

銅ナノ薄膜界面における破壊の 透過電子顕微鏡その場観察

京都大学

○澄川貴志

京都大学[院]

中野拓也

京都大学

北村隆行

In-situ TEM observation on Fracture at Nanoscale Copper film Interface

Takashi SUMIGAWA, Takuya NAKANO and Takayuki KITAMURA

1 緒 言

薄膜の積層で作製される電子デバイスは、ナノサイズにまで微細化が進んでおり、その内部には、多くの金属/非金属異材界面が存在する。この界面に存在する応力集中部は、き裂の発生活動となる。マクロ材の場合、周囲の塑性変形を考慮に入れた応力場を用いて、そのき裂発生挙動を記述できることが知られている。しかし、材料寸法がナノオーダーになると、マクロ材とは異なる機械特性を示す。このため、異材界面でのき裂発生挙動もマクロ材とは大きく異なる可能性があるが、その詳細はこれまで明らかにされていない。

本研究では、透過型電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) による観察が可能なナノサイズの曲げ変形試験片を設計・作製し、異材界面近傍における塑性変形および界面き裂の発生・伝播挙動について議論する。

2 実験方法

供試材は、単結晶シリコン (Si) (111) 基板上に銅 (Cu) 及び窒化シリコン (SiN) を電子ビーム蒸着により順次堆積させた多層薄膜である。観察対象領域は Cu 薄膜および Cu/Si 界面である。

本研究では、チャッキング等の簡便さを考慮し、カンチレバー試験片を用いた曲げ変形試験を採用する (図 1(a)). しかし、透過観察のためには、試験片厚さを 100 nm 程度にする必要があり、曲げ試験では、圧縮領域での座屈が懸念される。そこで、曲げ変形時のカンチレバー中立面を下部に配置すると同時に、圧縮部の幅を厚くすることを考え、逆 T 型断面を採用する (図 1(b)). さらに、薄膜中央に貫通スリットを導入して薄片化部上部には引張り応力のみが生じるように工夫し (図 1(c)), カンチレバー先端には負荷のためのブロックを設ける。最終的に、図 1(d) に示す試験片概念を決定した。この試験片では、試験観察部の変形は、下方と先端のブロック部に拘束されるため、試験観察部にき裂が発生した場合、瞬時には破壊せず、その様子を詳細に観察することができる。

試験片は、FIB 加工装置を用いて作製する。図 2 は、作製した試験片の明視野観察像および寸法を示す。異材界面の位置と形状を明確に特定でき、Cu 薄膜内部において、中央付近に横方向に伸びる結晶粒界が存在し、試験観察部の Cu 薄膜が二つの粗大結晶粒で構成されていることがわかる。以降、上部に存在する結晶粒を結晶粒 A、下部に存在する結晶粒を結晶粒 B とそれぞれ呼称する。

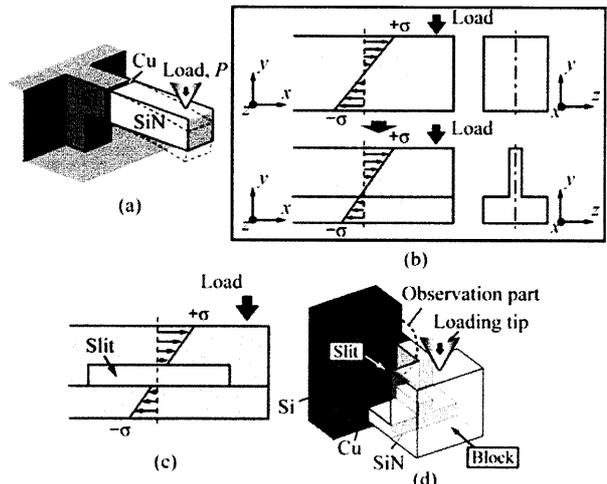


Fig. 1 (a) Bending test for cantilever specimen, (b), (c) schematic illustrations of stress distribution of specimen, and (d) configuration of specimen.

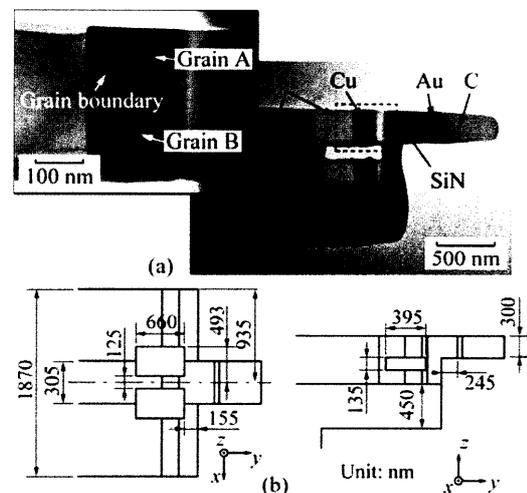


Fig. 2 (a) TEM image and (b) size of the specimen.

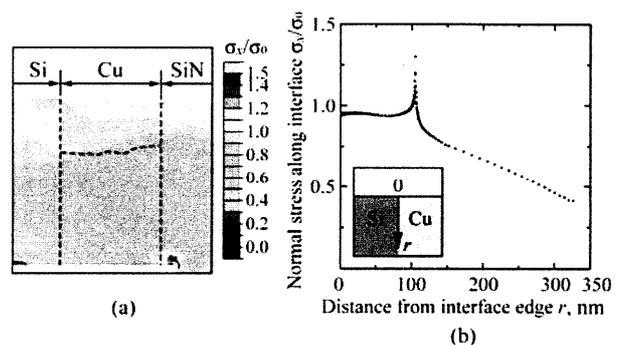


Fig. 3 (a) Contour map of σ_x , and (b) distribution of σ_x along the Cu/Si interface configuration of the specimen.

図3は、試験片に対する弾性有限要素法 (Finite element method: FEM) 解析より得られた界面垂直応力 σ_x のコンター図および Cu/Si 界面に沿った分布を示す。結晶粒 A および B については、透過回折像より得られた結晶方位をもとに、弾性直交異方性を考慮して解析を行っている。試験観察部は、引張応力状態となっており、圧縮応力場は存在しない。また、結晶粒界と界面が会合する部位 ($r \approx 100$ nm) において、銅薄膜内の二つの結晶粒の変形異方性の差に起因した応力集中が生じている。

負荷実験には、TEM (JEOL: JEM-2100, 加速電圧 200 kV) 内に挿入可能な微小負荷装置を用いる。本装置は、ピエゾで駆動されるステージと、荷重センサ (荷重精度 $\pm 0.1 \mu\text{N}$) を背面に具備するダイヤモンド圧子で構成される。負荷実験におけるステージの移動速度は 10 nm/s である。

本試験では、Cu 薄膜内の塑性変形を特定するために、予め設定した微小な荷重値 ($= P_{\text{max}}$) まで負荷を与えた後、一旦除荷を行う。除荷後の Cu 薄膜を観察し、その塑性変形領域を特定する。続いて、 P_{max} を数 μN 大きくして再度負荷を行い、その後除荷と透過観察を実施する。この操作を試験片が破壊するまで繰り返し、Cu 薄膜内で塑性変形が進行する過程を観察する。

3 結果および考察

試験開始後、 $P = 110.5 \mu\text{N}$ において荷重が急減した (図 4 (a))。図 4(b) は、この荷重急減点前後の明視野観察像を示す。荷重の急減と同時に、試験片は Cu/Si 界面に沿って全面破断する。

図 5 は、(a) 試験前、(b) $P_{\text{max}} = 13 \mu\text{N}$ 、(c) $P_{\text{max}} = 89 \mu\text{N}$ 、および、(d) $P_{\text{max}} = 105 \mu\text{N}$ の除荷後における Cu 薄膜近傍の明視野像をそれぞれ示す。負荷開始前および $P_{\text{max}} = 13 \mu\text{N}$ の除荷後には、Cu 薄膜内に目立った陰影は見受けられない。 $P_{\text{max}} = 89 \mu\text{N}$ の除荷後の像では、結晶粒 A 内部の Cu/Si 界面近傍領域に塑性変形を示す陰影が生じており、これは塑性変形の発生を示している。尚、このとき結晶粒 B に同様の陰影は見られない。陰影は、 $P_{\text{max}} = 23 \mu\text{N}$ の除荷後に初めて観察された。塑性変形がミーゼスの降伏条件に従って発生するものと仮定すると、平均応力として約 450 MPa が得られる。

$P = 94.6 \mu\text{N}$ において、結晶粒 A 内の陰影が瞬時に濃くなる様子が確認された。その直後、結晶粒界と Cu/Si 界面との会合部において、Si 基板内に局所集中したコントラストが現れ、瞬時に下方に移動し、停滞する様子が確認された (図 6)。停滞時のコントラストの中心位置は、結晶粒界から約 45 nm ($r \approx 145$ nm) である。このとき、コントラストに隣接する結晶粒 B では、塑性変形領域の発生は見られない。その後、完全に除荷を行うと、このコントラストは消失する。その後、再び負荷を与えると、同位置で局所ひずみコントラストが発生し、一つ前の負荷時の最大荷重 110.5 μN において Cu/Si 界面は全面破断に至った。このときも結晶粒 B では塑性変形は現れない。つまり、このコントラストは、Cu/Si 界面上に存在する

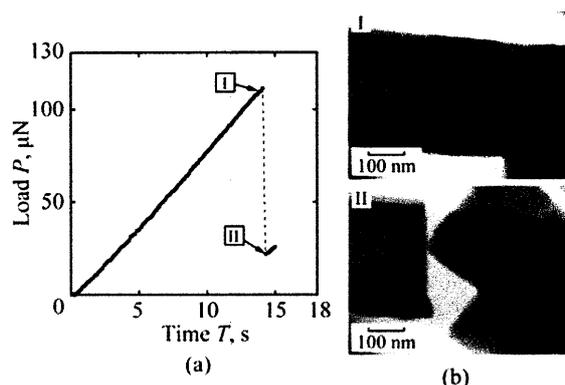


Fig. 4 (a) Load-time curve, and (b) TEM images before and after the interfacial fracture.

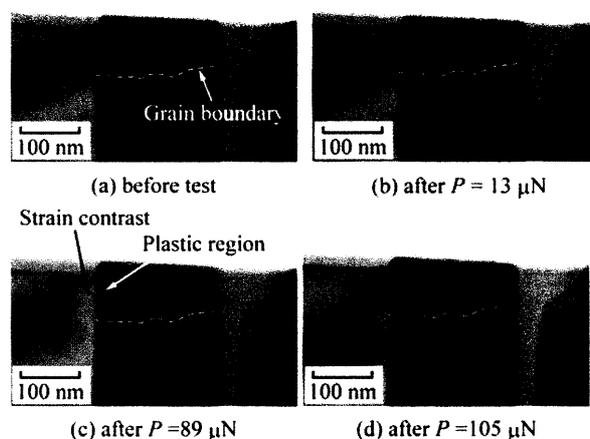


Fig. 5 Expansion of plastic region in the Cu film.

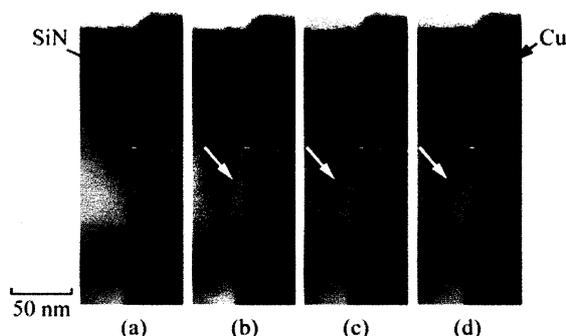


Fig. 6 Development of local strain contrast of the Si substrate along the Cu/Si interface.

弾性ひずみの集中源に起因している。このような局所的なひずみコントラストは、開口負荷を受けるき裂先端近傍において観察されている¹⁾。本結果は、Cu/Si 界面と結晶粒界の会合部を起点として界面き裂が発生・伝ばし、全面破壊に至ったことを示している。本試験片では結晶粒 A のみが塑性変形を行うため、結晶粒界と Cu/Si 界面との会合部では、大きなひずみのミスマッチが生じる。 $P = 94.6 \mu\text{N}$ で結晶粒 A が突然大きな塑性変形を行ったことがきっかけとなってひずみのミスマッチが急増し、界面き裂の発生および進展に至ったものと考えられる。

参考文献

- 1) Greaf M.D. and Clarke D.R., Ultramicroscopy, 49, 354 (1993).