Caracterización de la adhesión en películas delgadas mediante nanoindentación

M.R. ELIZALDE, J.M. SÁNCHEZ MORENO, J.M. MARTÍNEZ ESNAOLA, A. MARTÍN MEIZOSO, J. GIL SEVILLANO Y J. MAIZ¹

CEIT, Paseo de Manuel Lardizábal, 15, 20018 San Sebastián, y Escuela Superior de Ingenieros, Apdo 1674, 20080 San Sebastián.

¹Intel Co., 2501 NW 229th Av., Hillsboro, OR 97124, USA

Este trabajo presenta una nueva técnica de nanoindentación en sección transversal desarrollada para el estudio a escala microscópica de los fenómenos de descohesión en intercaras de películas delgadas. El ensayo consiste en generar grietas en las intercaras de interés a partir de una indentación realizada sobre la sección transversal de una estructura multicapa de películas delgadas. La técnica se aplicó a dos muestras con tres películas delgadas ($\text{SiO}_2/\text{Al-Cu}/\text{SiO}_2$) depositadas sobre una oblea de silicio monocristalino que presentaban buena y mala adhesión. Se discute la correlación entre el agrietamiento observado y las correspondientes curvas carga aplicada frente a desplazamiento de la punta del indentador registradas durante el ensayo. Una ventaja de esta técnica es la baja dispersión de la longitud de las grietas obtenida en ensayos realizados en idénticas condiciones. Finalmente, la observación mediante MEB del frente de la grieta interfacial muestra claras diferencias en los micromecanismos de fractura presentes entre las muestras con mala y buena adhesión.

Palabras clave: películas delgadas, adhesión interfacial, nanoindentación.

Cross-sectional nanoindentation for thin film interfacial adhesion characterization

Cross sectional nanoindentation (CSN) is a technique recently developed to study thin film interface decohesion in a microscopic scale. Controlled interfacial microcracks are induced at the interfaces of interest by indenting in a cross section of a multilayer thin film structure. The correlation between the observed cracking phenomena and the corresponding load vs. indenter tip displacement curves is discussed. An additional benefit of the CSN technique is the low scatter of results obtained for the mean interfacial crack lengths produced by identical tests. The observation of the interfacial crack front by scanning electron microscopy shows clear differences between the interfacial fracture micro-mechanisms present in samples with good and bad adhesion behaviour.

Keywords: thin films, interfacial adhesion, nanoindentation.

1. INTRODUCCIÓN

Gran número de fallos en los circuitos integrados tienen su origen en el comportamiento mecánico de las películas delgadas (delaminación, fractura frágil, fluencia de los metales, etc.). Sin embargo, los ensayos mecánicos convencionales no son aplicables a películas de espesor inferior a 1 μm . Entre las diferentes técnicas experimentales desarrolladas recientemente para el estudio de las propiedades mecánicas de las películas delgadas, los ensayos de nanoindentación han demostrado ser exitosos para la obtención de propiedades tales como la dureza y el módulo elástico de las películas delgadas, si bien estas técnicas están limitadas por el espesor de las capas, de forma que no se pueden superar penetraciones del 10% del espesor de la capa (1-3). Para el estudio de las propiedades a fractura de la intecara se ha empleado un enfoque diferente. Se han empleado unos nuevos ensayos basados en la flexión en cuatro puntos para medir macroscópicamente la energía de fractura interfacial y la velocidad de crecimiento de grieta subcrítica (4-6). Estos ensayos producen información más fiable que la facilitada por los ensayos cualitativos existentes hasta la fecha, como por ejemplo el *stub pull test* y el *tape test* (7, 8). Sin embargo, estos ensayos macroscópicos son costosos

en tiempo y no proporcionan evidencia física de los micromecanismos de fractura interfaciales. En este trabajo, se ha desarrollado una nueva técnica de nanoindentación en sección transversal para determinar la energía de fractura interfacial en películas delgadas a escala microscópica. Esta nueva técnica presenta, frente a las técnicas de nanoindentación realizadas sobre la superficie de las películas delgadas (9-11), la ventaja de la observación directa de los micromecanismos de fractura producidos en las estructuras con películas delgadas.

2. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

El ensayo de nanoindentación en sección transversal se realiza en tres etapas: preparación de la sección transversal a partir de la oblea de silicio depositada, indentación en el substrato de silicio próxima a las películas delgadas y medida de las grietas interfaciales producidas durante el ensayo. El material consiste en una oblea de silicio monocristalina sobre la cual se depositan una capa de SiO_2 de 1.2 μm , una capa de Al-Cu de 0.9 μm de espesor y otra capa de SiO_2 de 1.5 μm de espesor ($\text{SiO}_2/\text{Al-Cu}/\text{SiO}_2$ /substrato de silicio). Las capas de

SiO_2 se obtienen por deposición química en fase vapor y la capa metálica por deposición electrónica. Se comparan dos muestras que presentan distintas propiedades de la intercara entre la capa exterior de SiO_2 y la capa metálica. Así, la muestra A posee una intercara con mala adhesión mientras que la muestra B posee buena adhesión. Ambas muestras fueron suministradas por Intel Co. (Hillsboro, Oregon, USA). Las secciones transversales se pulen con lijas de SiC hasta un acabado final con lija de alúmina de $0.3\ \mu\text{m}$. Antes de ensayar, se comprueba la calidad de la preparación en el microscopio electrónico de barrido (Fig. 1).

Sobre cada muestra se realizan 5 ensayos de nanoindentación idénticos con una punta Berkovich a $9\ \mu\text{m}$ del borde de la sección transversal. La Figura 2 muestra la orientación y posicionamiento de la punta respecto de las películas depositadas. En cada ensayo se aplica un ciclo de carga y descarga en control de carga a una velocidad de $2.5\ \text{mN/s}$ hasta alcanzar una carga máxima de $150\ \text{mN}$. Esta carga máxima se mantiene durante $15\ \text{s}$, siendo $3\ \text{Hz}$ la frecuencia de muestreo de la adquisición de datos. Se ha empleado un dispositivo comercial, el Nano Indenter II[®] (Nano Instruments, Inc., Oak Ridge, TN, USA), que registra la carga aplicada y el desplazamiento de la punta con una resolución de $50\ \text{nN}$ y $0.1\ \text{nm}$, respectivamente. La resolución en el posicionamiento de la punta es de $0.5\ \mu\text{m}$ en los ejes X e Y.

Tras el ensayo de indentación, se deposita Au-Pd sobre las secciones transversales y se observan y miden las grietas generadas en el microscopio electrónico de barrido (MEB). El tiempo invertido en la realización de los ensayos es de 4 horas, incluyendo la preparación de las muestras, los 5 ensayos de nanoindentación y la observación en el MEB. Se midió asimismo el módulo elástico de las películas exteriores de SiO_2 mediante nanoindentación sobre la superficie de la película empleando el método de medida continua de la rigidez (12) para un rango de penetraciones de $25\ \text{nm}$ a $175\ \text{nm}$ (inferior al 10% del espesor de la película).

3. RESULTADOS

La Figura 3a muestra una micrografía electrónica de barrido correspondiente a un ensayo de nanoindentación en sección

Figura 1. Sección transversal de una oblea de silicio depositada.

Figura 2. Orientación y posicionamiento de la punta del indentador.

transversal realizado sobre la muestra A (mala adhesión). Se observan dos tipos de grietas. En primer lugar, aparecen unas grietas radiales en las esquinas de las huellas de la indentación realizadas en el silicio. Este fenómeno es conocido y se emplea habitualmente para caracterizar la energía de fractura de los materiales frágiles (13). Al aumentar la carga aplicada por el indentador, las dos grietas más cercanas a las películas depositadas crecen de forma radial y avanzan por el silicio hasta alcanzar la intercara Si/ SiO_2 . Se sabe que esta intercara es muy fuerte,

(a)

(b)

Figura 3. Micrografías electrónicas de barrido de (a) un ensayo de nanoindentación en sección transversal para la muestra A y (b) detalle de la zona señalada con un círculo blanco.

lo cual explica por qué las grietas la atraviesan. A continuación, las grietas alcanzan la intercara entre la película interior de SiO_2 y la película de Al-Cu. Esta película delgada detiene el crecimiento de las grietas radiales que se ven deflectadas por la intercara. El mismo proceso se produce en todo el volumen de silicio de manera que un fragmento de Si/SiO_2 se separa del sustrato de silicio. Este fragmento actúa como una cuña que, al continuar aumentando la carga, se desplaza perpendicularmente a la superficie de las películas exteriores sometidas a flexión. La flexión de estas dos capas aumenta con la carga aplicada por el indentador hasta alcanzarse una carga crítica para la cual se produce la fractura de la capa exterior de SiO_2 y el despegue de la intercara entre la película metálica y la película exterior de SiO_2 (Fig. 3b). La energía elástica almacenada en la película exterior de SiO_2 durante el proceso de flexión proporciona la energía necesaria para ambos procesos de fractura.

La grieta interfacial producida por el mismo ensayo realizado sobre la muestra B (buena adhesión) es 10 veces menor a la observada en el caso de la muestra A (Fig. 4a). En la Tabla I se presentan los resultados de las longitudes de las grietas interfaciales medidas en el MEB para ambas muestras junto con los intervalos de confianza al 95%. La micrografía muestra que las grietas interfaciales se nuclean en el punto de máxima curvatura de las películas depositadas. Esta observación coincide con la idea de que el despegue de la intercara está relacionado con la energía almacenada en la capa exterior de SiO_2 durante el proceso de flexión producido por la indentación. En el caso del material B se observa una flexión residual en la capa exterior de SiO_2 tras la indentación que no se observaba en el material A. En este caso, la película de SiO_2 recuperaba tras la fractura su forma original, lo cual demuestra que la energía almacenada en esta capa era elástica. Sin embargo, esta energía elástica no es suficiente en el caso del material B para producir la fractura de la intercara $\text{SiO}_2/\text{Al-Cu}$. Una observación más detallada de la punta de la grieta (Fig. 4b) muestra unos ligamentos metálicos de unos 500 nm de espesor que unen ambos lados de la incipiente grieta interfacial puenteándola e impidiendo su crecimiento.

Un proceso similar, denominado delaminación, se observa en el despegue espontáneo de las capas protectoras de óxido (14-16). Estos procesos de descohesión son inherentemente mixtos, es decir, con componentes en modo I y modo II de magnitud comparable. La importancia relativa de ambas componentes del factor de intensidad de tensiones en el crecimiento de las grietas

TABLA I. LONGITUD MEDIA DE LAS GRIETAS EN LA INTERCARA DE INTERÉS Y MÓDULO ELÁSTICO DE LA CAPA EXTERIOR DE SiO_2 PARA LAS MUESTRAS A (MALA ADHESIÓN) Y B (BUENA ADHESIÓN).

Muestra	Longitud grieta interfacial (mm) (I.C. 95%)	Módulo elástico capa exterior SiO_2 (GPa) (I.C. 95%)
A	54 ± 4 (5 ensayos)	75 ± 1
B	5.3 ± 0.4 (5 ensayos)	74 ± 1

en el caso de los ensayos de nanoindentación en sección transversal no ha sido estudiada sistemáticamente en este trabajo.

En la Figura 5 se presentan dos curvas típicas carga aplicada frente a desplazamiento de la punta correspondientes a cada una de las dos muestras ensayadas. Ambas curvas siguen la misma trayectoria en el segmento inicial de carga hasta alcanzar aproximadamente 100 mN. Esto indica que, inicialmente, el ensayo es un ensayo de dureza y es idéntico para los materiales A y B puesto que, en ambos casos, se indenta en el sustrato de silicio, a la misma distancia del borde, y se ha comprobado que en las dos muestras la rigidez de la capa de SiO_2 es similar (Tabla I). A continuación se observan en ambas curvas pequeñas discontinuidades en el desplazamiento de la punta, relacionadas probablemente con la nucleación y crecimiento de las distintas grietas observadas tras la indentación, seguidas de un salto brusco únicamente para la curva correspondiente a la muestra con mala adhesión (A). Se está investigando la correlación entre las discontinuidades en las curvas carga frente a desplazamiento de la punta y los agrietamientos de las muestras. Asimismo se está desarrollando un modelo para la obtención de datos cuantitativos, como por ejemplo la energía de fractura de la intercara G_{ic} , a partir del ensayo de nanoindentación en sección transversal.

En la Figura 6 se muestran las curvas carga frente a desplazamiento del indentador para los 5 ensayos realizados sobre la muestra A. Las micrografías de las superficies de las muestras se presentan en la Figura 7. Estas micrografías muestran el frente de la grieta en la película exterior de SiO_2 y por tanto permiten observar la extensión de la zona delaminada en dirección perpendicular a la sección transversal ensayada. La longitud de las grietas de delaminación se mide sobre la sección transversal (flechas blancas en las micrografías, Tabla I) y presentan una dispersión del 10% (considerando el intervalo de confianza al 95%).

(a)

(b)

Figura 4. Micrografías electrónicas de barrido de (a) un ensayo de nanoindentación en sección transversal para la muestra B y (b) detalle de la zona señalada con un círculo blanco.

4. CONCLUSIONES

El ensayo de nanoindentación en sección transversal proporciona una medida cualitativa, rápida y reproducible de la adhesión entre películas delgadas, y por lo tanto es una herramienta útil tanto para el diseño de nuevos circuitos integrados como para controlar la calidad de un proceso de fabricación. Una de las principales ventajas de esta técnica es que, al contrario que para el resto de los ensayos de adhesión desarrollados hasta la fecha, no es necesario emplear ningún material adicional como resinas, películas de Cu, pegamentos, etc., para aplicar carga sobre las películas delgadas. Además, el MEB proporciona una observación directa de la grieta habiéndose observado para las muestras ensayadas diferencias significativas en los micromecanismos de fractura presentes en materiales con distintas adhesiones. Otras ventajas reseñables de esta técnica son su potencial aplicación a las estructuras más complejas de los circuitos integrados (resolución del posicionamiento en $X-Y = 0.5 \mu\text{m}$), y su sencilla extensión al caso de películas de espesor menor de $1 \mu\text{m}$, dado que la indentación se realiza sobre el sustrato de silicio.

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo ha sido realizado en el marco de un proyecto financiado íntegramente por Intel Co. (Hillsboro, Oregon, USA).

BIBLIOGRAFÍA

- W.C. Oliver y G.M. Pharr, 'An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments'. *J. Mater. Res.*, Vol.7, No. 6, 1564-83 (1992).
- W.D. Nix, 'Mechanical properties of thin films'. *Metall. Trans. A*, Vol.20A, 2217-45 (1989).
- R. F. Cook y G. M. Pharr, 'Indentation load-displacement behaviour during conventional hardness testing'. *J. Hard Mater.*, Vol. 5, 179-90 (1994).
- Q. Ma, J. Bumgarner, H. Fujimoto, M. Lane y R. H. Dauskardt, 'Adhesion measurement of interfaces in multilayer interconnect structures'. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol. 473, 3-14 (1997).
- M. Y. He, G. Xu, D. R. Clarke, Q. Ma y H. Fujimoto, 'The energy release rate for decohesion in thin multilayered films on substrates'. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol. 473, 15-20 (1997).
- M. Lane, R. Ware, S. Voss, Q. Ma, H. Fujimoto y R.H. Dauskardt, 'Progressive debonding of multilayer interconnect structures'. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol. 473, 21-26 (1997).
- K. Kendall, 'Interfacial cracking of a composite. Part 1. Interlaminar shear and tension'. *J. Mat. Sci.*, Vol. 11, 638-44 (1976).
- K. Kendall, 'The adhesion and surface energy of elastic solids'. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.4 (8), 1186-95 (1971).
- D. B. Marshall y A. G. Evans, 'Measurement of adherence of residually stressed thin films by indentation. I. Mechanics of interface delamination'. *J. Appl. Phys.*, Vol. 56 (10), 2632-8 (1984).
- C. Rossington, A.G. Evans, D. B. Marshall y B. T. Khuri-Yakub, 'Measurement of adherence of residually stressed thin films by indentation. II. Experiments with ZnO/Si'. *J. Appl. Phys.*, Vol. 56 (10), 2639-44 (1984).
- T.Y. Tsui, C.A. Ross and G. M. Pharr. *Mat. Res.*, 'Effects of adhesion on the measurement of thin-film mechanical properties by nanoindentation'. *Soc. Symp. Proc.* Vol. 473, 51-56 (1997).
- W.C. Oliver y J.B. Pethica. US Patent. No. 4848141 (1989).
- C. B. Ponton y R. D. Rawlings, 'Vickers indentation fracture toughness test. Part 1. Review of literature and formulation of standardised indentation toughness equations'. *Mat. Sci. and Tech.*, Vol.5, 865-72 (1989).
- M. S. Hu y A. G. Evans, 'The cracking and decohesion of thin films on ductile substrates'. *Acta metall.*, Vol. 37 (3), 917-25 (1989).
- H. E. Evans, 'Cracking and spalling of protective oxide layers'. *Mat. Sci. and Eng. A*, Vol 120, 139-46 (1989).
- J. B. Davis, H. C. Cao, G. Bao y A. G. Evans, 'The fracture energy of interfaces: an elastic indentation technique'. *Acta metall. Mater.*, Vol. 39 (5), 1019-24 (1991).

Figura 5. Curvas típicas carga frente a desplazamiento de la punta registradas durante dos ensayos de nanoindentación en sección transversal realizados sobre las muestras A y B.

Figura 6. Curvas carga frente a desplazamiento de la punta registradas durante los 5 ensayos de nanoindentación en sección transversal realizados sobre la muestra A (mala adhesión).

Figura 7. Micrografías electrónicas de barrido de los 5 ensayos de nanoindentación en sección transversal realizados sobre la muestra A tomadas sobre la superficie de la oblea depositada.