

文章编号: 1004-0609(2004)08-1281-05

多晶铜膜纳米压入蠕变性能^①

王 飞, 徐可为

(西安交通大学 金属材料强度国家重点实验室, 西安 710049)

摘 要: 在 JGP560V 磁控溅射镀膜设备上镀制多晶铜膜, 利用纳米压入技术测量了其室温下的蠕变性能。结果表明: 由于不同加载方式下, 材料加工硬化程度的不同造成了应力指数的差异, 因而, 不同加载方式对测得的铜膜蠕变应力指数有比较大的影响; 由于材料在高载荷时在压头下端产生更多的位错, 阻碍了压头的压入, 使蠕变率降低, 因而, 随着保载载荷的升高, 蠕变应力指数变大。

关键词: 纳米压入; 蠕变; 残余应力; 应力指数

中图分类号: TB 383

文献标识码: A

Mechanisms of polycrystalline Cu thin films during nanoindentation creep

WANG Fei, XU Ke-wei

(State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials,
Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Two creep experiments were conducted on polycrystalline Cu thin films with nanoindentation instrument. The thin films were deposited by magnetron sputtering technique. The results show that the loading modes have great effect on the nanoindentation creep properties. The changes of stress exponent depend on the rate of work hardening under different loading conditions. And with increasing holding load, the stress exponents increase under both two loading modes because of many accumulated dislocations under the indenter tip, which reduces the creep rate for the indenter and makes it difficult to penetrate further.

Key words: nanoindentation; creep; residual stress; stress exponent

随着集成电路的发展, 铜膜以其低电阻率、低电迁移的特性而逐渐取代铝膜成为集成电路的引线材料, 因此, 对铜膜材料可靠性的要求越来越高。目前, 对于铜互连的研究主要集中在薄膜制备技术等方面, 而蠕变对集成电路可靠性有很大影响却鲜有报道。以往材料的蠕变性能多采用传统测试手段^[1, 2], 但薄膜材料因其尺寸上的局限性, 使其难以应用传统材料来测量其力学性能。纳米压入技术的日益成熟为薄膜力学性能的研究开辟了一条新途径, 对研究薄膜材料的室温蠕变行为提供了一个有

效的测试手段^[3, 4]。

利用纳米压入法测量材料蠕变性能的方法主要为恒加载速率法 (CRL)^[5]、压入载荷松弛法 (ILR)^[6]、恒定载荷法^[7, 8]、恒加载速率/载荷法^[8]等。以往对铜蠕变性能的研究主要集中在块体材料上。近年来, 一些学者应用压入法研究块体材料的蠕变性能^[9-11], 但利用纳米压入技术对金属薄膜材料室温蠕变性能, 尤其是纳米压入蠕变的基本力学行为的研究却很少。

本文作者利用磁控溅射技术在硅片上镀制多晶

① 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(59931010)

收稿日期: 2003-12-24; 修订日期: 2004-03-29

作者简介: 王 飞(1976-), 男, 博士研究生。

通讯作者: 徐可为, 教授, 博士; 电话: 029-82663126; E-mail: hping@mailst.xjtu.edu.cn

铜膜,并测量了用相同工艺镀制的铜膜在室温下纳米压入蠕变性能。研究发现,不同加载方式下得到铜膜的蠕变应力指数有很大的不同,并且随着保载载荷的升高,铜膜的蠕变应力指数呈规律性变化。

1 实验

1.1 材料

实验选用沉积态和退火态两种铜膜,经 JGP560V 磁控溅射镀膜设备镀制在单晶硅上制成试样,靶材纯度大于 99.99%。镀膜前,硅片经超声清洗,为了防止铜、硅间的扩散,在硅片上先镀上一层 100 nm 的 TaN 阻挡层,通过 SEM 测得铜膜的厚度约为 3 μm 。

1.2 纳米压入

纳米压入实验使用的是 MTS 公司的 Nano indenterXP 型纳米压入仪, Berkovich 三棱锥压头,压头尖端约为 100 nm,载荷压力和位移精度分别为 75 nN 和 0.1 nm。该仪器配有连续柔性测量装置 (CSM),在压入过程中可以连续测得柔度值,从而获得每个位移点的硬度和弹性模量,并可通过一次压入实验得到试样硬度随深度的变化。实验在室温和空气环境下进行。硬度由式 (1) 给出。

$$H = \frac{P}{A} \quad (1)$$

蠕变实验采用两种加载方式: 1) 最大载荷分别选取 1.5 mN, 3 mN 和 6 mN (方式 1), 当载荷达到最大载荷时,保载 60 s,然后卸载,每个载荷下都重复测试 5 个点。图 1(a) 为最大载荷为 1.5 mN 时,纳米压入蠕变实验中载荷和位移随时间的变化曲线。2) 加载见图 1(b) (方式 2),压头在 3 个保载载荷下均在原位压入。当载荷达到 1.5 mN 时保载 60 s,之后卸载,接着在原位加载到 3 mN,再保持 60 s,在载荷为 6 mN 处保载 60 s 后,卸载到 1 mN 并保载 50 s 以测量热漂移,最终完全卸载。

2 蠕变应力指数

实验发现铜膜硬度随着保载时间增加,初期快速下降,随后速度趋缓,最后相对稳定,因此,通常保载一段时间后再读取稳定数据。此段硬度与时间关系(即为材料的室温蠕变行为)的研究不多。一些学者认为压入蠕变的曲线可用方程 (2) 来描述^[12, 13]。

$$\dot{\epsilon} = A \sigma^n \exp(-Q/RT) \quad (2)$$

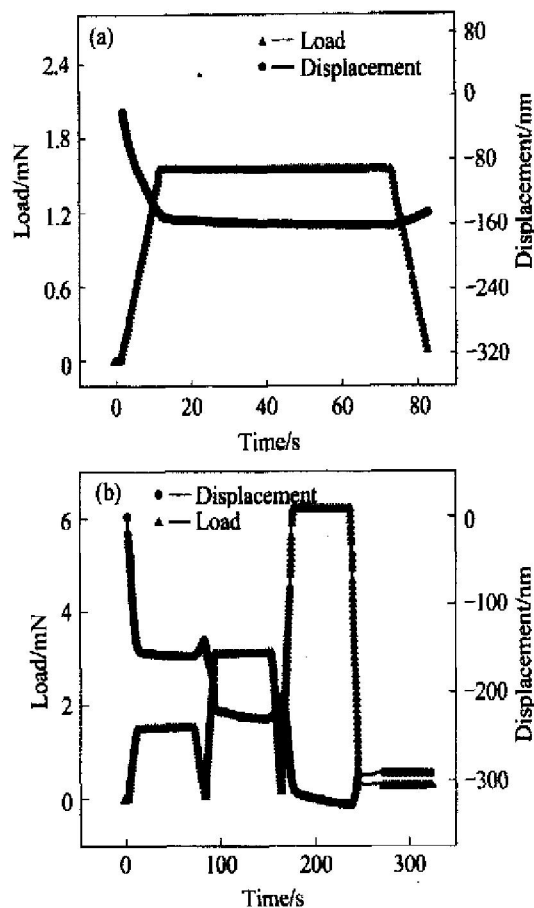


图 1 载荷和位移在纳米压入蠕变实验中随时间变化

Fig. 1 Force and displacement as a function of time from creep test (a) — Mode one; (b) — Mode two

式中 $\dot{\epsilon}$ 和 σ 分别为应变和应力; A 为常数; Q 是激活能; n 为应力指数(即 $1/m$, m 为蠕变敏感系数)。

应变率和硬度变化率及应力和硬度关系如式 (3)^[9, 14]

$$\dot{\epsilon} = -\beta \frac{dH}{dt} H \quad (3)$$

$$H = C \sigma \quad (4)$$

式中 C 为常数。将式 (3)、(4) 代入方程 (2), 并将方程两边积分得压入蠕变的硬度与保载时间关系^[15]

$$-n \ln H = \ln B - Q/RT + \ln t \quad (5)$$

式中 $B = nA \sigma^n / \beta$ 。 $\ln H$ 和 $\ln t$ 之间存在线性关系,其斜率即为应力指数的倒数,应力指数越大,说明蠕变速率越低。

3 结果

利用方式 1 得到的铜膜蠕变应力指数见图 2。如图 2 所示, 3 种载荷下的 $\ln H$ 和 $\ln t$ 都符合线性

关系, 其线性相关度都在 0.995 以上, 说明式(5)可以很好的反映材料的蠕变性能。图中的硬度和时间关系数据是 5 次重复实验后, 算术平均得到的应力指数。随着保载载荷的增加, 铜膜的蠕变应力指数有很大的提高, 由 1.5 mN 下的 7.6 增加到 6 mN 下的 20.4。

图 3 所示为利用方式 2 测得的不同保载载荷下铜膜的蠕变应力指数。随着保载载荷的升高, 应力指数由 1.5 mN 下的 17.4 增加到 3 mN 下的 18.2, 而当保载载荷进一步增大到 6 mN 时, 应力指数与 3 mN 下的基本相同。在 3 个保载载荷下, 只有载荷为 1.5 mN 时, 蠕变应力指数与方式 1 的基本相同, 而当载荷为 3 mN 和 6 mN 时, 其应力指数均较方式 1 的降低, 且随着保载载荷的增加, 不同保载载荷间应力指数的增量也小于利用方式 1 测得的

铜膜蠕变应力指数。

4 讨论

4.1 保载载荷的影响

如图 2、3 所示, 不同加载方式下铜膜的蠕变应力指数均随着保载载荷的升高而升高。当保载载荷增大时, 高载荷对材料的蠕变性能影响存在 2 种效应: 1) 较高载荷可以使压头易于压入铜膜, 具体表现为铜膜抵抗蠕变的能力呈下降趋势, 即导致应力指数降低。2) 高保载载荷下, 在加载过程中会加快压头压入材料的速度, 从而在压头尖端产生较低载荷下更多的线位错或位错环, 使得位错塞积增强。因此, 会产生较低载荷下更大的加工硬化, 反而使得在保载阶段压头难以压入材料, 造成铜膜抵抗蠕

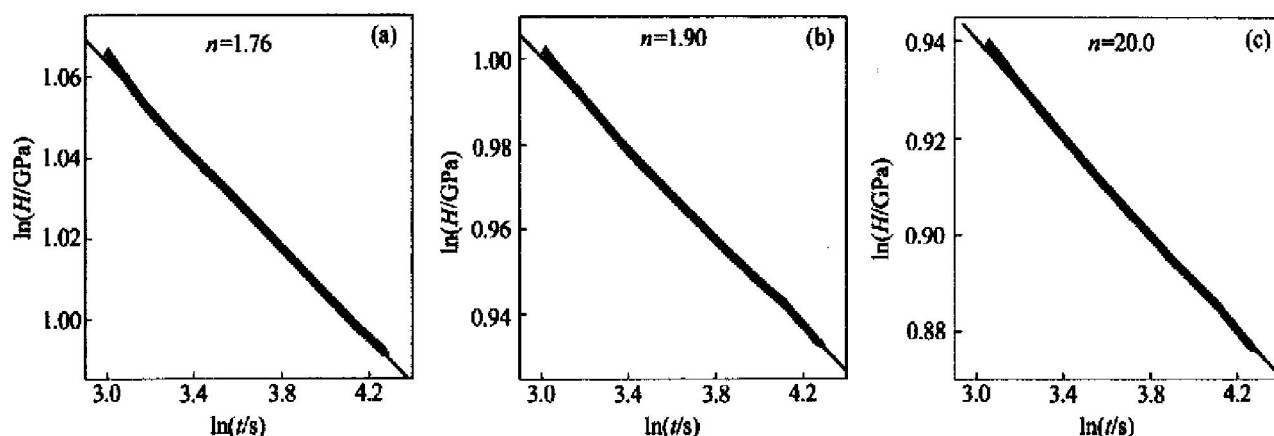


图 2 溅射态铜膜的应力指数随保载载荷的变化(方式 1)

Fig. 2 Variation of stress exponents with change of holding load for deposited copper thin films(mode one)

(a) —1.5 mN; (b) —3 mN; (c) —6 mN

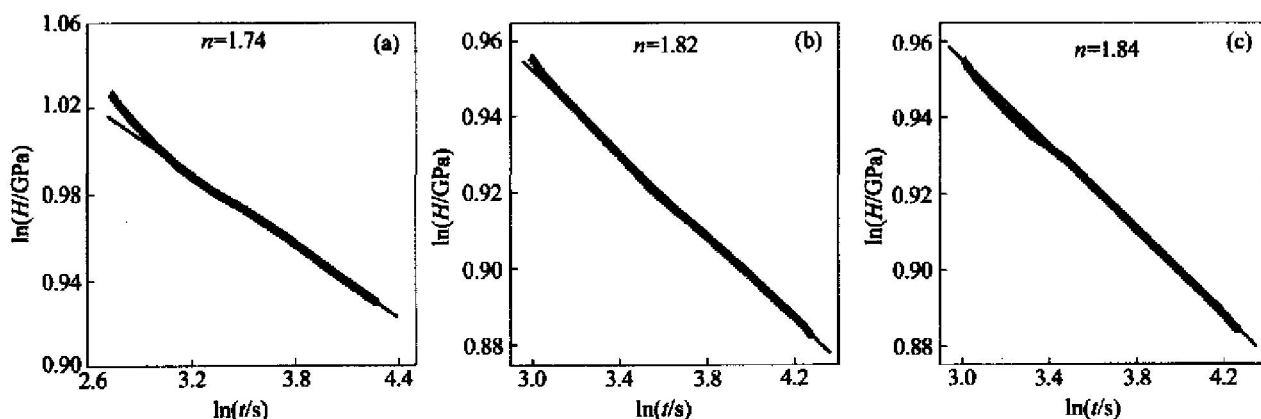


图 3 溅射态铜膜的应力指数随保载载荷的变化(方式 2)

Fig. 3 Variation of stress exponents with change of holding load for deposited copper thin films(mode two)

(a) —1.5 mN; (b) —3 mN; (c) —6 mN

变能力的上升。因此,当保载载荷升高时,最终的蠕变应力指数是这 2 种效应共同作用的结果。

本文的实验结果说明在 2 种加载方式下,虽然不同保载载荷下应力指数数值和变化量有很大的不同,但高载荷造成的加工硬化效应较强。因此,随着加载载荷的升高,铜膜的蠕变速率降低,即蠕变应力指数升高。

Raman 和 Berriche^[3]利用恒定载荷方法对镀在硅基体上的厚度为 0.8 μm 和 1.6 μm 的铝薄膜进行纳米压入蠕变实验,测得 0.1~8 mN 载荷下应力指数为 7.9~9.5,且随着保载载荷的升高,应力指数的变化趋势与本文实验的相同。

4.2 不同加载方式的影响

造成 2 种加载方式下铜膜蠕变应力指数不同原因主要是由于加载阶段的弹塑性变形的不同。如图 2 和 3 所示,由于其加载阶段的弹塑性变形方式完全一样,在保载载荷为 1.5 mN 时,2 种加载方式得到的应力指数基本相同;当保载载荷为 3 mN 时,2 种方式下得到的应力指数就有比较大的差别。

利用方式 1 加载时,3 mN 时的应力指数较 1.5 mN 时增大了 1.4(约 8%)。在保载载荷由 0N 升到 3 mN 的过程中,压头均与铜膜相接触,随着压入深度的增加,位错尖端增殖使位错塞积越来越多,且在这个过程中,铜膜中的弹性形变始终得不到释放,因而大大地阻碍保载阶段中压头进一步压入铜膜,使蠕变速率降低,即应力指数较大。当保载载荷为 6 mN 时,压头下端形成更强的加工硬化,因此,当保载载荷进一步增大到 6 mN 时,应力指数的增加幅度也比方式 2 大很多,从 3 mN 时的 19 增加到 6 mN 时的 20,但增加幅度小于 3 mN 相对于 1.5 mN 时的增加量。

利用方式 2 加载时,保载载荷为 3 mN 的压入蠕变实验是在用 1.5 mN 的载荷进行过压入蠕变的基础上原位压入的。当压头从载荷为 1.5 mN 处卸载时,压头下端的弹性变形得到了充分释放。与此同时,压头下端大量的塞积位错会随着弹性变形的释放而得到缓解,且由于压头压入引起的薄膜内应力也大大地降低,而在方式 1 的加载下,压头下端和周围的塞积位错和内应力始终得不到释放。这使得在载荷为 3 mN 时用方式 1 加载造成的加工硬化要大于方式 2 加载造成的加工硬化。因此,在保载阶段,方式 2 产生的蠕变量要大于方式 1 产生的蠕变量,即应力指数小于方式 1 的应力指数。在保载

载荷为 6 mN 时,2 种载荷方式下的变形原理与 3 mN 时的相同。因此,随着加载载荷的升高,方式 1 的蠕变应力指数变化量大于方式 2 的蠕变应力指数变化量。

5 结论

1) 利用纳米压入技术得到的保载时间和沿压入深度硬度分布的线性关系,其线性相关度均在 0.995 以上,可很好地描述薄膜材料的室温蠕变性能。

2) 随着保载载荷的升高,铜膜的应力指数也相应升高(即蠕变速率相应降低)。

3) 不同的加载方式对测得材料的蠕变性能有很大的影响。当保载载荷改变时,由于原位加载方式和非原位加载方式在压头下端产生的加工硬化程度不同,因而,采用 2 种加载方式所得到的材料蠕变性能有较大的不同。

REFERENCES

- [1] 岳珠峰,吕震宇,何健,等.镍基单晶合金的 γ' 相筏化准则及蠕变性能的晶体取向相关性[J].金属学报,1999,35(6):585-588.
YUE Zhufeng, LI Zhen-yu, HE Jian, et al. Rafting prediction criterion for nickel-base single crystals under multiaxial stresses and crystallographic orientation dependence of creep behavior[J]. Acta Metall Sin, 1999, 35(6): 585-588.
- [2] 田素贵,张禄廷,张静华,等.单晶镍基合金的蠕变特性及影响因素[J].中国有色金属学报,2000,10(1):43-46.
TIAN Sugui, ZHANG Luting, ZHANG Jing-hua, et al. Creep features and affection factors for single crystal nickel base superalloys[J]. The Chinese Journal of Non-ferrous Metals, 2000, 10(1): 43-46.
- [3] Raman V, Berriche R. Investigation of the creep processes in tin and aluminum using a depth-sensing indentation technique[J]. J Mater Res, 1992, 7(3): 627-638.
- [4] Feng G, Ngan A H W. Creep and strain burst in indium and aluminum during nanoindentation[J]. Scripta Materialia, 2001, 45(8): 971.
- [5] May M J, Nix W D. Micro-indentation study of superplasticity in Pb, Sn and Sn-38% Pb[J]. Acta Metall, 1988, 36(8): 2183-2192.
- [6] Lafontaine W R, Yost B, Black R D, et al. Indentation load relaxation experiments with indentation depth in the

- submicron range[J]. J Mater Res, 1990, 5(10): 2100 - 2106.
- [7] Mayo M J, Siegel R W, Liao Y X, et al. Nanoindentation of nanocrystalline ZnO[J]. J Mater Res, 1992, 7(4): 973 - 979.
- [8] Mayo M J, Siegel R W, Narayanasamy A, et al. Mechanical properties of nanophase TiO₂ as determined by nanoindentation[J]. J Mater Res, 1990, 5(5): 1073 - 1082.
- [9] Yue Z F, Probst H M, Eggeler G. Determination of creep parameters from indentation creep experiments: a parametric finite elements study for single phase materials [C]. Mater High Temp, 2000, 17(4): 449 - 456.
- [10] Cheng Y T, Cheng C M. Scaling relationships in indentation of power-law creep solids using self-similar indenters[J]. Phil Mag Lett, 2001, 81(1): 9 - 16.
- [11] Fujiwara M, Otsuka M. Indentation creep of β -Sn and Sn-Pb eutectic alloy[J]. Materials Science and Engineering A, 2001, A319 - 321: 929 - 933.
- [12] Li W B, Henshall J L, Hooper R M, et al. Mechanisms of indentation creep[J]. Acta Metall, 1991, 39(12): 3099 - 3110.
- [13] Chang H, Alstetter C J, Averback R S. Characteristics of nanophase TiAl produced by inert gas condensation [J]. J Mater Res, 1992, 7(11): 2962 - 2970.
- [14] Lucas B N, Oliver W C, Swindeman J E. Dynamics of frequency-specific, depth-sensing indentation testing [A]. MRS Symp Proc [C]. San Francisco CA, USA: Materials Research Society, 1998. 3 - 14.
- [15] Shen B L, Itoi T, Yamasaki T, et al. Indentation creep of nanocrystalline Cu-TiC alloys prepared by mechanical alloying[J]. Scripta Materialia, 2000, 42(9): 893 - 898.

(编辑 李艳红)