



Nanocompression of oriented pillars from Al thin film

I. Kuběna*, T. Kruml *

Summary: *In this paper, a new method of measurement of mechanical properties of thin films is presented. This method combines specimen preparation by focused ion beam (FIB) and compression test using nanoindentation device. Compression specimens were prepared from thin film, Al-1.5%Cu, which is commonly used in integrated circuit. Cylindrical specimens were prepared by FIB milling. The height of specimens (pillars) was about 2 μm (equal to the film thickness) and their diameter was about 1.3 μm . The pillars are single crystalline, therefore the results depend on crystallographic orientation of pillar, which was specified by EBSD (electron backscatter diffraction). Stress-strain curves of the thin film were obtained in two representations, σ – ε and τ – γ .*

1. Úvod

Měření mechanických vlastností tenkých vrstev je obtížně proveditelné. Existuje několik běžně používaných metod, přičemž každá z nich má své výhody a nevýhody. Nejpoužívanější metodou je nanoindentace, jejíž princip je vtlačování hrotu do vrstvy a zaznamenávání síly a hloubky průniku hrotu. Tato metoda je experimentálně nejjednodušší, protože není nutné vrstvu připravovat pro indentaci. Její nevýhoda je obtížná interpretace experimentálních dat, např. výsledky jsou typicky závislé na hloubce vtisku. Je možné změřit jen omezené množství materiálových parametrů, nanoindentace není vhodná pro určování plastických vlastností vrstvy jako mez kluzu, mez pevnosti, koeficient deformačního zpevnění a tažnosti (Oliver and Pharr, 1992).

Teoreticky nejlepší metodou pro určování mechanických vlastností tenkých vrstev by byla zkouška tahem. V literatuře jsou uvedeny pokusy aplikovat tahovou zkoušku na tenké vrstvy (Cheng et al. 2005, LaVan et al. 1999). Nevýhodou této metody je velice složitá, v některých případech dokonce nemožná, příprava takového vzorku, protože většina vrstev je vyráběna depozicí na substrát a tento substrát je nutné před vlastní zkouškou odstranit. Přitom je nutné nepoškodit tenkou vrstvu. Samotná zkouška vyžaduje výrobu miniaturizovaného tahového stroje. Další problém je spojen s relativně velkým poměrem povrch/objem vzorku, jelikož vrstvy připravované technologiemi PVD nebo CVD se vyrábějí typicky o tloušťce 1 μm a méně a jakýkoliv povrchový defekt způsobí náhlé porušení tahového vzorku při tahové zkoušce.

Další možností jak studovat tenké vrstvy je tzv. bulge test (Karimi et al. 1997, Cieslar et al. 2004). Principem této metody je přívod pracovního plynu na kruhovou nebo čtvercovou

* Ing. Ivo Kuběna, Ing. Pavel Hutař Ph.D, Prof. Mgr. Tomáš Kruml CSc.: Ústav fyziky materiálů AV ČR, v.v.i.; Žitkova 22; 616 62 Brno; tel.: +420-541212343, e-mail: kubena@ipm.cz

membránu vyrobenou z tenké vrstvy. Při této zkoušce se měří závislost tlaku pracovního plynu a průhyb membrány, který tento tlak způsobuje. Tuto závislost lze přepočítat na biaxiální (membrána je zatěžována dvouosým tahem) tahovou křivku s osami smluvní deformace – smluvní napětí. Při této metodě opět nastává problém s přípravou membrány bez defektů.

V poslední letech se stále více využívají zařízení, která umožňují precizní odstraňování materiálu pomocí fokusovaných iontových svazků (FIB – focused ion beam). Skupina pod vedením prof. Dimiduka (2005) přišla s myšlenkou spojit přípravu vzorku pomocí FIBu a následnou deformaci tohoto vzorku pomocí nanoindentoru a takto provést mikroskopickou kompresní zkoušku. Vzorky byly připravovány ve tvaru válce (pilířek, pillar) na vyleštěném povrchu objemového materiálu. Cílem tohoto experimentu bylo zjistit zda velikost pilířku má vliv na výsledné mechanické vlastnosti. Bylo zjištěno ze vzorky o průměru nižším než 1 μm vykazují značný nárůst meze kluzu. To je vysvětlováno tím, že v takto malých objemech již nejsou žádné pohyblivé dislokace a napětí potřebné k plastické deformaci je dáno napětím potřebným k aktivaci dislokačních zdrojů a ne napětím nutným k pohybu dislokací (Nix et al. 2007).

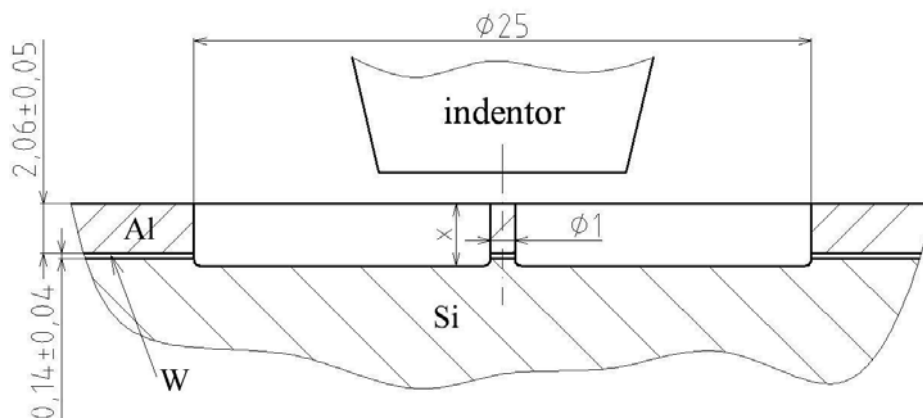
V literatuře již existují pokusy převést techniku přípravy vzorků pomocí FIBu a náhledné deformaci těchto vzorků nanoindentorem do oblasti tenkých vrstev (Kuběna et al, 2009, Kruml et al. 2009). Tato práce přináší nové výsledky a věnuje se vlivu krystalografické orientace monokrystalických pilířků na jejich mechanické vlastnosti.

2. Experiment

Experiment byl proveden na tenké vrstvě z Al – 1,5 hm. % Cu o tloušťce $2,06 \pm 0,05 \mu\text{m}$, která byla napařena na křemíkový monokrystalický substrát s orientací $\langle 100 \rangle$. Mezi substrátem a Al vrstvou je mezivrstva W – 10 hm. % Ti o tloušťce $0,14 \pm 0,04 \mu\text{m}$ sloužící jednak jako difúzní bariéra a jednak ke zlepšení přilnavosti substrátu a vrstvy. Velikost Al zrna měřené na volném povrchu je $3,8 \pm 0,3 \mu\text{m}$, tudíž vzhledem k tloušťce vrstvy relativně velká. Materiál byl připraven na zařízení VARIAN 3190 ve firmě ON Semiconductor a je používán na vytváření vodivých kontaktů v integrovaných obvodech

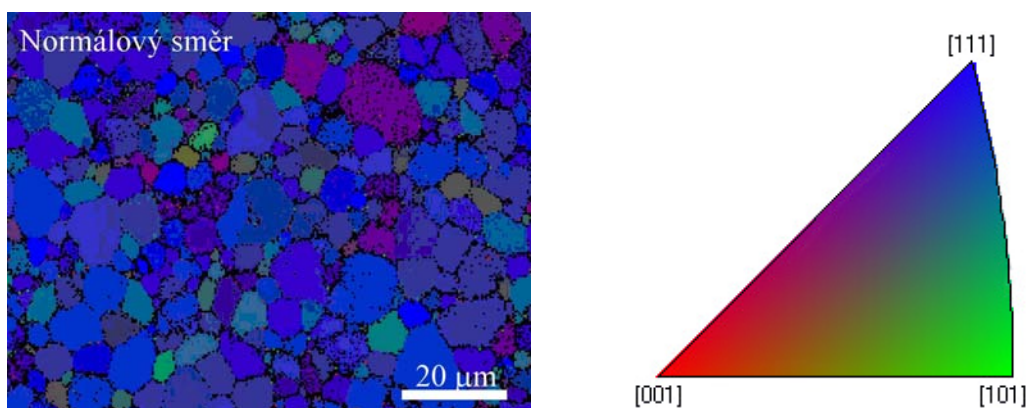
Příprava mikrokompresních pilířků byla prováděna na půdě FEI Company v Brně na přístroji Quanta 3D FEG Dual BeamTM. Jedná se o přístroj, který v sobě kombinuje jak iontový tak elektronový tubus. Tato kombinace umožňuje na jednom přístroji jak pozorování elektronu, tak odstraňování materiálu či depozici ochranné vrstvy s využitím iontového svazku. Během přípravy pilířku byly měněny parametry odprašování a to zejména doba výdrže svazku na jednom místě, překrytí svazku, velikost proudu svazku a smysl rastrování. Pilířky byly připravovány ve středech největších zrn aby bylo zajištěno, že výsledný pilířek bude monokrystalický.

Geometrie vzorku (obr. 1) po poslední fázi přípravy by se měla co možná nejvíce podobat rotačnímu válci. Hloubka odprašování x by měla být větší než je tloušťka napařených vrstev, tzn. zasahovat až do substrátu. Dále by přechod do okolního substrátu měl být plynulý a blízké okolí pilířku rovinné. Všechny tyto aspekty jsou důležité pro homogenní rozložení napětí při následné mikrokompresní zkoušce. Průměr pilířku se volí cca 1 μm , velikost mezikruží odstraněného materiálu je 25 μm z důvodu zabránění kontaktu plochého indentoru (průměr 20 μm) se zbytkem vrstvy.



Obr. 1 Schéma plánovaného experimentu (rozměry v μm).

Jak již bylo zmíněno, připravený pilířek je monokrystalický, tzn. jeho odezva na mechanické zatížení je závislá na jeho krystalografické orientaci. Z tohoto důvodu byla provedena v rastrovacím elektronovém mikroskopu (SEM) Jeol 6460 analýza EBSD a byla určena krystalografická orientace jednotlivých pilířků. Z těchto údajů byly dále vypočteny Schmidovy faktory, které umožní přepočítat smluvní napětí a deformace s ohledem na krystalografickou orientaci daného pilířku na smykové veličiny pro primární skluzový systém. Na obr. 2 je snímek ze SEM povrchu vrstvy na kterém jsou pomocí analýzy EBSD doplněny barvy odpovídající krystalografické orientaci ve směru kolmém na povrch vrstvy. Je vidět, že v tomto směru má vrstva silnou texturu $\langle 111 \rangle$. Ve směrech kolmých na povrch vrstvy je rozložení krystalografických směrů rovnoměrné.

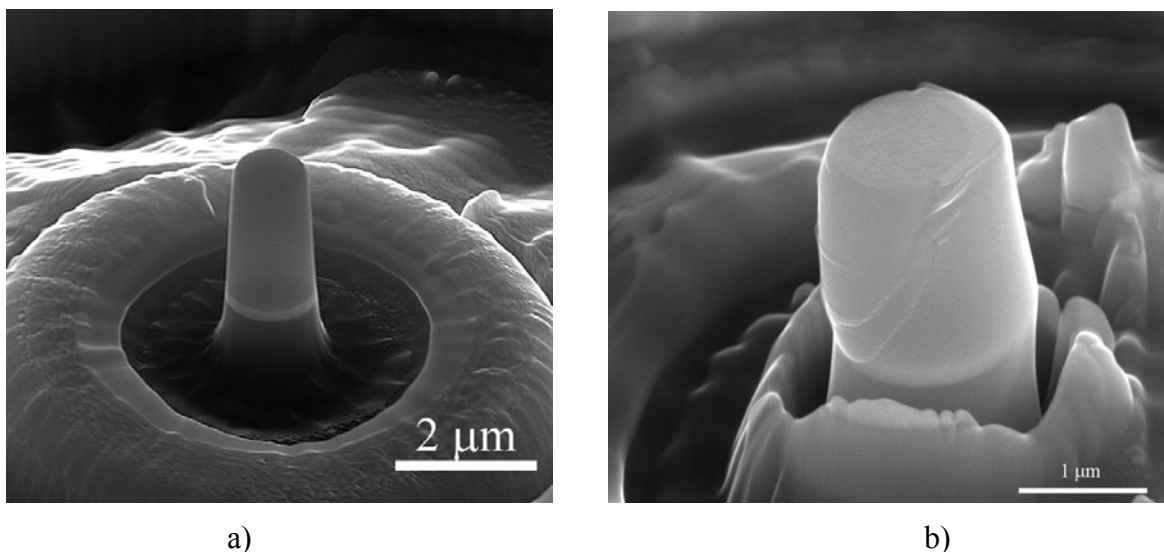


Obr. 2 EBSD analýza studované vrstvy, normálový směr. Barvy odpovídají krystalografické orientaci dle uvedeného standardního stereografického trojúhelníka.

Zatěžování vzorků v kompresi probíhalo pomocí nanoindentoru MTS Nanoindenter XP vybaveného plochým diamantovým razníkem o průměru $20\ \mu\text{m}$. Tento přístroj je vybaven světelným mikroskopem, pomocí kterého je možné určit souřadnice pilířku a následně nad pilířek přemístit razník a deformovat jej. Zatěžování probíhalo v režimu řízení síly rychlostí $0,001\ \text{mN/s}$

3. Výsledky a diskuze

Válcové vzorky byly připraveny pomocí FIB optimalizovaným postupem. Na obr. 3a je příklad pilířku připraveného pro mikrokompresní zkoušku. Je zřetelné, že jeho geometrie se blíží ideálnímu tvaru, čímž je míněna co možná nejmenší kuželovitost, plynulý přechod vzorku do okolního substrátu a optimální hloubka x (obr. 1). Tyto parametry nejvíce ovlivňují homogenitu rozložení napětí ve vzorku během zkoušky. Optimalizovaný postup přípravy je popsán v (Kuběna et al., 2009). Na obr. 3b zobrazen pilířek po deformaci. Výrazné skluzové pásy podél na tomto vzorku se pravděpodobně tvoří během plastických skoků.



Obr. 3 a) Pilířek připravený optimalizovaným postupem; b) pilířek po deformaci se zřetelnými skluzovými pásy.

Během kompresního testu byla plynule zaznamenávána velikost zátěžné síly a přemístění plochého hrotu. Tyto veličiny byly nejprve přepočítány na hodnoty smluvního napětí a smluvní deformace podle rovnic (1) a (2)

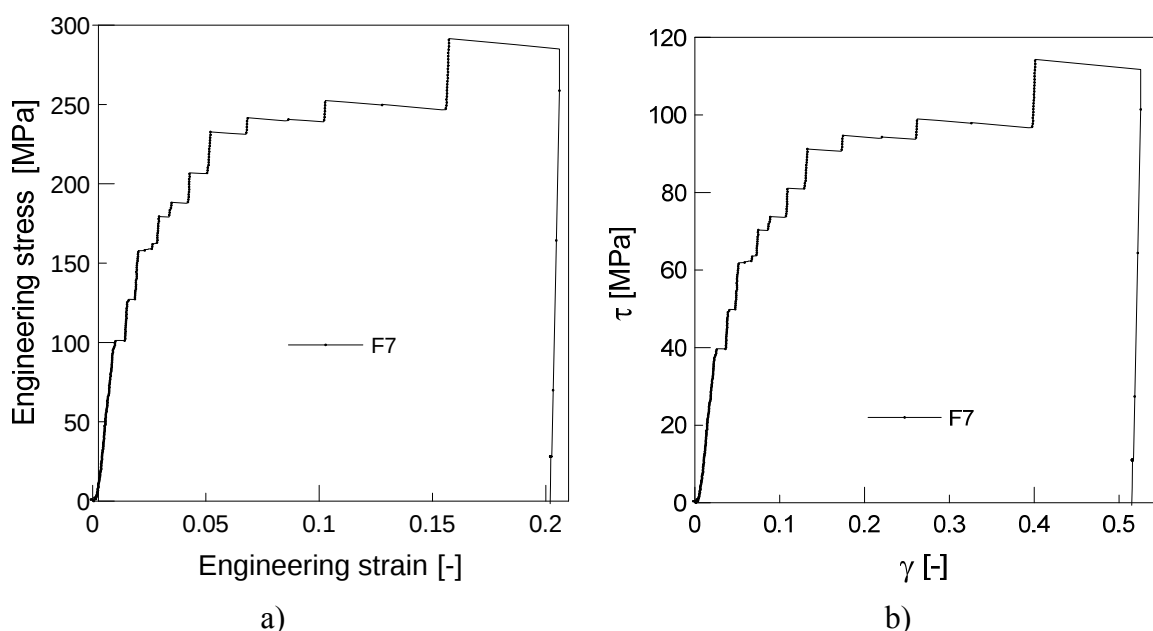
$$\sigma = \frac{F}{S_0} \quad (1)$$

$$\varepsilon = \frac{\Delta l}{l_0} \quad (2)$$

kde S_0 je počáteční střední průřez vzorku (vzorky vykazovaly kuželovitost cca 4°), l_0 je počáteční výška vzorku, v tomto případě je shodná s tloušťkou vrstvy.

Na obr. 4a je ukázána kompresní křivka pilířku na obr. 3a v reprezentaci σ – ε . Je nutné poznamenat, že ačkoliv je přemístění snímáno v řádu nm a síla v řádu mN , na křivce není pozorován téměř žádný šum. Je zřejmé, že tvar kompresní křivky je velmi odlišný než tvar typických kompresních křivek v případě objemového materiálu. Zatímco u objemových Al materiálů by bylo možné očekávat plynulý odklon od elastické části a postupně klesající zpevnění, měřený pilířek se deformoval prakticky pouze pomocí skokových nárůstů plastické deformace, z literatury známých jako plastické skoky (plastic bursts), navzájem spojených úseky

elastické deformace. Postupné deformační zpevnění nebylo pozorováno. Pilířek se při deformaci chová následujícím způsobem. Nejprve narůstá napětí při elastické deformaci. Po dosažení napětí nutného pro aktivaci dislokačního zdroje dojde k aktivaci několika desítek nebo stovek dislokačních smyček, které se rozšíří přes celý pilířek, zaniknou na volném povrchu a způsobí vzájemné posunutí částí krystalů nad a pod skluzovou rovinou o Nb , kde N je počet dislokací a b je velikost jejich Burgersova vektoru. Dislokační zdroj poté přestane být aktivní; o důvodech přerušení jeho činnosti lze jen spekulovat. Napětí pak dále roste během dalšího úseku elastické deformace než dojde k aktivaci dalšího zdroje. Nedostatek pohyblivých dislokací nutných k deformaci pilířku je nazýváno „dislokační vyhladovění“ (mobile dislocation starvation).



Obr. 4 a) Kompresní křivka pilířku z obr. 3a v reprezentaci σ - ϵ ;
b) kompresní křivka v reprezentaci τ - γ

Je známo, že křemík a wolframové slitiny se za pokojových teplot se plasticky nedeformují, takže lze s jistotou říci, že popisované plastické skoky jsou odezvou pouze zkoušené Al vrstvy. Toto bylo také ověřeno pomocí SEM pozorování pilířků po deformaci, kde žádná plastická deformace Si substrátu nebo W mezivrstvy nebyla nalezena. Lze tedy určit napětí potřebné k prvnímu plastickému skoku Al vrstvy. Toto napětí je možné považovat za mez kluzu studovaného pilířku. Hodnoty těchto napětí jsou uvedeny v Tab.1. Střední hodnota napětí vypočtená z osmi úspěšných zkoušek pro první plastický skok je 140 MPa se směrodatnou odchylkou 45 MPa, tj. 32%. Tato velká odchylka není způsobena nepřesností měření, ale tím, že chování pillaru závisí jednak na jeho krystalografické orientaci a jednak aktivace dislokačních zdrojů v takto malém objemu má pravděpodobnostní charakter (Uchic et al, 2004).

Tento rozptyl je možné snížit tím, že budeme uvažovat orientaci pilířku. Orientace pilířku byly určeny z EBSD map (např. pilířek z obr. 3a, F7, odpovídá $[-3 \ 4 \ 5]$). Z těchto orientací byl následně stanoven Schmidův faktor primárního skluzového systému m , pomocí kterého

byly přepočítány hodnoty σ a ε na hodnotu skluzového napětí a smykové deformace podle rovnic (3) a (4):

$$\tau = \sigma \cdot m \quad (3)$$

$$\gamma = \frac{\varepsilon}{m} \quad (4)$$

Tab 1. Vyhodnocení napětí při prvním plastickém skoku (mez kluzu) osmi úspěšných experimentů.

vzorek	orientace osy pilířku	Schmidův faktor primárního skluzo- vého systému	napětí při prvním plastickém skoku σ_{pl} [MPa]	napětí při prvním plastickém skoku τ_{pl} [MPa]
F2	[-5 6 8]	0,323	180	68
F3	[-4 5 5]	0,334	210	69
F5	[-6 9 10]	0,367	135	53
F6	[-3 3 4]	0,336	215	73
F7	[-3 4 5]	0,343	102	40
F8	[-6 7 9]	0,32	138	52
F9	[-4 5 6]	0,334	142	53
F10	[-3 5 6]	0,373	85	38

Na obr. 4b je ukázána kompresní křivka v souřadnicích τ – γ . Tato křivka vypadá podobně jako křivka v reprezentaci σ – ε . Nicméně, je-li vyhodnocena střední hodnota skluzového napětí pro první plastický skok, je získána hodnota 54 MPa a směrodatná odchylka 12 MPa (22%). Pokud uvažujeme smykové hodnoty napětí a deformace, je relativní chyba určení meze kluzu snížena o třetinu.

Jelikož z evidentních důvodů není možné připevnit snímač deformace na vzorek, měřené posunutí diamantového razníku se skládá z plastické deformace vrstvy a elastických deformací vrstvy, mezivrstvy, substrátu a samotného razníku. Tento fakt znemožňuje určení modulu pružnosti přímo, protože zejména elastické deformace substrátu nejsou zanedbatelné. Bylo ovšem již ukázáno, že je možné pomocí modelování konečnými prvky deformaci mezivrstvy a substrátu pro známé zatížení vypočítat a odečíst od měřené hodnoty (Kuběna et al., 2008). Tímto způsobem je tedy v principu možné určit Youngův modul pružnosti pro studovanou vrstvu včetně jeho závislosti na krystalografické orientaci.

4. Závěr

Výsledky této práce se dají shrnout do následujících bodů:

- metodika přípravy mikrokompresních vzorků z tenkých vrstev pomocí fokusovaného iontového svazku byla úspěšně zvládnuta, což potvrzují úspěšné kompresní testy;
- mikrokompresní vzorky byly deformovány nanoindentorem s plochým diamantovým razníkem a byly získány kompresní křivky v σ - ϵ souřadnicích;
- díky znalosti orientací jednotlivých pilířků zjištěných pomocí EBSD bylo možné tyto křivky přepočítat na závislost smykového napětí na smykové deformaci, čímž se podstatně snížil rozptyl naměřených křivek;
- z osmi úspěšných mikrokompresních zkoušek byly vyhodnoceny střední hodnoty a směrodatné odchylky prvních plastických skoků: $\sigma_{pl} = 140 \pm 45$ MPa a $\tau_{pl} = 54 \pm 12$ MPa. Tento rozptyl hodnot není způsoben nepřesností měření, nýbrž je typický pro chování objektů s velikostí okolo 1 μ m nebo menších.

Poděkování

Autoři děkují firmě FEI za umožnění přípravy pilířků na jejich přístrojích a finanční podporu při řešení tohoto projektu a dále projektu AV0Z20410507. Deformace pilířků byla provedena na pracovišti Paul Scherrer Institute, Viligen, Švýcarsko. Dr. Philippu Spaetigovi patří dík za podporu a umožnění přístupu k nanoindentoru.

5. References

- M. Cieslar, V. Oliva, A. Karimi and J. L. Martin, Plasticity of thin Al films as a function of temperature, *Mat. Sci. Eng.A* 378-389 (2004) 734
- Y.W. Cheng, D.T. Read, J.D. McCloskey, J.E. Wright, A tensile testing technique for micrometer sized free standing thin films, *Thin Solid Films* 484 (2005), 426
- A. Karimi, O. R. Shojaei, T. Kruml, J.L. Matrin, Characterization of TiN thin film using bulge test and the nanoindentation technique, *Thin Solid Films* 308-309 (2004), 334
- D. A. LaVan, W. N. Sharpe, Tensile testing of microsamples *Experimental mechanics* 39 (1999), 210.
- T. Kruml, M. Stranyanek, R. Ctvrtlik, P. Bohac, T. Vystavel and P. Panek: A new method for mechanical testing of thin films: application on Aluminum. *Journal of Mat. Research*, submitted
- I. Kubena, T. Kruml, P. Hutar, P. Bohac, M. Stranyanek, R. Ctvrtlik, P. Panek and T. Vystavel: Measurement of mechanical properties of thin films by nanocompression, in: *Vrstvy a povlaky 2008*, Liss, Roznov p R. 103
- I. Kuběna, T. Kruml, T. Vystavěl: Příprava mikrokompresních vzorků z tenkých vrstev pomocí fokusovaných iontových svazků, SEMDOK 2009, Súlov, Slovensko, p. 73-76

- W. D. Nix, J. R. Greer, G. Feng, E. T. Lilleodden, Deformation at the nanometer and micrometer length scales: Effect of strain gradients and dislocation starvation, *Thin Solid Films* 515 (2007), 3152
- W.C. Oliver and G. M. Pharr: An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiment. *J. Mater. Res.* 7 (1992), 1564
- M. D. Uchic, D. M. Dimiduk, A methodology to investigate size scale effects in crystalline plasticity using uniaxial compression testing, *Mat. Sci. Eng A* 400-401 (2005), 268.
- M. D. Uchic, D. M. Dimiduk, J. N. Florando and W. D. Nix: Sample dimension influence strength and crystal plasticity, *Science* 305 (2004) 986