor Beginn des eigentlichen Versuchs Gleichstrom benutzt wurde und die Temperungsdauer einschließlich der Aufnahme der Strom-Spannungs-Kurve sich gerade bis zum Beginn der Löcherbildung erstreckte. Das Fehlen des linear ansteigenden Teils weist darauf hin, daß der Materieabbau in der kathodischen Hälfte der Goldproben nicht nur in den Löchern erfolgt. Tatsächlich wird an den Proben auch eine mehr oder weniger stark ausgeprägte flächenhafte Dünning im Abbaubereich außerhalb der Löcher beobachtet, wie es ähnlich auch von anderen Autoren [4, 24] berichtet wird. Die stetig zunehmende Steigung der Löcherwachstumskurve läßt sich dann dadurch erklären, daß die Löcher sich in immer stärker vorgedünnte Flächenbereiche hinein ausdehnen.

Um die Masseströme bei verschiedenen Maximaltemperaturen miteinander zu vergleichen, wird die Steigung der Löcherwachstumskurven zu dem Zeitpunkt benutzt, zu dem die Stromstärke um 4% abgenommen hat. Mit den zwei Ausnahmen der bis zum Durchbruch beobachteten Probe und des Versuchsabschnitts bei 631 K Maximaltemperatur ist das die Endsteigung. Für die bis zum Durchbruch beobachtete Probe ist die benutzte Steigung in Abb. 2 eingezeichnet. Für den Versuchsabschnitt bei 631 K wird die nach 50 Stunden erreichte Endsteigung mit dem Quotienten Endsteigung/Anfangssteigung des nachfolgenden Versuchsabschnitts bei 719 K multipliziert. Die Produkte der Flächenzuwachsraten dA/dq , wie sie in Tab. 1 angegeben sind, mit der anfänglichen Schichtdicke von 60 nm sind in Abb. 3 als Volumenzuwachsraten dV/dq in logarithmischem Maßstab über der reziproken Temperatur aufgetragen. Die Steigung der Arrhenius-Geraden wird nach der Methode der kleinsten Quadrate ermittelt. Es ergibt sich eine Aktivierungsenergie von $(1,19 \pm 0,05)$ eV. Dieses Ergebnis stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Wert $(1,16 \pm 0,02)$ eV überein, den Gupta [25] aus seinen Messungen der Diffusion längs Versetzungen in epitaktischen Goldschichten erhielt. Bei einem Vergleich dieser beiden Ergebnisse ist jedoch zu be-

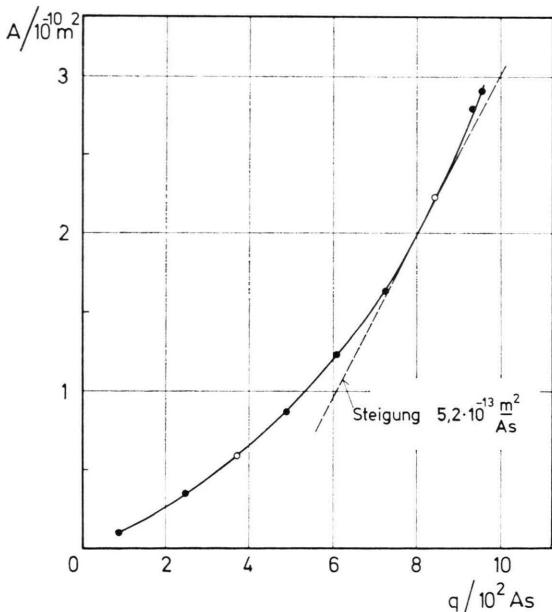


Abb. 2. Gesamtfläche A aller in der kathodischen Hälfte der Probe gebildeten Löcher in Abhängigkeit von der geflossenen Ladung $q = \int I dt$ für die Probe Nr. 34. Der Berührpunkt der eingezeichneten Tangente entspricht dem Zeitpunkt, zu dem die Stromstärke um 4% ihres Anfangswertes abgenommen hatte. Die Löcherumrisse der beiden mit \circ markierten Meßpunkte sind in Abb. 4 wiedergegeben.

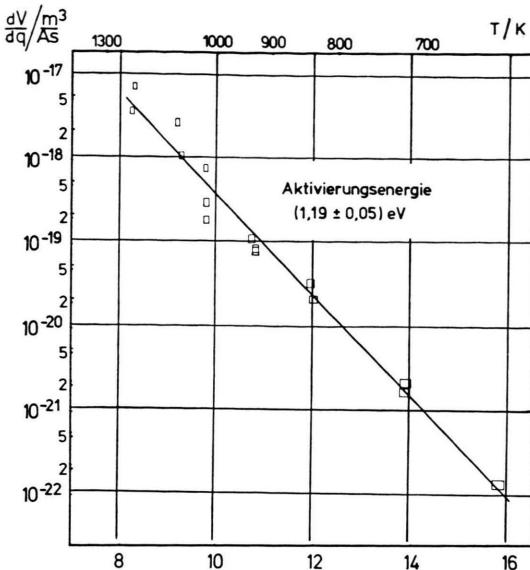


Abb. 3. Arrhenius-Gerade: Volumenzuwachsrate der Löcher dV/dq (log) in Abhängigkeit von der reziproken Temperatur. Fehlerbereiche der einzelnen Meßpunkte für $T: \pm 5\text{ K}$, für $dV/dq: \pm 10\%$.

achten [26], daß Gupta die Diffusion senkrecht zur Oberfläche gemessen hat, wogegen der Elektrotransport bei den vorliegenden Versuchen parallel zur Oberfläche erfolgt.

Eine wesentliche Voraussetzung bei der Auswertung der Elektrotransportversuche ist, daß das Verhältnis der Abbaurate an den Löchern zur Abbaurate der flächenhaften Dünning temperaturunabhängig ist. Das Bildmaterial und die Krümmung der Löcherwachstumskurven führen jedoch zu der Vermutung, daß der Anteil der flächenhaften Dünning bei tieferen Temperaturen höher ist. Bei der Berücksichtigung eines solchen Einflusses ergäbe sich eine niedrigere Aktivierungsenergie als aus Abbildung 3.

Oldham et al. [27] finden bei ihrer Untersuchung über Elektrotransport und Deformation in reinem Gold in den verwendeten Drähten bei Masseströmen bis zu $8 \cdot 10^{20} \text{ Atome} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ und Massestromdivergenzen bis zu $5 \cdot 10^{23} \text{ Atome} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, die sie als etwa die größten jemals in einem reinen Metall erzeugten bezeichnen, keinerlei Porenbildung. Bei den in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Ver-

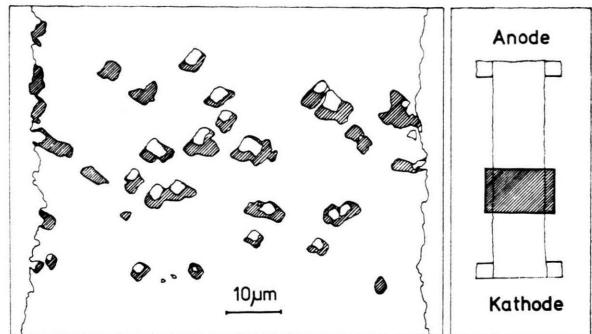


Abb. 4. Einseitigkeit des Löcherwachstums. Die Löcherumrisse zweier verschiedener Stadien des Löcherwachstums wurden übereinander gezeichnet. Der Flächenzuwachs ist schraffiert; er liegt vorwiegend auf der der Kathode zugewandten Seite der Löcher.

suchen mit epitaktischen Goldschichten gibt es Masseströme bis zu $8 \cdot 10^{21} \text{ Atome} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ und Massestromdivergenzen bis zu $2 \cdot 10^{26} \text{ Atome} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, entsprechend Raten der relativen Dichteabnahme von $3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Die dabei beobachtete ausgeprägte Löcherbildung dürfte gleichwohl nicht allein mit diesen hohen Werten, sondern auch mit der hohen Dichte an Gitterdefekten wie Zwillingen, Stapelfehlern und Versetzungen in den dünnen Schichten zu erklären sein. Insofern kann die Aussage von Oldham et al., daß Gold extrem resistent gegen Porenbildung sei, nur auf defektarme Goldproben bezogen werden. Untersuchungen über den Zusammenhang zwischen Defektstruktur und Löcherbildung beim Elektrotransport in epitaktischen Goldschichten sind in Vorbereitung.

Eine Besonderheit des Löcherwachstums ist in Abb. 4 dargestellt. Der Flächenzuwachs der Löcher liegt vorwiegend auf der der Kathode zugewandten Seite. Eine Einseitigkeit des Wachstums wurde auch bei Löchern in epitaktischen Silberschichten [11] und bei Hügeln auf einkristallinen Goldbändern [28] beobachtet. Der Zuwachs an den Hügeln liegt auf der Seite, von der her der Massestrom des Elektrotransports die Goldatome anliefert. Bei den Löchern in den epitaktischen Schichten liegt jedoch der Zuwachs auf der dem anliefernden Leerstellenstrom abgewandten Seite der Löcher. Warum die Leerstellen in den epitaktischen Schichten an dieser unerwarteten Stelle angelagert werden, und auf welchem Wege sie dorthin gelangen, bedarf noch einer Klärung.

Den Herren Professoren W. Buckel, F. Baumann, G. Frohberg und H. Wever danken wir für ihr Interesse an dieser Arbeit und hilfreiche Diskussionen. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft unter-

stützte die Durchführung der Untersuchungen durch Gewährung einer Sachbeihilfe, wofür an dieser Stelle besonders gedankt sei.

- [1] H. Wever, Elektro- und Thermotransport in Metallen, J. A. Barth, Leipzig 1973, Kap. IX-2.
- [2] F. M. d'Heurle u. R. Rosenberg, Physics of Thin Films **7**, 257 (1973).
- [3] L. Braun, Microelectron. Rel. **13**, 215 (1974).
- [4] I. A. Blech u. E. S. Meieran, J. Appl. Phys. **40**, 485 (1969); **43**, 762 (1972).
- [5] S. J. Horowitz u. I. A. Blech, Mater. Sci. Eng. **10**, 169 (1972).
- [6] B. J. Klein, J. Phys. F **3**, 691 (1973).
- [7] F. d'Heurle, u. I. Ames, Appl. Phys. Letters **16**, 80 (1970).
- [8] A. Gangulee u. F. M. d'Heurle, Thin Solid Films **16**, 227 (1973).
- [9] A. Gangulee u. F. M. d'Heurle, Thin Solid Films **25**, 317 (1975).
- [10] P. S. Ho u. L. D. Glowinski, Z. Naturforsch. **26a**, 32 (1971).
- [11] W. Kleinn, Dissertation, TH Hannover 1958.
- [12] W. Kleinn, Thin Solid Films **34**, 125 (1976).
- [13] F. Kohlrausch, Ann. Phys. (4) **1**, 132 (1900). Neuere Darstellungen siehe [14, 15, 16, 17].
- [14] J. A. Greenwood u. J. B. P. Williamson, Proc. Roy. Soc. A **246**, 13 (1958).
- [15] R. Holm, Electric Contacts, 4th Ed., Springer-Verlag, Berlin 1967.
- [16] D. R. Flynn u. M. E. O'Hagan, J. Res. NBS C **71**, 255 (1967).
- [17] P. Wyssmann, Phys. kondens. Materie **14**, 275 (1972).
- [18] M. J. Laubitz, Can. J. Phys. **47**, 2633 (1969).
- [19] W. Kleinn, zur Veröffentlichung vorgesehen.
- [20] Siehe z.B. J. S. Vermaak u. C. A. O. Henning, Phil. Mag. **22**, 269 (1970). — T. Schober, J. Appl. Phys. **40**, 4658 (1969).
- [21] H. Hübner, unveröffentlicht.
- [22] Siehe z. B. F. P. Bowden u. J. B. P. Williamson, Proc. Roy. Soc. A **246**, 1 (1958). — R. Holm, l. c. [15].
- [23] S. J. Horowitz u. I. A. Blech, J. Electronic Materials **4**, 1171 (1975).
- [24] I. A. Blech u. R. Rosenberg, J. Appl. Phys. **46**, 579 (1975).
- [25] D. Gupta, Phys. Rev. B **7**, 586 (1973).
- [26] H. Mehrer, Persönliche Mitteilung.
- [27] D. J. Oldham, J. A. Bleay u. D. A. Blackburn, Acta metallurgica **25**, 1345 (1977).
- [28] L. J. Gauckler, S. Hofmann u. F. Haessner, Acta metallurgica **23**, 1541 (1975).