第 42 卷 第 1 期 金属学报 Vol.42 No.1
2006 年 1 月 1—5 页 ACTA METALLURGICA SINICA Jan. 2006 pp.1–5

亚微米厚铜薄膜的微观结构及疲劳损伤行为 *

张 滨 [1,2] 孙恺红 [1,2] 刘永东 [3] 张广平 [2]

1) 东北大学材料与冶金学院，沈阳 110004
2) 中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家 (联合) 实验室，沈阳 110016
3) Department of Electrical and Computer Engineering, University of Utah, Salt Lake City, UT 84110, USA

摘 要 在具有高弹性和力学稳定性的柔性基底上，用磁控溅射系统制备了亚微米厚铜薄膜，利用透射电镜 (TEM)、扫描电镜 (SEM) 电子背散射成像及 X 射线衍射 (XRD) 对铜薄膜进行了微观结构表征. 采用恒载荷幅控制研究了亚微米厚度铜薄膜的疲劳损伤行为. 结果表明：退火后的铜薄膜呈现强烈的 (111) 织构，薄膜中存在大量的微米、纳米尺度孪晶. 在恒载荷幅作用下，亚微米厚的薄膜不易产生疲劳挤出和微裂纹，疲劳裂纹容易在界面处萌生，孪晶附近的位错塞积及界面附近变形的不协调性导致了疲劳裂纹的产生. 而亚微米厚铜薄膜疲劳强度的提高来源于薄膜厚度、晶粒尺寸和孪晶尺寸三个微尺度的约束.

关键词 铜薄膜，亚微米尺度，疲劳，微观结构

中图法分类号 TG111. 8 **文献标识码** A **文章编号** 0412−1961(2006)01−0001−05

MICROSTRUCTURES AND FATIGUE DAMAGE OF SUBMICRON THICK COPPER FILMS

ZHANG Bin[1,2], *SUN Kaihong*[1,2], *LIU Yongdong*[3], *ZHANG Guangping*[2]

1) School of Materials & Metallurgy , Northeastern University, Shenyang 110004
2) Shenyang National Laboratory for Materials Science, The Institute of Metal Research, The Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016
3) Department of Electrical and Computer Engineering, University of Utah, Salt Lake City, UT 84110, USA

Correspondent: ZHANG Guangping, professor, Tel: (024)23971938, E-mail: gpzhang@imr.ac.cn

Supported by " One Hundred Talents Plan " of the Chinese Academy of Science, National Natural Science Foundation of China (No.50471081) and National Basic Research and Development Programme of China (No.2004CB619303)

Manuscript received 2005–05–11, in revised form 2005–08–24

ABSTRACT Submicrons thick Cu films were deposited on polyimide substrates with high elasticity and mechanical stability by a magnetron sputtering system. Microstructures of the Cu films were characterized by TEM, electron backscatter imaging of SEM as well as XRD technique. Fatigue damage behaviors of the submicron thick Cu films were investigated under constant load amplitude control. It was found that there exists a large number of micro/nanoscale twins in the annealed films and (111) texture formed in the films. Fatigue extrusions and cracking in the Cu films were suppressed under constant load amplitude control. The fatigue cracks dominantly initiate at the interfaces, where exist strong dislocation interaction at twin boundaries and deformation incompatibility near the interfaces. The enhance of fatigue strength of the submicron thick Cu films results from the constraints of three scales of film thickness, grain size and twin size.

KEY WORDS Cu thin film, submicron–scale, fatigue, microstructure

与金属铝相比，金属铜具有高导电性和低电迁移性，近年来已逐渐取代铝而被应用于集成电路的金属布线中. 随着超大规模集成电路及微电子机械系统 (MEMS) 中金属布线向超深亚微米技术的发展，金属铜布线线宽已向几十纳米制造技术发展 [1]. 铜薄膜由于在制备或使用过程中往往受到热循环应力的作用而出现破坏 [2,3]，因此，近几年来引起人们的广泛关注. 有关金属薄膜特别是铜薄膜的疲劳已开展了一些研究工作 [4−10]，这些工作表明：金属薄膜的疲劳强度随薄膜厚度的减小而明显升高 [7−9]；具有

* 中国科学院 "百人计划"、国家自然科学基金项目 50471081 及国家重点基础研究发展规划项目 2004CB619303 资助
收到初稿日期：2005–05–11，收到修改稿日期：2005–08–24
作者简介：张 滨，女，1965 年生，副教授

微米厚度的铜薄膜中出现了类似于块体材料中出现的“挤出 / 侵入”疲劳损伤行为 [8−10]；在挤出附近观察到了位错墙结构 [10]，薄膜厚度和晶粒尺寸成为控制薄膜疲劳损伤的重要因素. 近来，人们发现具有亚微米厚度的铜薄膜疲劳损伤明显与界面行为有密切的关系 [11]. 在亚微米厚薄膜的疲劳损伤研究中，除了考虑薄膜中的晶粒尺寸和薄膜厚度的影响外，还应该考虑薄膜中其它微观结构与界面行为的影响.

为了进一步澄清界面相关的疲劳损伤行为，本文报道了具有亚微米厚度铜薄膜的微观结构及其在恒应力幅作用下疲劳损伤行为，并对疲劳损伤机理进行了探讨.

1 实验方法

实验用金属铜薄膜采用磁控溅射方法制备在高弹性的 125 μm 厚的聚酰亚胺 (Polyimide) 基底上. 制备前基底经高纯度丙酮清洗之后，采用 Ar 离子清洗数分钟. 磁控溅射的本底真空为 3×10^{-5} Pa，直流偏压为 20 V，Ar 气压力为 0.5 Pa，溅射速率为 20 nm/min. 所制备的疲劳样品形状如图 1 所示. 制备后的薄膜试样被真空密封在玻璃管中，在 100 ℃下经过 3 h 的退火. 铜薄膜的厚度分别为 0.3, 0.8 μm. 为了与微米厚度薄膜进行比较，采用同样方法制备了 3.2 μm 厚的铜薄膜. 分别采用 TEM(JEOL 2000FXII) 、SEM(LEO Supra 35) 的背散射电子成像及 X 射线 θ–2θ 衍射分析对铜薄膜的微观结构进行了表征.

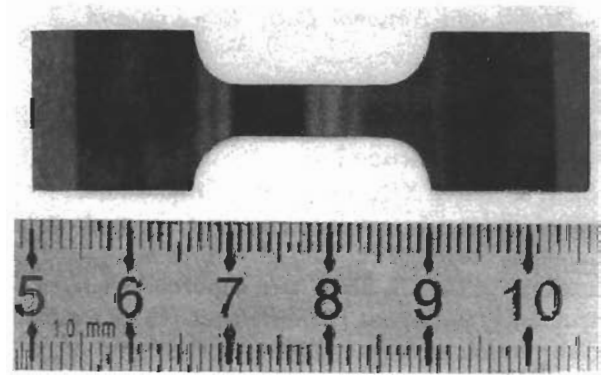

图 1 聚酰亚胺基底上的铜薄膜疲劳试样

Fig.1 Fatigue sample of thin Cu film deposited on a polyimide substrate by magnetron sputtering

疲劳实验在 MTS 微力实验系统上进行，采用恒总载荷幅控制，实验频率为 1 Hz. 由于在施加载荷范围内聚合物薄膜基体具有良好的弹性，因此，对带基底的薄膜施加循环拉 – 零载荷时，薄膜由于基底在卸载时的弹性收缩，会对金属薄膜产生循环拉 – 压载荷. 疲劳样品经 2×10^4 周次的循环加载后取下，利用 SEM 的背反射电子成像功能观察铜薄膜疲劳后的表面损伤行为. 铜薄膜的 TEM 观察样品制备方法为：裁剪下直径为 3 mm 的铜薄膜圆片，最后采用离子减薄仪从基底一面进行减薄.

2 实验结果与讨论

2.1 微观结构

图 2 给出了厚度分别为 0.3 和 3.2 μm 的铜薄膜的 TEM 像. 可以看出，铜薄膜的晶粒尺寸在微米至亚微米范围，晶粒中存在大量的退火微孪晶，孪晶的宽度在亚微米至几十纳米范围. 根据铜薄膜的 TEM 观察，测量了不同厚度铜薄膜的晶粒尺寸，如图 3 所示. 由图可以看出，随着薄膜厚度的减小，晶粒尺寸减小. 对铜薄膜进行的 X 射线衍射分析表明，薄膜中主要为 (111) 织构，在较厚的薄膜中，还出现了部分 (100) 织构，当薄膜厚度减小到亚微米时，薄膜呈现 (111) 织构，如图 4 所示.

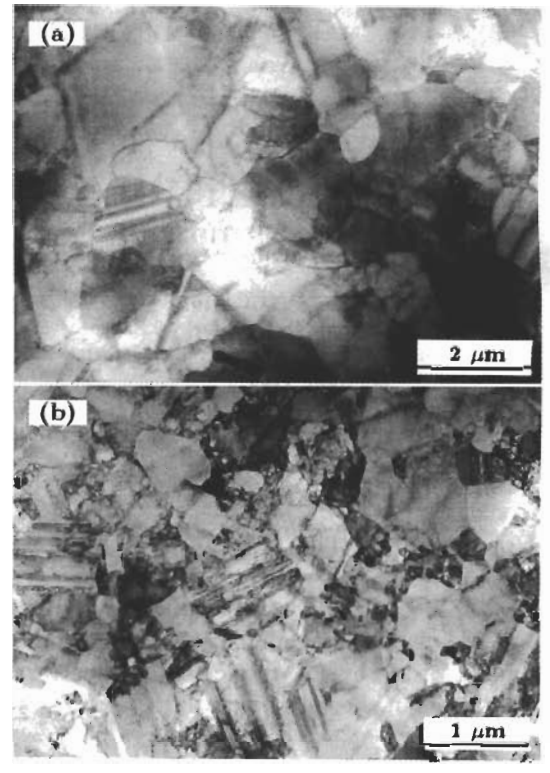

图 2 铜薄膜微观结构的 TEM 观察

Fig.2 TEM morphologies of Cu films annealed at 100 ℃ for 3 h with thicknesses of 3.2 (a) and 0.3 μm (b), showing grain size decreased and microtwins increased with decreasing the film thickness

通常，由磁控溅射制备在基底上的金属薄膜往往通过形成许多小岛或晶核逐渐生长而成. 由于晶粒同时在基底上各处形核长大，因此，当制备较薄的薄膜时，薄膜中的晶粒还没有来得及长大就互相抵触，导致形成较小的晶粒. 而由于厚薄膜中晶核有相对长的时间长大及发生原子扩散，往往形成较大的晶粒. 尽管如此，溅射得到的铜薄膜的晶粒尺寸仍然很小，这些亚稳态晶粒经高温退火后会发生晶粒长大. 晶粒长大的驱动力主要来源于以下三个能量

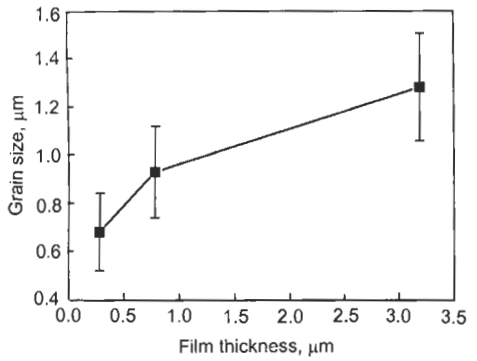

图 3　铜薄膜的晶粒尺寸随薄膜厚度的变化

Fig.3　Grain size in Cu films as a function of film thickness

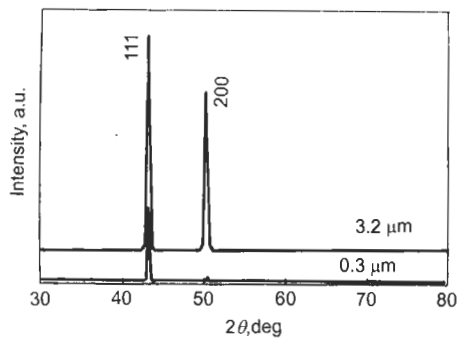

图 4　铜薄膜的 XRD 衍射谱

Fig.4　XRD patterns of Cu films with two thicknesses, obvious (111) texture appeared in thinner film

变化的贡献 [12]：(1) 晶粒长大导致的晶粒面积减小所引起的能量变化；(2) 长大晶粒引起的薄膜表面能和界面能的减小；(3) 由于热应变引起的弹性应变能密度的改变. Weihnacht 和 Bruckner[13] 计算表明：当薄膜厚度很薄时，表面能和界面能的最小化将起主导作用，并导致 (111) 取向晶粒优先长大，即图 4 所看到的 0.3 μm 厚薄膜中 (111) 织构. 而当薄膜较厚时 (3.2 μm)，薄膜中 (100) 取向晶粒的长大倾向增加.

2.2　疲劳损伤的表面观察

图 5 为利用 SEM 电子背散射功能得到的铜薄膜表面疲劳损伤形貌照片. 可以看出，在 3.2 μm 厚的薄膜中，疲劳损伤行为主要表现为晶粒内部发生大量的滑移，某些晶粒中形成较宽的疲劳挤出，如图 5a 中箭头所示，从而导致材料表面粗糙度增加，这一趋势与文献中报道的 3.0 μm 厚的薄膜结果 [10] 较相似. 高倍观察发现，晶粒中的疲劳挤出裂纹可以发生在平行于孪晶的滑移面上，也可以发生在其它具有高剪切应力取向的有利滑移面上，如图 5b 中箭头所指. 与 3.2 μm 厚度薄膜相比，0.8 μm 厚的薄膜中形成的疲劳挤出数量减少，且挤出宽度也小，如图 5c 所示. 局部晶粒中的疲劳裂纹附近几乎没有疲劳挤出，裂纹沿孪晶界和晶界萌生的倾向增大，如图 5d 的高倍观察所示. 在同样的载荷幅和循环周次下，0.3 μm 厚的薄膜中出现较少的疲劳损伤，如图 5e 所示. 材料表面几乎没有疲劳挤出损伤，疲劳微裂纹往往萌生于孪晶界处，如图 5f 箭头所指.

通过比较微米和亚微米厚度铜薄膜的疲劳损伤程度，可以明显看出亚微米厚度的薄膜疲劳抗力较高. 其主要原因在于：(1) 铜薄膜的厚度减小到亚微米尺度后，薄膜中的位错运动受到明显的约束，位错运动所需切应力随薄膜厚度的减小而增加 [2]；(2) 晶粒尺寸在亚微米量级，根据 Hall–Petch 强化机制，超细晶粒也将对疲劳强度的提高产生贡献；(3) 亚微米厚度薄膜中还存在高密度的孪晶，且孪晶尺度也在亚微米范围，从而使得有效的晶粒尺寸进一步减小. 另外，孪晶对位错运动的阻碍作用也会提高疲劳强度.

Zhang 等 [11] 对 0.2 μm 厚度的铜薄膜疲劳行为的研究表明：接近纳米尺度薄膜的疲劳损伤主要表现为与界面有关的疲劳损伤行为，例如沿晶界和孪晶界萌生疲劳微裂纹. 在本研究的 0.3 μm 厚的薄膜中，也发现了类似疲劳损伤现象. 通过 SEM 电子背散射模式观察发现，这些微裂纹可以萌生在宽度只有 100 nm 至几十纳米左右的孪晶附近.

2.3　疲劳损伤的 TEM 观察

图 6a, b 分别为 0.8 和 0.3 μm 厚薄膜的 TEM 照片. 在微米厚的薄膜中，除了可以观察到典型的位错结构外 [10]，还可以看到晶粒内部位错发生强烈交互作用导致的位错缠结. 但对于 0.8 μm 厚的薄膜，位错墙结构消失，位错在孪晶附近塞积. 特别是在 0.3 μm 厚度薄膜中，晶粒内的位错数量明显减少，裂纹在孪晶界萌生.

上述结果表明，孪晶界对位错运动的阻碍导致孪晶界附近高的应力集中，特别是在孪晶与晶界相交处，由于孪晶与基体间弹性性能的不匹配也导致了该处高的应力集中，裂纹容易沿相交界面处萌生 (如图 6b). 可见，薄膜内位错受到的约束不仅指薄膜厚度和晶粒尺寸产生的约束，同时也包括晶粒内部微孪晶的约束效应. 在这些约束作用下，疲劳所需的塑性应变累积不能够通过像块体材料和微米厚度薄膜中位错间交互作用形成位错墙结构来承担，因此，界面将起到重要的作用. 界面相关的损伤行为 (如沿界面的疲劳裂纹萌生与扩展等) 将是亚微米厚度金属薄膜疲劳损伤与破坏的主要方式. 这些界面相关的破坏与失效行为将对超深亚微米技术中的膜基器件的可靠性产生更大的威胁 [14]. 因此，设计与制备具有优化界面结构的微尺度材料将具有重要的应用意义.