

平成21年 5月22日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19760488

研究課題名 (和文) 測定応力による電子デバイス接合界面強度の定量評価

研究課題名 (英文) Evaluation of interface delamination strength on the electronic device by stress measurement

研究代表者

長谷川 誠 (HASEGAWA MAKOTO)

横浜国立大学・大学院工学研究院・特別研究教員

研究者番号：50376513

研究成果の概要：電子デバイスなどでは、内部および外部からの力学的負荷による界面の剥離が問題となっている。本研究では、電子デバイスを模擬した材料として Cu と単結晶  $\text{Al}_2\text{O}_3$  あるいは多結晶  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の接合体を作製し、力学的負荷を接合体に加えた時に剥離に影響を与える界面に平行および垂直な方向の応力成分を求めた。応力成分は EBSD 法を用いて得られる  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の結晶方位の情報とレーザーを用いた蛍光分光法により得られるピークの位置情報より算出することができた。また、界面が剥離している状態においても応力成分を求めることができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,700,000	0	2,700,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	180,000	3,480,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：強度・靱性・界面・応力成分・結晶方位・蛍光分光法

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 電子デバイスでの微細加工技術は、ナノテクノロジーの進歩とともに著しく進歩している。最近の電子デバイスは、金属と誘電体 (絶縁体) の接合部分自体が数 10 nm オーダーと小さくなるとともに、そこでの界面剥離の発生によってデバイスの信頼性が著しく損なわれることが問題となっている。

従来、界面剥離や破壊の問題に関しては、エネルギー基準での破壊である剥離の進展に主眼が置かれてきた。しかし、界面での剥

離の開始については、剥離した界面の存在を仮定しないとエネルギーの条件が用いられないため、応力基準の破壊を用いる必要がある。これまでの剥離の開始に影響を与える応力に着目した国内・国外の研究は、主に、3つに分類される。1つ目は、理論的解析から剥離開始に着目した研究であり、Cu/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  などの接合体について、第一原理計算や分子動力学を用いて解析されている。2つ目は、マクロな大きさの試験片を用いて接合界面が完全に離れたときの荷重をもとに接合界

面強さを測定する手法であり、3つ目は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を対象にレーザーを用いた蛍光分光法による平均応力の測定である。

いずれも、理論的解析やマクロ的な手法、平均的な応力測定を用いた実験的評価によるものであり、局所的な場所による応力状態や応力分布を実験的に求めて剥離現象との関連を調べた報告は極めて少なく、不明な点が多い。これが信頼性向上にあたっての障害となっているため、界面近傍において局所領域での応力測定から応力状態などを実験的に求め、剥離の開始を定量的に解釈する手法の確立が強く求められている。

## 2. 研究の目的

(1)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ のレーザーを絞った蛍光分光法による局所応力測定と電子線後方散乱(EBSD)法による結晶方位測定との両方の情報をもとに $\text{Al}_2\text{O}_3$ の応力状態を実験的に求める手法の開発を行う。

(2) Cuと単結晶あるいは多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ との接合体を作製し、接合体に応力を負荷した状態での界面近傍での $\text{Al}_2\text{O}_3$ の応力状態、分布を調べる。また、界面に剥離を導入した接合体についても、き裂先端近傍について応力状態、分布を調べ、測定結果から界面剥離機構や剥離条件の解明を行う。

## 3. 研究の方法

### (1) 多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の応力状態決定手法

①結晶方位測定手法：多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位を電子線後方散乱法(EBSD)法により高い信頼性を得るためには、結晶方位が既知の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 単結晶について、その表面をカーボン、金、プラチナなどの導電性物質を異なる条件で蒸着し、EBSDパターンが最も精度良く検出でき、正しい結晶方位が判定されるコーティング条件を求める。得られたコーティング条件を多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ に適用し、得られた結晶方位情報に基づく結晶粒組織図とサーマルエッチングにより得られた組織を比較し、場所による正しい情報が得られていることを確認する。

②応力成分算出手法：蛍光分光法はレーザーを絞って $\text{Al}_2\text{O}_3$ に照射し、発生する $\text{Al}_2\text{O}_3$ 中に含まれる $\text{Cr}^{3+}$ からの2つの蛍光ピーク( $R_1$ ,  $R_2$ ピーク)の位置変化量( $\Delta v_1$ ,  $\Delta v_2$ )から $\text{Al}_2\text{O}_3$ の応力を求めるもので、応力成分は結晶方位の情報をもとに算出する。測定時の空間分解能は $1\mu\text{m}$ 程度と結晶粒1つに対応するため、測定領域内を単結晶と仮定することができる。結晶方位が既知の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 単結晶試料の中心部に穴を開けた後、無負荷状態から力学的に負荷を加える。一般に、穴の近傍は、穴のふちが負荷方向に対して垂直あるいは平行かによって、応力成分が異なることが知られ

ている。そこで、それらの領域を蛍光分光法で応力を測定することにより、応力成分が算出できることを実験的に確認する。

③結晶方位測定手法と応力成分分離手法の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 多結晶体への適用：多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ についても結晶方位測定手法と応力成分算出手法を適用し、多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ に対して、それぞれの結晶粒における応力成分を算出できることを確認する。

### (2) Cu/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ 接合体の作製

Cu/単結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ およびCu/多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 接合体は高真空ホットプレスによって作製する。融点直下の1323 Kで24時間、3MPaの応力を負荷して接合させることで健全な接合体を作製する。接合後、剥離や未接合領域の存在の確認はデジタルマイクロスコープで観察して行う。

### (3) 接合体の負荷による応力状態の決定

①試験片作製：試験片を作製する手法を確立する。試験片はDCDC(Double cleavage drilled compressive)試験片である。界面への予き裂は、試料に繰り返し負荷を加えることで導入する。また、Cu/多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 接合体の場合には、容易に界面剥離が観察できないことから、デジタルマイクロスコープで観察しながら導入する。

②接合体の応力状態の決定：予き裂未導入および導入したCu/単結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 試験片の穴付近の接合界面近傍について、無負荷状態から力学的に負荷を加え、応力成分算出手法を適用し、界面近傍での応力状態、分布を明らかにする。また、予き裂未導入および導入したCu/多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 試験片についても各結晶粒の結晶方位を測定後、同様な手法で界面近傍での応力状態、分布を明らかにする。

## 4. 研究成果

### (1) $\text{Al}_2\text{O}_3$ における結晶方位測定

単結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位測定においてチャージを抑えるために、金やプラチナ、カーボンコーティングを行った。チャージは発生しないため、コーティングは有効であったが、EBSDパターンが検出できない場合もあった。薄く均一の厚さにコーティングを制御することが難しいことに由来すると考えられる。そのため、チャージの発生の可能性は高くなるが、コーティング無しでも測定を試みた。その結果、コーティング無しでも研磨の状態さえ良ければ、加速電圧を低くしてチャージを減らすことでEBSDパターンが検出でき、結晶方位測定が可能であることが示された。この情報を基にコーティング無しで多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位測定を行った。図1は多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位をタングステンフィラメントのSEMで測定した場合の一例である。チャージはほとんど見られなかった。ビーム径が太いため、小さい結晶粒は正しく測定す

ることが出来なかったが、結晶粒が大きい場合には、正しく結晶方位を決定することができた。それゆえ、FE-SEMを用いて、ビーム径が細かい場合について測定を行った。

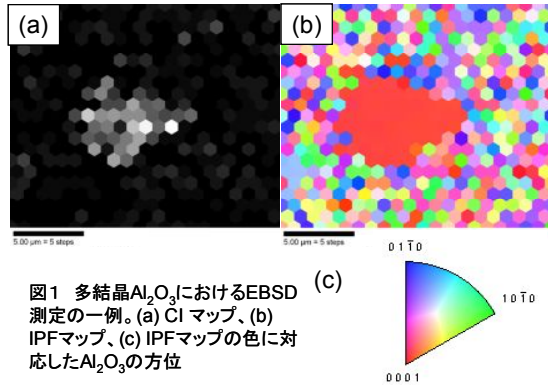


図1 多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ におけるEBSD測定の一例。(a) CIマップ、(b) IPFマップ、(c) IPFマップの色に対応した $\text{Al}_2\text{O}_3$ の方位

図2はFE-SEMでEBSD法により $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位を測定した一例である。ビーム間隔はおよそ50nmで測定した。酸化により、優先成長して生成した $\text{Al}_2\text{O}_3$ であるため、z軸方位に結晶粒が伸びた形状をしており、結晶方位はz軸に(0001)面がおおむね揃っていることが確認できる。一方、x軸やy軸側では優先方位が有るようには見られなかった。このように、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶方位を正しく測定

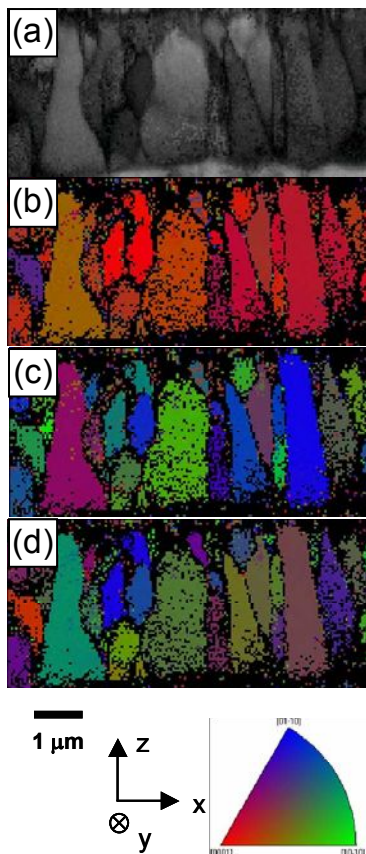


図2  $\text{Al}_2\text{O}_3$ をFE-SEMを用いてEBSD法により結晶方位を測定した場合の一例。(a) IQマップ、(b) z方向からの方位、(c) y方向からの方位、(d) x方向からの方位

する手法が確立できた。

## (2) 応力成分の算出

レーザーを絞り、空間分解能を $1\mu\text{m}$ 程度とし、2つの蛍光ピークの位置変化( $\Delta v_1, \Delta v_2$ )を測定することで、一つの結晶粒における応力を測定することができる。かつ同一結晶粒の結晶方位を測定することで、それぞれのピークでのピーク位置変化量と応力関係 $\Delta v_{ij} = \Pi_{ij} \sigma_{ij}$ から、異方性を利用して各結晶粒における応力成分を、得られる式①、②から算出することが可能となる。ここで、 $\sigma_y \approx 0$ と仮定している(表面のため)。

$$\Delta v_1 = \Pi_{11}^{(1)} \sigma_x + \Pi_{12}^{(1)} \sigma_z \quad (1)$$

$$\Delta v_2 = \Pi_{21}^{(2)} \sigma_x + \Pi_{22}^{(2)} \sigma_z \quad (2)$$

この手法により、剥離発生に最も関係のある応力成分および応力値を特定することができる。

結晶方位が既知の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 単結晶試料の中心部に穴を開けた後、無負荷状態から力学的に負荷を加え、穴のふち近傍について応力を測定した結果、理論とほぼ同様の傾向を示した。これにより、結晶方位が既知であれば、蛍光分光法により応力成分が算出できるということが確認できた。また、多結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 試料についても同様な手法により応力を測定した。単結晶 $\text{Al}_2\text{O}_3$ と同様な傾向を示し、応力分布が測定できることが確認できた。しかし、焦点を表面にしているため、得られる情報は表面の情報であり、試料内部の情報ではない。試料表面は平面応力状態であり、内部は平面ひずみ状態にある。そして、破壊や剥離は内部の平面ひずみ状態で本来は進行する。そのため、レーザーの焦点を内部に移動させ、内部深さとピークシフト量との関係を確認した。その結果が図3である。深くなるにしたがって、 $R_1, R_2$ のピークシフト量はいずれも大きくなり、あるところで一定となるように思われる。レンズと試料がぶつかるため、深さが $8\mu\text{m}$ 以上は測定できなかった。このため、多結晶試料、特に結晶方位が優先方位を持たない場合には、試料内部の応力成分を

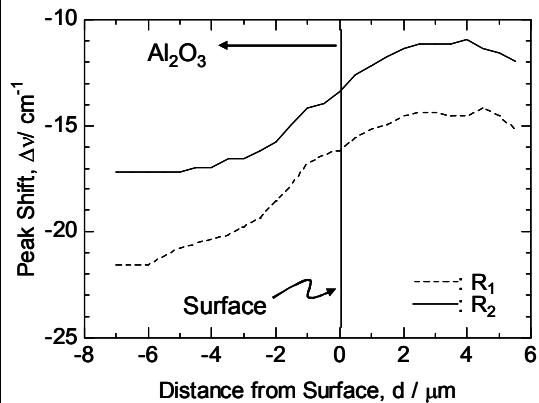


図3 試料深さにもなうピークシフト量の変化

求めることが難しいという弱点があることが明らかとなった。しかし、単結晶や優先方位を持つ場合には、応力成分を決定できる有効な手段であり、今現在では、国内外唯一の方法であると考えられる。

(3) Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接合体および試験片の作製  
融点直下の 1323 K で 24 時間、3MPa の応力を負荷することで、剥離領域の観察されない、健全な接合材料を作製することができた。図 4 に示す DCDC 試験片については、穴の加工が難しく、使用するダイヤモンドドリルの径を徐々に大きくすることで、所望の穴径に加工した。その後、疲労負荷を加えて剥離を

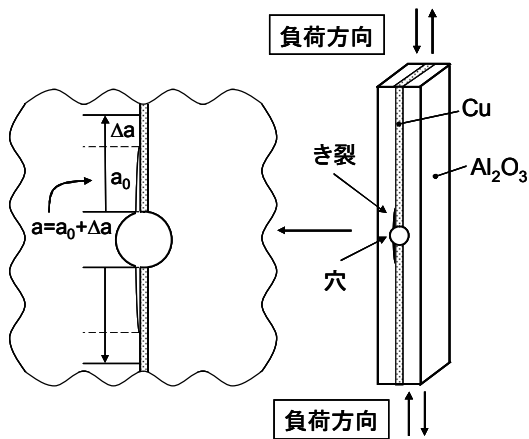


図4 DCDC試験片形状と負荷方向

発生させた時の試料の一例を図 5 に示す。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 単結晶側から観察した結果であり、右側が接合領域、左側が剥離した領域である。接合領域では、部分的な剥離は見られず、健全な接合状態にあり、また、剥離領域にはブリッジングなどの接合領域は見られないことが確認できた。多結晶 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> での接合体の場合は、正面から確認することはできないが同様に健全に接合体が作製でき、疲労負荷に

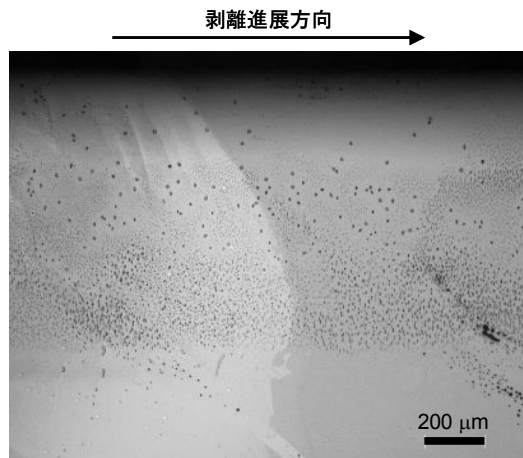


図5 接合体における剥離進展の一例

より剥離させることができたと考えられる。

#### (4) 接合体の応力状態

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の結晶方位分布が図 2 とほぼ同じ材料について蛍光分光法により 2 つのピークの位置を特定し、その情報を基に応力成分を求めた。レーザーの焦点は表面に合わせて測定している。図 6 は負荷が加わっている Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の応力成分を測定した一例である。(a) は測定した領域の組織であり、(b) は x 方向、(c) は z 方向の応力分布を示している。y 方向は表面を測定しているため、応力が開放されていると考えゼロとした。下に凸の領域では x 方向に圧縮、z 方向に引張りの応力が働いており、また、上に凸の領域では x 方向に引張り、z 方向に圧縮の応力が働いていることがわかる。そして、下に凸の領域では z 方向に引張りが働いているため、界面が剥離しつつあることが (a) の組織写真から見て取れる。

このように、従来は静水圧状態を仮定することにより平均応力しか求めることができなかったが、結晶方位の情報を用いることで、応力成分を分離して、各応力成分での応力分布を求めることができるようになった。このように、界面での剥離発生が応力成分を用いて理解できるようになった。この手法は国内

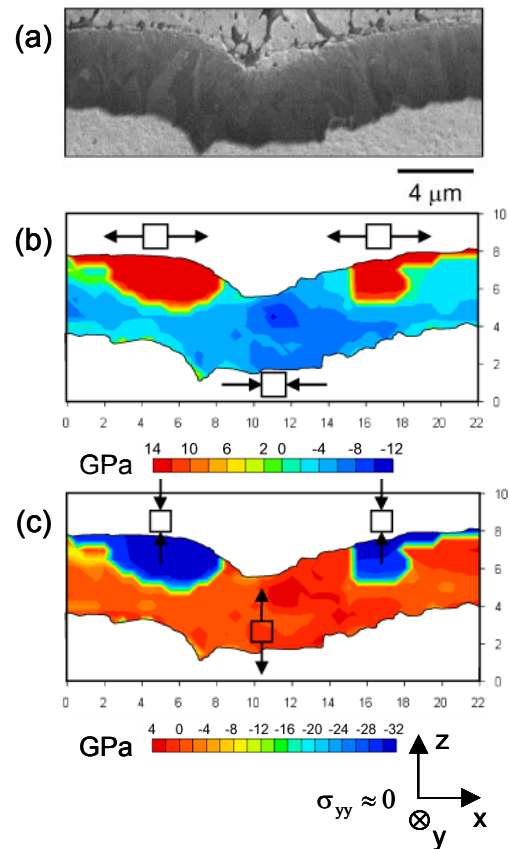


図6 負荷を加えたAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>から応力成分を算出した一例。(a) SEM組織、(b) x方向の応力分布、(c) z方向の応力分布

外を問わず、試みられていない手法であるため、今後、他の試料系での剥離の発生を理解する上で重要な手法となると考えている。ただし、試料内部の応力成分は、試料の深さによってピークシフト量が異なるため、今後は試料内部の応力状態についても検討する必要があると考えられる。また、深さ方向は単結晶か多結晶であっても優先方位が有ることが条件となるため、その点が弱点となりうる。しかし、応力成分をこの手法以外にきちんと求められない現在では、有効な手法であると考えられる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

長谷川 誠 (HASEGAWA MAKOTO)

横浜国立大学・大学院工学研究院・特別研究教員

研究者番号：50376513

##### (2) 研究分担者

##### (3) 連携研究者

