

AlCrTaTiZrMo 高熵合金氮化物扩散 阻挡层的制备与表征

李荣斌^{1,2}, 李旻旭^{1,2}, 蒋春霞¹, 李炳毅¹, 李倩倩¹

(1.上海电机学院 材料学院, 上海 201306; 2.上海理工大学 材料科学与工程学院, 上海 200093)

摘要: **目的** 制备 15 nm 的 (AlCrTaTiZrMo)N 六元高熵合金氮化物薄膜, 并对其扩散阻挡性能进行表征。**方法** 使用直流磁控溅射设备在单晶硅上沉积 (AlCrTaTiZrMo)N 高熵合金氮化物薄膜, 然后在薄膜上沉积 150 nm 的 Cu, 形成 Cu/(AlCrTaTiZrMo)N/Si 结构。在 600 °C 下, 对该结构进行不同时间的退火处理, 使用 X 射线衍射仪 (XRD)、四探针测试仪 (FPP)、原子力显微镜 (AFM) 和场发射扫描电子显微镜 (FESEM) 研究薄膜成分及退火时间对薄膜组织结构、表面形貌、方块电阻的影响, 研究其扩散阻挡性。**结果** 高熵合金氮化物薄膜与基体 Si 和 Cu 的结合性较好。沉积态高熵合金氮化物薄膜为非晶结构, 表面光滑平整, 方块电阻阻值较低。在 600 °C 下经 1 h 退火后, 薄膜仍为非晶结构, 表面发生粗化。随着退火时间增加, 5 h 退火后, 结构中出现少量纳米晶, 大部分仍为非晶, 表面粗糙度增加。退火 7 h 后, 结构没有发生变化, 仍为非晶包裹纳米晶结构, Cu 表面生成部分岛状物, 方块电阻阻值仍然较低, 且无 Cu-Si 化合物生成, 证明 (AlCrTaTiZrMo)N 高熵合金氮化物薄膜在长时间退火处理后, 仍能保持良好的铜扩散阻挡性。**结论** 15 nm 的 (AlCrTaTiZrMo)N 高熵合金氮化物薄膜在 600 °C 下退火 7 h 后, 其非晶包裹纳米晶的结构能有效阻挡 Cu 的扩散, 表现出了优异的热稳定性与扩散阻挡性。

关键词: 高熵合金; 磁控溅射; 扩散阻挡层; Cu 互连; 退火; 薄膜

中图分类号: TG174.44 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2019)06-0125-05

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2019.06.013

Preparation and Characterization of AlCrTaTiZrMo-nitride Diffusion Barrier Layer

LI Rong-bin^{1,2}, LI Min-xu^{1,2}, JIANG Chun-xia¹, LI Bing-yi¹, LI Qian-qian¹

(1.School of Materials, Shanghai Dianji University, Shanghai 201306, China;

2.School of Material Science and Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

ABSTRACT: The work aims to prepare a 15 nm (AlCrTaTiZrMo)N senary high-entropy alloy nitride film and characterize the diffusion barrier properties of the film. The (AlCrTaTiZrMo)N high-entropy alloy nitride film was deposited on single crystal silicon by direct current magnetron sputtering equipment. 150 nm of Cu was deposited on the film to form a Cu/(AlCrTaTiZrMo)N/Si structure. The structure was then annealed at 600 °C for different time. X-ray diffractometry (XRD), four-point probe (FPP), atomic force microscopy (AFM) and field emission scanning electron microscopy (FESEM) were used to study the film compo-

收稿日期: 2018-07-20; 修订日期: 2018-09-28

Received: 2018-07-20; Revised: 2018-09-28

基金项目: 国家自然科学基金 (51671125); 上海市自然科学基金 (16ZR1412800)

Fund: Supported by the National Natural Science Foundation of China (51671125) and Natural Science Foundation of Shanghai (16ZR1412800)

作者简介: 李荣斌 (1969—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为高熵合金。邮箱: lirb@sdju.edu.cn

Biography: LI Rong-bin (1969—), Male, Doctor, Professor, Research focus: high entropy alloys. E-mail: lirb@sdju.edu.cn

sition and the effect of annealing time on the microstructure, surface morphology and sheet resistance of the film to evaluate the diffusion barrier properties. The film had a good adhesion to the substrates Si and Cu. The as-deposited film was amorphous and the surface was smooth and flat with a low value of sheet resistance. After annealed at 600 °C for 1 h, the film was still amorphous, but the surface became rough. With the increase of annealing time, some micro-nanocrystals appeared in the structure after annealing for 5 h, most of which were still amorphous, and the surface roughness increased. After annealing for 7 h, the structure was still amorphous and the nanocrystalline structure was encapsulated and some island-like grains were formed on the surface of Cu. The sheet resistance value was still low and no Cu-Si compound was formed. After annealing for long time, (AlCrTaTiZrMo)N high-entropy alloy nitride film still had good diffusion barrier properties on Cu. The amorphous inclusion nanocrystalline structure of 15 nm (AlCrTaTiZrMo)N high-entropy alloy nitride film after annealing at 600 °C after 7 h can effectively block the diffusion of Cu, thus showing excellent thermal stability and diffusion barrier performance after prolonged annealing.

KEY WORDS: high entropy alloy; magnetron sputtering; diffusion barrier; Cu interconnection; annealing; thin film

随着微电子领域对电路密度和RC延时要求的不断提高,半导体器件和电路的特征尺寸持续缩小,Cu作为新互连材料,已经代替铝被广泛使用,以此来减少因电容-电阻所产生的延迟问题^[1-2]。与传统的金属互连材料Al相比,Cu具有比Al低40%的电阻率,高2个数量级的抗电迁徙性能,更高的熔点和热传导系数。即采用Cu作为互连线材料,可大大提高电路的运算速度与可靠性,因此取代铝成为现今最重要的金属互连线材料^[3]。然而,Cu在低温(<200 °C)下极易和Si反应,生成Cu-Si化合物,使器件失效,从而影响器件的可靠性、稳定性和传输效率等^[4]。为了抑制Cu的快速扩散,需要在铜硅之间加入一层有效的扩散阻挡层(Diffusion Barrier),来防止Cu原子的扩散,加强元件的可靠程度^[5]。过渡金属氮化物薄膜,例如TaN和TiN,作为扩散阻挡材料被广泛使用,以阻止Cu的扩散以及增加界面的粘附性^[6]。一元金属氮化物各有其缺点:TaN因电阻率偏高,会增加电容-电阻延迟效应;TiN则容易形成柱状晶,提供快速扩散的通道,使Cu-Si发生交互扩散,从而降低扩散阻挡层的性能^[7]。为了满足下一代Cu互联纳米工艺的严格需求,近年来,三元甚至多元的氮化物阻挡系统已经被不断研制,以取代常规的TiN和TaN。如TaWN^[5]、TaSiN^[8]、Ru-Ti-N^[9]、TiMoN^[10]等,其非晶结构和晶格畸变减少了扩散通道,从而提高了扩散阻挡性能。

2004年,台湾清华大学材料系叶均蔚教授等人提出了新颖的合金设计概念。利用高混合熵的特点,将至少5种元素以等摩尔(或接近等摩尔)比例混合,每种主要元素所占的原子数分数从5%~35%不等,命名为高熵合金(HEAs)^[11]。高熵合金具有高强度、高硬度,以及良好的热稳定性、抗氧化性和耐蚀耐磨性,在众多领域都有着广泛的应用前景^[12]。在扩散阻挡领域,高熵合金薄膜会形成非晶结构和大晶格畸变,消除扩散通道,从而有效抑制原子的快速扩散,提供优异的扩散阻挡性能。特别是高熵合金氮化物

(HEANs),作为Cu互连扩散阻挡层,由于其高热稳定性和高扩散阻挡性,已受到广泛关注^[13]。

高熵合金氮化物薄膜相关的研究,如Chang Shou-yi^[14]等报道的(AlCrTaTiZrRu)N_{0.5}在800 °C退火30 min的情况下,能有效阻止Cu的扩散,Chen Dao-sheng等^[15]制备的(AlCrTaTiZr)N在900 °C下退火30 min后,仍能有效地阻止Cu和Si的相互扩散。然而微电子器件在实际使用过程中,最高温度不会超过600 °C^[16]。国内外关于扩散阻挡层的研究主要集中在最高失效温度,在较低温度下退火时间对扩散阻挡性能的影响还未见相关报道。文中采用反应磁控溅射法制备Cu/(AlCrTaTiZrMo)N/Si复合结构,与Cu/Si结构进行对比,研究不同退火时间下高熵合金氮化物阻挡层的扩散阻挡性与热稳定性。

1 实验

1.1 高熵合金氮化物薄膜的制备

采用德国Teer公司闭合场非平衡磁控溅射离子镀设备制备高熵合金薄膜,实验所用靶材为AlCrTaTiZrMo六元合金靶,各元素含量接近等摩尔比,纯度均为99.9%。用n型(100)Si片作为衬底,在丙酮和无水乙醇中先后对基片进行超声波清洗各10 min,干燥后迅速放入溅射室内。将溅射室抽真空至 2.6×10^{-3} Pa,电流为1 A,偏压为-100 V,并通入Ar与N₂的混合气体, $V(N_2)/(V(Ar)+V(N_2))=20\%$ 。实验开始前,先对基体进行预溅射10 min,以清除表面杂质,之后溅射8 min在基体表面沉积15 nm的HEAN。在不打破真空的状态下,在此基础上溅射30 min沉积150 nm的Cu膜,从而获得Cu/HEAN/Si复合结构。在同样的工艺条件下制备Cu/Si结构,用作对比实验。

1.2 测试分析

为了验证热制备薄膜的稳定性和扩散行为,用

YGS-120610 管式退火炉进行退火,退火温度为 600 ℃,退火时间分别为 1、3、5、7 h。用 Bruker-D8 Advance X 射线衍射仪(XRD)分析薄膜的物相结构(CuK α 、40 kV、40 mA),用 4D MODEL 280 四探针测试仪(FPP)测试样品方块电阻,用 Bruker MultiMode 8 SPM 原子力显微镜(AFM)检测不同退火时间后样品的表面粗糙度及三维形貌,用 Hitachi S-4800 场发射扫描电子显微镜(FESEM)观测样品的表面形貌。

2 结果与讨论

2.1 退火时间对样品物相结构的影响

样品 Cu/HEAN/Si 及 HEAN/Si 在退火前和不同退火时间后的 XRD 图谱如图 1 和图 2 所示。图 1 中衍射角度 43.4°和 50.6°分别对应 Cu(FCC)结构的(111)、(200)衍射峰。(111)衍射峰强度明显较其他平面高,显示 Cu 具有(111)择优取向。当退火时间为 1 h 时,衍射峰强度增加,且变得尖锐,这是由于 Cu 膜的晶粒长大所导致^[14]。随着退火时间的增加,当退火时间分别为 3、5、7 h 时,衍射图谱未发生明显变化,未发现铜硅或其他化合物信号。在 7 h 退火时间下,高熵合金氮化物薄膜仍能保持良好的扩散阻挡性。在图 2 中,当薄膜为沉积态时,无任何衍射峰,仅有宽且低的馒头峰,表明薄膜此时为非晶结构。非晶结构没有晶界,能够有效地消除快速扩散的通道,从而达到阻挡作用。相比单晶结构昂贵的生产费用,非晶薄膜成为了阻挡层的首选材料^[17]。当退火时间为 1 h 时,仍然无任何衍射峰出现。随着退火时间的增加,当退火时间为 5、7 h 时,37°的衍射峰变得更加明显。同时在 62°出现了新的衍射峰,其角度值见表 1。同 FCC 结构的 AlN、CrN、TaN、TiN、ZrN、Mo₂N 在(111)

和(220)位置的平均衍射角十分接近,表明 HEAN 薄膜形成了有着简单 FCC 结构的混合固溶体。然而其衍射峰仍较宽,表明薄膜内部存在非晶和 FCC 纳米晶的混合结构^[2,15]。

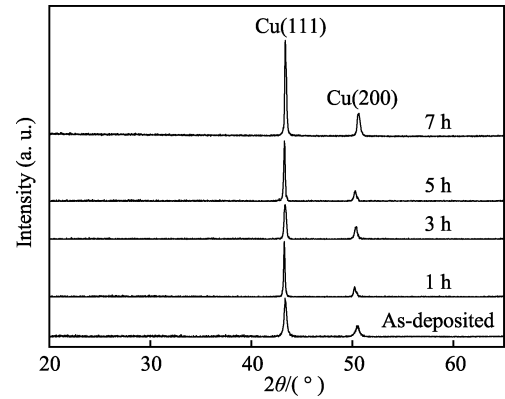


图 1 不同退火时间后 Cu/HEAN/Si 的 XRD 图谱
Fig.1 XRD patterns of Cu/HEAN/Si for different annealing time

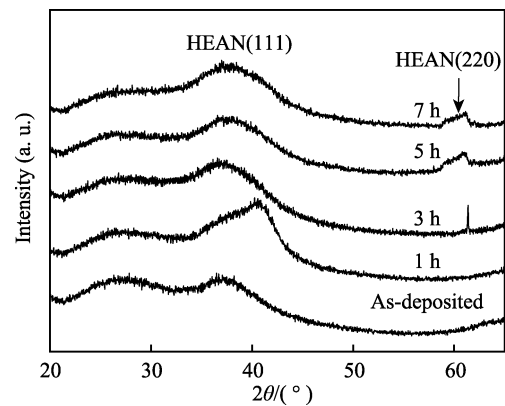


图 2 不同退火时间后 HEAN/Si 的 XRD 图谱
Fig.2 XRD patterns of HEAN/Si for different annealing time

表 1 FCC 结构的 Al、Cr、Ta、Ti、Zr、Mo 氮化物及 AlCrTaTiZrMo 氮化物在(111)及(220)晶面各自的衍射角度
Tab.1 Diffraction angle of (111) and (220) lattice planes of individual Al, Cr, Ta, Ti, Zr, Mo nitrides and mixed AlCrTaTiZr nitride in FCC structure

Nitride	AlN	CrN	TaN	TiN	ZrN	Mo ₂ N	HEAN
JCPDS card No.	251495	110065	491283	381420	020956	251366	(Average)
(111)	37.78°	37.53°	35.83°	36.66°	33.93°	37.37°	36.51°
(220)	63.83°	63.54°	60.25°	61.81°	56.78°	63.11°	61.55°

2.2 退火时间对方块电阻的影响

通过四探针测试仪(FPP)测得样品 Cu/HEAN/Si 和 Cu/Si 的方块电阻在 600 ℃下随退火时间的变化曲线如图 3 所示。由于电子运动过程中的散射与电阻密切相关,薄膜中的缺陷、原子空位、晶界等微观结构会成为电子发生强烈散射的势阱,因此薄膜电阻对薄膜的微结构十分敏感^[4]。

沉积态时,Cu/Si 薄膜的方块电阻为 0.178 Ω /sq,

Cu/HEAN/Si 薄膜的方块电阻为 0.163 Ω /sq,两者较为接近。随着退火时间的增加,当退火时间为 1、3 h 时,相较于沉积态,两者的方块电阻有一定程度的降低。这是由于退火导致晶粒长大,缺陷密度降低所致。随着退火时间的增加,当退火时间为 5 h 时,对于没有阻挡层的 Cu/Si,表面电阻出现些微上升,这可能是由于已经有少量的 Si 扩散进 Cu。当退火时间为 7 h 时,其阻值剧烈上升,达到 1.52 Ω /sq。证明在 600 ℃下退火 7 h 后,Cu 表面产生了高阻态的

Cu-Si 相, 从而导致膜电阻发生剧变。对于 Cu/HEAN/Si, 当退火时间为 5、7 h 时, 仍能保持较低的阻值,

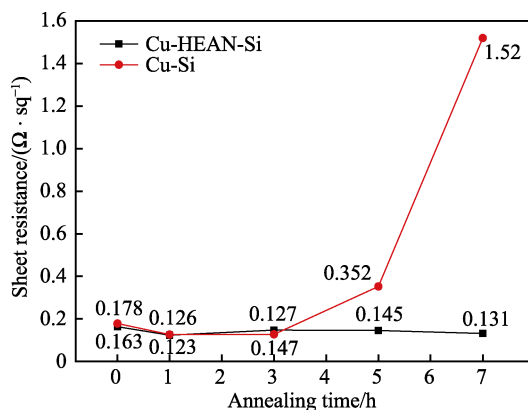


图3 在不同退火时间下 Cu/HEAN/Si 和 Cu/Si 的方块电阻变化曲线

Fig.3 Sheet resistance variation curves of Cu/HEAN/Si and Cu/Si for different annealing time

这和 XRD 的结果相一致, 表现出了较高的扩散阻挡性。

2.3 退火时间对薄膜表面的影响

AFM 图像被用来分析样品在不同退火时间下表面形貌的变化过程。通过在退火时阻挡层上 Cu 发生团聚的程度和表面粗糙度来评估界面质量的好坏。样品在退火前及不同退火时间下的 3D 表面形貌如图 4 所示。可以看出, 在退火前, 沉积态 Cu 薄膜表面晶粒细小、光滑且致密, 表现出了较好的润湿性, 几乎看不见团聚物, 表明 Cu 和阻挡层间有着较好的结合性。当退火时间为 1 h 时, 薄膜表面出现小部分凸起, 粗糙度略微增加。随着退火时间的增加, 晶粒长大, 凸起逐渐变多。当退火时间为 7 h 时, 长时间退火使 Cu 发生大面积的岛状团聚, 然而表面无微孔产生, 证明 Cu 表面没有被破坏, 无 Si 进入, 这与 XRD 和 FPP 的结论相一致。

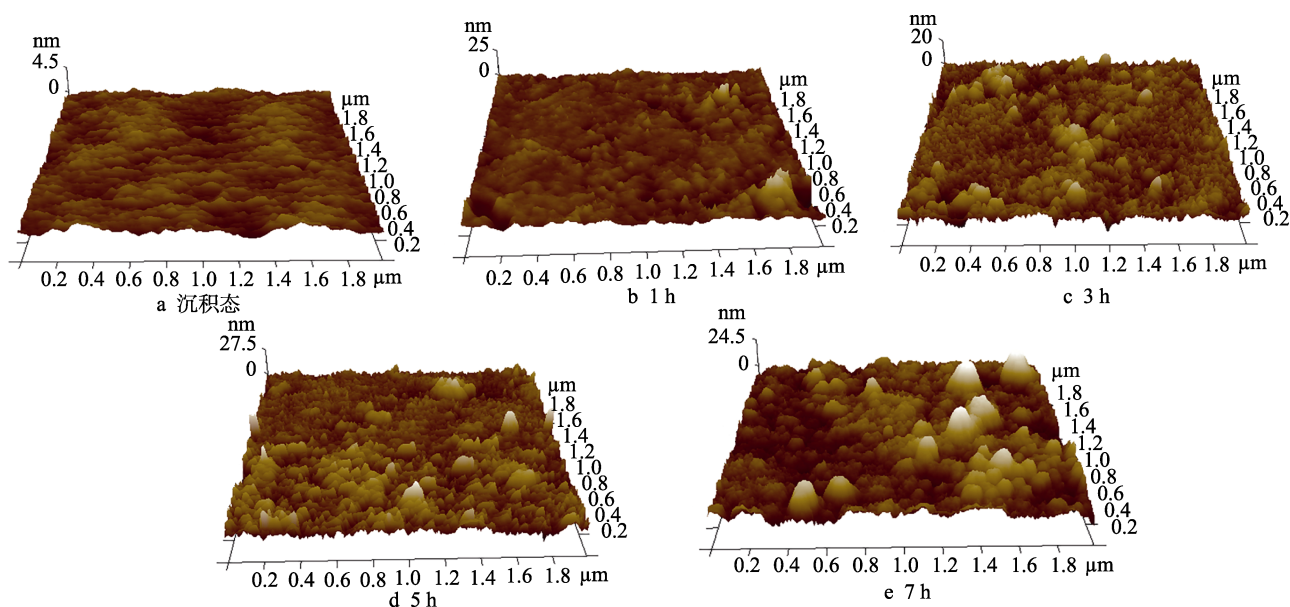


图4 Cu/HEAN/Si 样品沉积态及不同退火时间下的 AFM 表面形貌

Fig.4 AFM surface morphologies of (a) as-deposited and (b) 1 h, (c) 3 h, (d) 5 h, and (e) 7 h annealed Cu/HEAN/Si film stacks

FESEM 被用来表征样品在退火前后的表面形貌, 了解薄膜在退火过程中微结构发生的改变, 进而探寻其在退火过程中的热稳定性。样品沉积态及在不同退火时间下的表面形貌如图 5 所示。由图 5a 可见, 在沉积态时, 样品表面致密光滑、连续平整, 几乎没有缺陷, 晶粒细小且均匀。1 h 退火后, 尽管 Cu 膜表面产生了一些小颗粒, 但仍然保持了连续性。随着退火时间的增加 (图 5c、d), 薄膜表面的颗粒状物质增加。由上述 XRD 结果可知, 并未产生 Cu-Si 化合物。当退火时间为 7 h 时, 表面颗粒变大, 形成了一系列岛状物, 表面变得粗糙不平, 与 AFM 的结果相一致。这是由于 Cu 的再结晶温度范围为 400~500 °C, 在 600 °C 长时间退火时, Cu 晶粒长大, 导致了 Cu 的团聚^[18]。

结合 XRD 和 AFM 的结果可知, 在 600 °C 长时间退火下, 该体系依然能保持薄膜的完整性与扩散阻挡性。

综上所述, (AlCrTaTiZrMo)N 扩散阻挡层在长时间退火环境下展现出了良好的扩散阻挡能力与热稳定性。其优异的扩散阻挡性归因于以下几点: 1) 多元合金导致混合熵变化, 降低了体系的自由能, 在未退火状态或高温退火后的薄膜内, 均可得到元素任意排列的结晶或非晶固溶体结构, 而非金属化合物; 2) 多元合金中, 由于各种原子的尺寸不同, 导致晶格严重扭曲, 使原子移动活化能上升, 降低了原子扩散速率; 3) 由纳米晶及周围所环绕的非晶所构成的纳米复合结构, 无晶界提供原子快速扩散的路径, 提高了扩散阻挡能力^[19]。

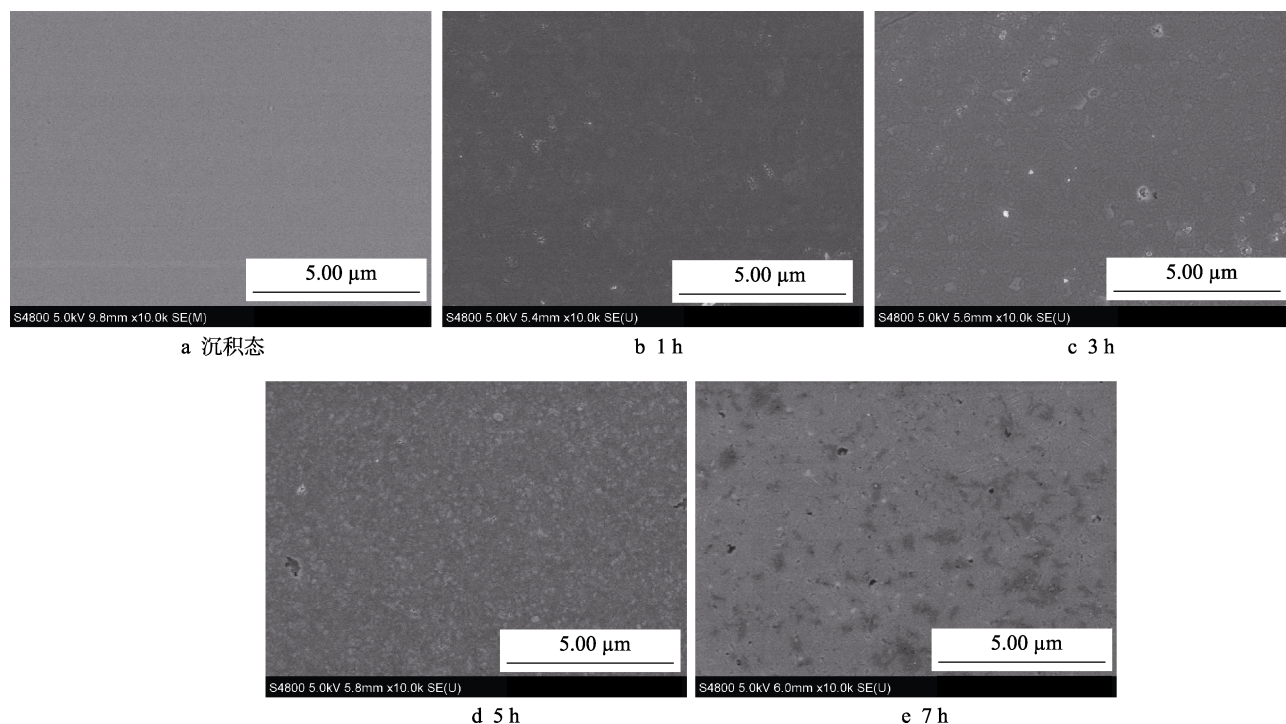


图 5 Cu/HEAN/Si 样品沉积态及不同退火时间下的 FESEM 表面形貌

Fig.5 FESEM surface morphologies of (a) as-deposited and (b) 1 h, (c) 3 h, (d) 5 h, and (e) 7 h annealed Cu/HEAN/Si film stacks

3 结论

利用直流磁控溅射法在单晶 Si 衬底上制备 15 nm 厚的 AlCrTaTiZrMo 氮化物薄膜作为 Cu 互连的阻挡层材料,在 600 °C 下进行不同时间的退火处理,并对其晶体结构、方块电阻、表面形貌进行表征分析,研究其热稳定性与扩散阻挡性。结果表明:

1) 沉积态时,薄膜为非晶结构。在 600 °C 退火处理 5 h 后,阻挡层内部出现了少量 FCC 结构的纳米晶,大部分仍呈现非晶态。当退火 7 h 后,薄膜结构未发生改变,无 Cu-Si 化合物和其他金属间化合物生成,表面无孔洞和块状团聚,且方块电阻仍然保持较低阻值,证明其仍能保持良好的扩散阻挡性与结构稳定性。

2) 加入不同原子尺寸的多主元素产生的大晶格畸变以及无扩散通道的纳米复合结构是提供良好阻挡性能的主要因素。

3) 该高熵合金扩散阻挡层在微电子领域 Cu 互连中具有很好的应用前景。

参考文献:

- [1] TSAI M H, YEH J W, GAN J Y. Diffusion barrier properties of AlMoNbSiTaTiVZr high-entropy alloy layer between copper and silicon[J]. Thin solid films, 2008, 516 (16): 5527-5530.
- [2] CHANG S Y, CHEN M K. High Thermal stability of

- AlCrTaTiZr nitride film as diffusion barrier for copper metallization[J]. Thin solid films, 2009, 517(17): 4961-4965.
- [3] 李幼真, 周继承, 陈海波. 集成电路 Cu 金属化中的扩散阻挡层[J]. 材料导报, 2007, 21(5): 17-20.
- LI You-zhen, ZHOU Ji-cheng, CHEN Hai-bo. Diffusion barrier of Cu metallization in ULSI[J]. Materials review, 2007, 21(5): 17-20.
- [4] 陈剑辉, 刘保亭, 李晓红, 等. 非晶 Ni-Al-N 薄膜用作 Cu 互连阻挡层的研究[J]. 真空科学与技术学报, 2011, 31(1): 23-26.
- CHEN Jian-hui, LIU Bao-ting, LI Xiao-hong, et al. Growth of Ni-Al-N diffusion barrier films in Cu metallization[J]. Chinese journal of vacuum science and technology, 2011, 31(1): 23-26.
- [5] LIU Y, SONG S, MAO D, et al. Diffusion barrier performance of reactively sputtered Ta-W-N between Cu and Si[J]. Microelectronic engineering, 2004, 75(3): 309-315.
- [6] KIM D J, KIM Y T, PARK J W. Nanostructured Ta-Si-N diffusion barriers for Cu metallization[J]. Journal of applied physics, 1997, 82(10): 4847-4851.
- [7] KUO Y L, LEE C, LIN J C, et al. Evaluation of the thermal stability of reactively sputtered (Ti,Zr)N_x nano-thin films as diffusion barriers between Cu and silicon[J]. Thin solid films, 2005, 484(1): 265-271.
- [8] CHENG H Y, CHENG Y C, LEE C M, et al. Thermal stability and electrical resistivity of SiTa_xN_x heating layer for phase-change memories[J]. Journal of the electrochemical society, 2006, 153(7): G685-G691.

(下转第 166 页)

- national journal of photoenergy, 2014(3): 829284.
- [74] 佚名. 旌宇显卡散热器配备类金刚石碳薄膜[J]. 超硬材料工程, 2009, 21(1): 4.
YI Ming. Diamond-like carbon film equipped with Jingyu display card radiator[J]. Superhard material engineering, 2009, 21(1): 4.
- [75] WANG Lei, WRIGHT C D, AZIZ M M, et al. Optimisation of readout performance of phase-change probe memory in terms of capping layer and probe tip[J]. Electronic materials letters, 2014, 10(6): 1045-1049.
- [76] LIU Wei-li, BALANDIN A A. Temperature dependence of thermal conductivity of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ thin films measured by the differential 3ω technique[J]. Applied physics letters, 2004, 85(22): 5230-5232.
- [77] BOGNER M, HOFER A, BENSTETTER G, et al. Differential 3ω method for measuring thermal conductivity of AlN and Si_3N_4 thin films[J]. Thin solid films, 2015, 591: 267-270.
- [78] BOGNER M, BENSTETTER G, FU Yong-qing. Cross-and in-plane thermal conductivity of AlN thin films measured using differential 3-omega method[J]. Surface & coatings technology, 2017, 320: 91-96.
- [79] MORIDI A, ZHANG Liang-chi, LIU Wei-dong, et al. Characterisation of high thermal conductivity thin-film substrate systems and their interface thermal resistance[J]. Surface & coatings technology, 2018, 334: 233-242.
- [80] YAN Ru-sen, SIMPSON J R, BERTOLAZZI S, et al. Thermal conductivity of monolayer molybdenum disulfide obtained from temperature-dependent Raman spectroscopy[J]. ACS nano, 2014, 8(1): 986-993.
- [81] KANG J G, HONG K S, YANG H S. Studies of thermal conductivity of $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ and diamond-like carbon films and the interfacial effect[J]. Japanese journal of applied physics, 2010, 49(2): 1-4.
- [82] 张武康, 陈小源, 李东栋, 等. 薄膜热导率测量方法研究进展[J]. 功能材料, 2017, 48(6): 6034-6041.
ZHANG Wu-kang, CHEN Xiao-yuan, LI Dong-dong, et al. Research progress of measurement for the thermal conductivity of thin films[J]. Functional materials, 2017, 48(6): 6034-6041.
- [83] MORAES V, RIEDL H, RACHBAUER R, et al. Thermal conductivity and mechanical properties of AlN -based thin films[J]. Journal of applied physics, 2016, 119(22): 225304.
- [84] ALAILI K, ORDONEZ-MIRANDA J, EZZAHRI Y. Effective interface thermal resistance and thermal conductivity of dielectric nanolayers[J]. International journal of thermal sciences, 2018, 131(7): 40-47.
- [85] AISSA K A, ACHOUR A, CAMUS J, et al. Comparison of the structural properties and residual stress of AlN films deposited by DC magnetron sputtering and high power impulse magnetron sputtering at different working pressure[J]. Thin solid films, 2014, 550(1): 264-267.
- (上接第 129 页)
- [9] KWON S H, KWON O K, MIN J S, et al. Plasma-enhanced atomic layer deposition of Ru-TiN thin films for copper diffusion barrier metals[J]. Journal of the electrochemical society, 2006, 153(6): G578-G581.
- [10] MAJUMDER P, TAKOUDIS C. Thermal stability of Ti/Mo and Ti/MoN nanostructures for barrier applications in Cu interconnects[J]. Nanotechnology, 2008, 19(20): 205202.
- [11] YEH J W, CHEN S K, LIN S J, et al. Nanostructured high-entropy alloys with multiple principal elements: Novel alloy design concepts and outcomes[J]. Advanced engineering materials, 2004, 6(5): 299-303.
- [12] TANG W Y, CHUANG M H, CHEN H Y, et al. Microstructure and mechanical performance of new $\text{Al}_{0.5}\text{CrFe}_{1.5}\text{-MnNi}_{0.5}$ high-entropy alloys improved by plasma nitriding[J]. Surface & Coatings technology, 2010, 204(20): 3118-3124.
- [13] 任波, 赵瑞峰, 刘忠侠. 高熵合金氮化物薄膜的研究进展[J]. 材料导报, 2017, 31(11): 44-50.
REN Bo, ZHAO Rui-feng, LIU Zhong-xia. Advances in nitride films of high entropy alloy[J]. Materials review, 2017, 31(11): 44-50.
- [14] CHANG S Y, WANG C Y, LI C E, et al. 5 nm-thick (AlCrTaTiZrRu) $\text{N}_{0.5}$ multi-component barrier layer with high diffusion resistance for Cu interconnects[J]. Nano-science & nanotechnology letters, 2011, 3(2): 289-293.
- [15] CHEN D S, CHEN M K, CHANG S Y. Multiprincipal-element AlCrTaTiZr -nitride nanocomposite film of extremely high thermal stability as diffusion barrier for Cu metallization[J]. ECS transactions, 2014, 19(2): G37- G42.
- [16] CHEN J H, HUO J C, DAI X H, et al. Barrier properties of ultrathin amorphous Al-Ni alloy film in Cu/Si or Cu/SiO_2 contact system[J]. Physica status solidi, 2017, 214(2): 1600522.
- [17] MENG Y, SONG Z X, QIAN D, et al. Thermal stability of RuZr alloy thin films as the diffusion barrier in Cu metallization[J]. Journal of alloys and compounds, 2014, 588: 461-464.
- [18] ASGARY S, HANTEHZADEH M R, GHORANNEVISS M, et al. Thermal stability of amorphous tungsten/tungsten nitride synthesis using HFCVD as a diffusion barrier for copper[J]. Applied physics A, 2016, 122(5): 1-10.
- [19] CHANG S Y, CHEN D S. 10-nm-thick quinary (AlCrTaTiZr) N film as effective diffusion barrier for Cu interconnects at $900\text{ }^\circ\text{C}$ [J]. Applied physics letters, 2009, 94 (23): 222.