

文章编号: 1001-4888(2014)02-0133-07

确定微纳米尺度金属薄膜拉伸分叉点的实验研究^{*}

张冠华, 王世斌, 李林安, 王志勇, 贾海坤, 何巍

(天津大学 机械工程学院力学系, 天津 300072)

摘要: 为了确定微纳米尺度金属薄膜的拉伸分叉点, 本文使用磁控溅射镀膜技术, 在 PI(聚酰亚胺)基底上沉积 500nm 厚的铜薄膜, 制作薄膜/基底结构拉伸试件。在单轴拉伸作用下, 通过测量拉伸加载过程中铜薄膜的电阻变化情况, 得到薄膜电阻随应变变化的关系, 并与理论推导的结果进行对比分析, 从而确定了塑性阶段理论曲线与实验曲线分离的点, 即铜薄膜的分叉点。以此为基础, 研究了铜薄膜在单轴拉伸作用下的分叉行为。研究结果表明, 沉积于 PI 基底上的微纳米尺度铜薄膜在单轴拉伸下, 经过弹性变形阶段后, 很快就发生分叉, 然后产生破坏, 而塑性变形阶段和局部化阶段较短; 弹性阶段薄膜的电阻变化速率很小, 塑性阶段薄膜的电阻变化速率稍有增大, 而当薄膜表面开始出现微裂纹后, 电阻变化速率急剧增大。

关键词: 微纳米薄膜; 分叉; 电阻; 电阻电测法

中图分类号: O344.7

文献标识码: A

DOI: 10.7520/1001-4888-13-128

0 引言

微纳米薄膜的应用前景十分广阔, 随着电子信息技术和制造业的飞速发展, 微纳米薄膜在机械零部件、电子工业、生物、医疗、纺织等领域的应用越来越多, 如电子纺织^[1]、传感器皮肤^[2]等。这些薄膜器件在工作过程中, 根据其结构、功用的不同, 会承受不同方式的载荷。当微纳米薄膜在承受拉伸或弯曲载荷时, 会产生变形及分叉, 甚至出现损伤和断裂。微纳米薄膜的分叉和损伤直接影响到元器件的性能和寿命^[3]。因此, 对微纳米薄膜拉伸分叉行为的研究至关重要。微纳米薄膜拉伸变形及其分叉的研究对改善微电子机械系统(MEMS)的力学性能, 促进电子工业的迅猛发展有着重要的意义。

薄膜的拉伸变形及分叉问题一直都受到研究者们的关注, D. Bigoni^[4]等对沉积在基底上的薄膜在界面柔度影响下的分叉模式进行了理论分析。V. B. Shenoy^[5]等研究了应变硬化塑性材料的平面应变模型在拉伸条件下的动态颈缩分叉现象。在前人的基础之上, T-S Park^[6]等利用 CGS 干涉技术, 测得薄膜/基底试样的离面位移导数场, 使用大变形理论对分叉行为进行分析, 研究表明, 表面形状从球面变成椭球面分叉。Huang Shiqing^[7]等利用分叉理论研究柔性薄膜的自发性失稳问题, 分析了表面能、薄膜厚度、材料性能等因数对表面形变的影响。然而, 通过有效的实验手段来确定微纳米尺度薄膜的拉伸分叉点仍然是一个尚未解决的问题。

微纳米尺度薄膜拉伸变形及分叉的研究主要针对薄膜/基底模型, 薄膜/基底结构拉伸载荷下的力学行为在理论分析、数值模拟和实验研究上已经取得了一系列成果。值得一提的是 Z. Suo 课题组^[8,9], 他们对薄膜/基底结构在拉伸作用下的变形及分叉进行了实验、仿真以及理论研究。T. Li^[8]等针对薄膜拉伸分叉问题进行了系统的研究, 研究表明, 聚合物基底上的金属薄膜结构受到一定程度的拉伸时会

^{*} 收稿日期: 2013-08-23; 修订日期: 2013-11-08

基金项目: 973 国家重点基础研究项目(2012CB937500), 国家自然科学基金(110721742)资助

通讯作者: 王世斌(1966—), 男, 教授, 博导。主要研究领域: 纳米尺度薄膜材料力学性能。E-mail: shbwang@tju.edu.cn

产生断裂,这往往并不是明显的脆性断裂造成的,而是由应变局部化导致的,如颈缩。Lu Nanshu^[9] 通过实验和有限元模拟分析得出改变膜厚可使聚合物基底上金属薄膜的破坏应变达到最大化,且破坏过程中薄膜存在两种破坏形式:沿晶破裂和穿晶破裂。同时,其他研究人员在微纳米薄膜受拉伸载荷作用下的力学行为方面也取得了很多可观的成果。O. Akogwu^[10] 等分析了 PDMS 基底上纳米尺度金膜的大应变变形和破坏行为,发现膜厚、残余应力、表面粗糙度和晶粒尺寸及晶粒方向均对膜的性能有很大影响,以及薄膜电阻在循环载荷作用下疲劳破坏的不可逆性。S. Djaziri^[11] 等研究了薄膜/基底结构在可控二轴拉伸加载的情况下,纳米薄膜的变形分叉机理。K. Sidler, M. Frantlovic^[12,13] 研究了基底材料、界面粗糙度以及拉伸应力对薄膜导体电参数的影响。但在薄膜拉伸变形及分叉的理论研究中,材料参数的确定、界面模型的修正等,都需要实验研究的直接支持,而确定薄膜的分叉点是解决这一问题的关键。

本课题组在前期的研究工作中,Men^[3,14] 等人对薄膜/基底结构拉伸分叉行为进行了有限元数值模拟,发现对于幂硬化材料,不同硬化关系匹配出现不同的变形模式,变形模式有三种:均匀变形、单一颈缩和多个颈缩。本文在前人的研究基础上,针对如何确定微纳米尺度金属薄膜分叉点这一问题,通过实验测量提出了一种电阻电测法,通过实验手段确定了金属薄膜的拉伸分叉点。该方法适用于所有导电薄膜分叉点的确定,为完善微纳米尺度薄膜拉伸变形及分叉的研究提供了新的实验手段和技术。

1 基本原理

利用金属的导电性,通过测量金属薄膜在拉伸过程中电阻的变化,得到一条金属薄膜电阻与应变的关系曲线,然后与理论曲线的弹性阶段和塑性阶段进行对比分析,确定分叉点。通常情况下,金属薄膜/基底结构的拉伸过程要经过四个阶段:弹性阶段、塑性阶段、局部化阶段和破坏阶段,但进入局部化阶段前金属薄膜发生分叉,因此,只需对比分析实验结果与理论曲线的弹性阶段和塑性阶段得到分离点,即可确定为分叉点。

薄膜/基底结构理论模型如图 1 所示。微纳米尺度金属薄膜沉积在 PI 基底上,如图 1(a)所示。加载过程中薄膜/基底结构受单轴拉力作用,金属薄膜在受载荷作用过程中,薄膜的外形尺寸变化如图 1(b)所示。其中 L_0 、 W_0 、 h_0 分别为金属薄膜加载前的原始长、宽、高, L 、 W 、 h 分别为受载过程中金属薄膜的长、宽、高,中间厚度变化部分为金属薄膜分叉后出现的变形局部化区域。

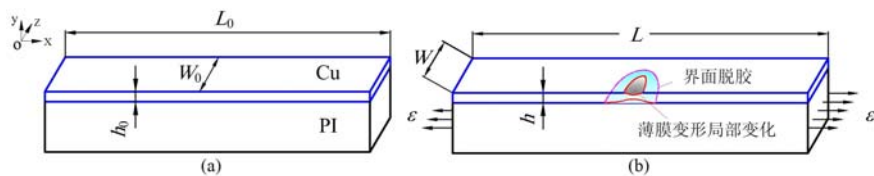


图 1 (a) 薄膜/基底结构理论模型, (b) 拉伸过程中薄膜外形尺寸变化示意图

Fig. 1 (a) Theoretical model of film/substrate system, (b) Schematic of the change in overall dimensions under tension

通常情况下,金属薄膜/基底结构的拉伸过程要经过以下四个阶段。

(1) 弹性阶段:假设弹性阶段金属薄膜均匀变形,金属薄膜的电阻率不变,则薄膜电阻的变化值为:

$$\Delta R = R - R_0 = \rho \frac{L}{S} - \rho \frac{L_0}{S_0} = \rho \frac{(1 + \epsilon) L_0}{(1 - \nu \epsilon) W_0 (1 - \nu \epsilon) h_0} - \rho \frac{L_0}{W_0 h_0} = R_0 \left[\frac{1 + \epsilon}{(1 - \nu \epsilon)^2} - 1 \right] \quad (1)$$

式中, R_0 为薄膜初始电阻; ρ 为该金属的电阻率; ν 是金属薄膜的泊松比; ϵ 为金属薄膜在长度方向上的平均应变,则 $\epsilon_y = \epsilon_z = -\nu \epsilon$ 。

(2) 塑性阶段:弹性阶段后,继续对试件加载,进入塑性变形阶段。假设此时金属薄膜都进入塑性变形阶段,此阶段薄膜的体积不变,薄膜的初始电阻为 R_p ,初始平均应变为 ϵ_p ,体积为 $V = SL$,塑性阶段电阻的变化值为 ΔR_p ,应变增量为 $\Delta \epsilon_p$,则有

$$\Delta R_p = R - R_p = \rho \frac{L}{S} - \rho \frac{L_p}{S_p} = \rho \frac{L^2}{V} - \rho \frac{L_p^2}{V} = R_p \left[\frac{(1 + \Delta \epsilon_p)^2 L_p^2}{L_p^2} - 1 \right] = R_p [(1 + \Delta \epsilon_p)^2 - 1] \quad (2)$$

如图2所示,塑性阶段金属薄膜在长度方向的平均应变为 $\epsilon = \epsilon_p + \Delta\epsilon_p$, 其中 ϵ_p 为塑性阶段薄膜的初始平均应变; $\Delta\epsilon_p$ 为塑性阶段薄膜的应变增量。薄膜的电阻值为 $R = R_p + \Delta R_p$, 其中 R_p 为塑性阶段薄膜的初始电阻; ΔR_p 为塑性阶段薄膜电阻的变化值。经坐标变换可得金属薄膜电阻的变化值随应变变化的关系式为:

$$\Delta R = R - R_0 = R_p + \Delta R_p - R_0 = R_p(1 + \epsilon - \epsilon_p)^2 - R_0 \quad (3)$$

(3) 局部化阶段:在塑性阶段,某些金属薄膜存在初始缺陷或不均匀的地方首先出现分叉,进入局部化阶段,金属薄膜不再产生均匀变形,局部截面面积显著减小,由于金属薄膜的局部化变形引起薄膜的电阻变化明显增大。

(4) 破坏阶段:金属薄膜产生局部变形后,紧接着在薄膜表面产生微裂纹,随着应变的增大,裂纹持续扩展,直至贯穿试件的整个宽度方向,并伴有新的微裂纹产生和扩展,此时薄膜的电阻增大更为明显。但金属薄膜沉积在基底上,由于基底的束缚作用,金属薄膜并不会马上完全断裂。

2 实验设备及方案

本文主要研究薄膜/基底结构在单轴拉伸载荷作用下,铜薄膜拉伸分叉点的确定方法。实验中使用原位加载装置对试件进行拉伸加载,采用高倍光学显微镜观察试件表面形貌及其变化。

2.1 试件

本实验所用的试件采用磁控溅射镀膜工艺制作。试件选用 $125\mu\text{m}$ 厚的聚酰亚胺薄膜作基底,镀膜之前将基底浸泡在酒精里进行超声波清洗。将清洗完的基底进行干燥处理后,放置到镀膜仪的真空腔内。抽真空后,先使用 Ar 离子在 320W 的功率下预溅射 5min,达到溅射清洗基底表面的作用。随后在基底上溅射一层 500nm 厚的金属铜薄膜。镀膜时,真空度为 $5 \times 10^{-4}\text{Pa}$,溅射功率为 120W,溅射气体为 Ar,溅射气压为 0.5Pa,溅射速率为 13.3nm/min,溅射时间为 38min。

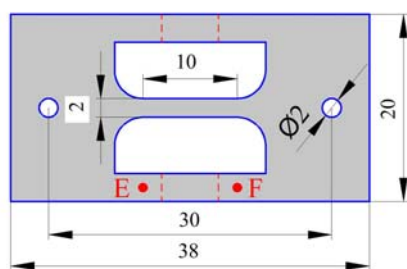


图3 薄膜/基底结构示意图(所有尺寸单位均为 mm)

Fig. 3 Schematic of film/substrate system
(all dimensions in mm)

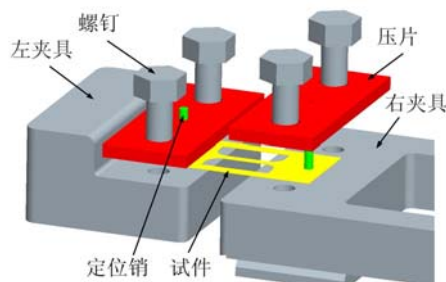


图4 试件安装示意图

Fig. 4 Specimen installation

试件外形尺寸如图3所示,图中 E、F 两点连接全桥电路中的 E、F 两个电极。试件中间设计成圆弧过渡可以避免应力集中。两边的支撑条设计有两个作用:其一,用于引出电极,在试件拉伸变形过程中支撑条部分没有变形,避免了试件变形对电极处电阻的影响;其二,用以加强整个试件的强度,减少试件在转移和安装过程中对试件的破坏。如图4所示,试件安装时,先将左、右夹具上的螺钉拧出,取下夹具上的压片,调整左、右夹具之间的距离,通过试件上两个直径为 $\Phi 2$ 的定位孔,用定位销将连接好电极的试件(安装示意图中未画出电极)固定在夹具上,然后放上夹具压片,用螺钉拧紧,将压片固定,最后取出定位销。对试件加载前先用剪刀将试件中部两侧的支撑条沿图3中虚线剪断,使测量值仅为试件中间标距长度上电阻的变化值,避免支撑条电阻对它的影响。实验过程中将原位加载装置(如图5所示)

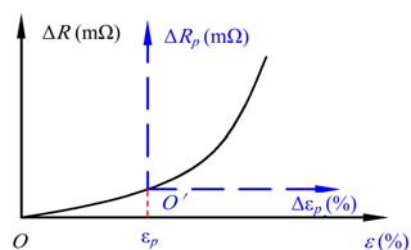


图2 坐标变换图

Fig. 2 Schematic of coordinate transformation

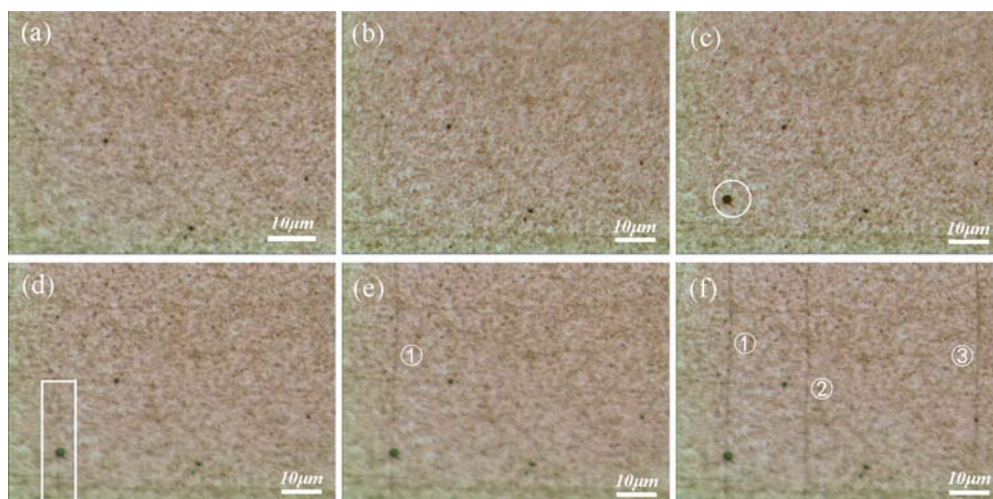


图7 平均应变分别为0%, 0.52%, 0.73%, 0.856%, 0.859%和1.64%时,
光学显微镜下的薄膜表面形貌图,加载方向为水平方向。

Fig. 7 Micrographs of films stretched by 0%, 0.52%, 0.73%, 0.856%, 0.859% and 1.64%, respectively.

Loading is along horizontal direction for all micrographs.

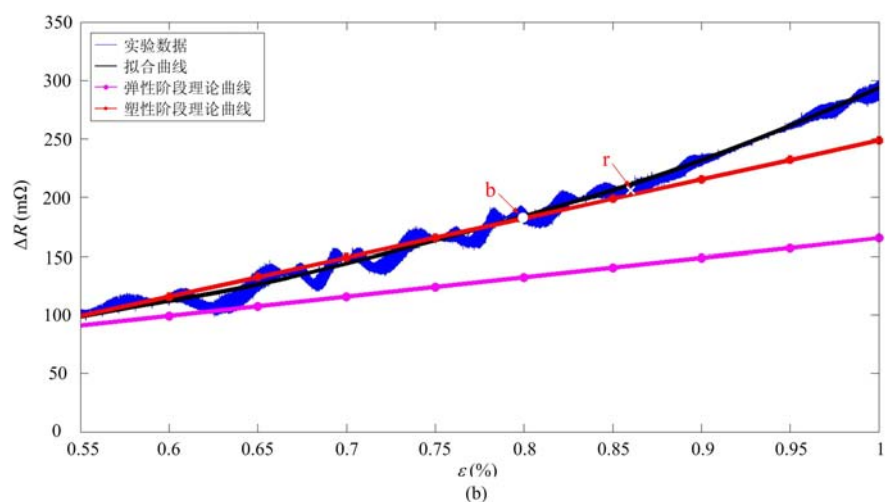
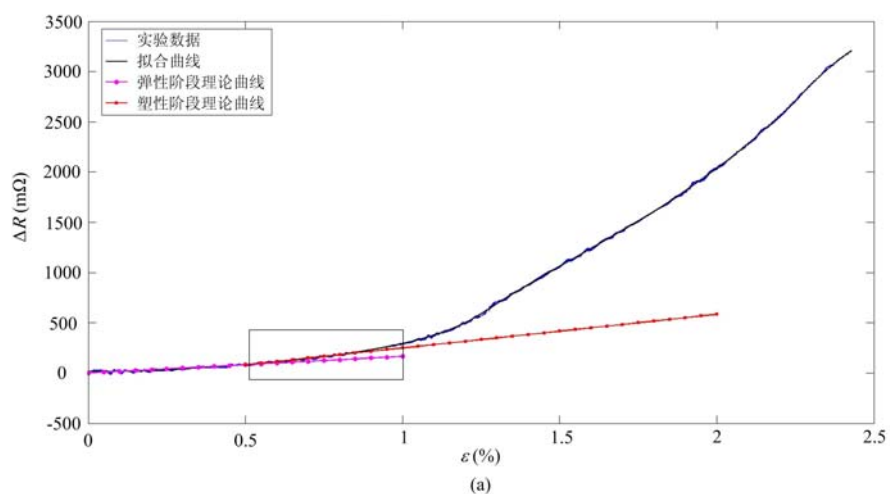


图8 电阻变化—应变曲线和局部放大图

Fig. 8 The curve of changes in resistance-strain and local amplification figure

从实验数据和理论解的对比可知,在金属薄膜拉伸变形过程中,薄膜电阻在弹性阶段变化很小,且实验曲线与理论曲线基本一致。当进入塑性阶段后,薄膜的电阻变化速率增大,实验曲线很快与塑性阶段理论曲线分离,并且塑性阶段较短。金属薄膜的分叉点即为塑性阶段理论曲线与实验曲线的分离点 b ,如图 8(b)所示。

图 8(b)为图 8(a)中矩形框内分叉点附近的局部放大图,曲线上画叉的点 r ,是试件表面开始出现微裂纹的点。正如上述实验现象所看到的,从试件表面出现缺陷到薄膜表面发现微裂纹的过程中,应变的变化很小,微纳米铜薄膜分叉后很快便破坏。这与 Z. Suo 课题组研究的结果基本一致,即对于弱硬化膜来说,破坏应变与弹性极限相差不大^[8]。由此可知,微纳米尺度铜薄膜拉伸变形时,塑性变形阶段较短,即在经过弹性阶段后,很快就开始分叉然后产生破坏。

使用电阻电测法进行多次实验,得到的实验结果见表 1。从实验结果可以看出,虽然每个试件的分叉点应变值不同,但各次实验得到的结果基本一致。导致分叉点应变值不同的主要原因为:一是实验过程中存在实验误差,具有普遍性和偶然性;二是试件镀膜时并不能保证每个试件都完全一样,因而初始状态存在一定差异,导致每个试件测试的实验结果不完全相同。

表 1 实验结果

Tab. 1 The experimental result

试件	初始电阻 R_0 (Ω)	分叉点应变值
1	16.5	0.79%
2	17.4	0.85%
3	16	0.78%
4	19	0.94%

4 结论

本文研究了沉积在 PI 基底上铜薄膜的拉伸分叉现象。使用磁控溅射技术在聚酰亚胺基底上沉积铜薄膜,并对所得试件进行单轴拉伸加载实验,对薄膜在拉伸载荷下的分叉点确定进行研究。研究表明:

(1) 微纳米尺度铜薄膜在受单轴拉伸载荷时的力学性能不同于宏观尺寸下的力学性能。微纳米尺度铜薄膜在经过弹性阶段后,很快就发生分叉,然后产生破坏,其塑性变形阶段和局部化阶段很短,而宏观尺度下铜薄膜在单轴拉伸变形时,塑性阶段的应变增加值远比弹性阶段的应变增加值要大得多,当塑性变形达到一定程度时才产生局部化,最后断裂。

(2) 微纳米尺度铜薄膜在单轴拉伸过程中,弹性阶段薄膜的电阻变化速率很小,塑性阶段薄膜的电阻变化速率稍有增大,当薄膜表面开始出现微裂纹后,电阻变化速率显著增大。

(3) 通过测量铜薄膜电阻值随加载应变的变化情况,得到薄膜电阻值与应变之间的关系,并对薄膜/基底结构拉伸变形时弹性阶段和塑性阶段进行了理论推导,得到弹性阶段和塑性阶段的薄膜电阻值与平均应变之间的关系。通过理论与实验的对比分析,确定了塑性阶段理论曲线与实验曲线分离的点,即铜薄膜的分叉点,从而提出了一种用电阻电测法确定微纳米尺度金属薄膜分叉点的新方法。

参考文献:

- [1] Wagner S, Bonderover E, Jordan W B, et al. Electrotexiles: Concepts and Challenges[J]. International Journal of High Speed Electronics and Systems, 2002, 12:391—399.
- [2] Xu Yong, Jiang Fukang, Newbern S, et al. Flexible shear-stress sensor skin and its application to unmanned aerial vehicles[J]. Sensors and Actuators A, 2003, 105:321—329.
- [3] MEN Yutao, WANG Shibin, LI Linan. Numerical Analysis of Tensile Bifurcation Phenomenon of a Film Bonded to a Substrate [J]. Transactions of Tianjin University, 2012, 18(2):141—148.
- [4] Bigoni D, Ortiz M, Needleman A. Effect of interfacial compliance on bifurcation of a layer bonded to a substrate [J]. Int J Solids Structures, 1997, 34:4305—4326.
- [5] Shenoy V B, Freund L B. Necking bifurcations during high strain rate extension[J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1999, 47:2209—2233.
- [6] Park T-S, Suresh S, Rosakis A J, et al. Measurement of full-field curvature and geometrical instability of thin

- film-substrate systems through CGS interferometry[J]. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 2003, 51: 2191–2211.
- [7] Huang Shiqing, Feng Xiqiao. Spinodal surface instability of soft elastic thin films[J]. *Acta Mechanica Sinica*, 2008, 24:289–296.
- [8] Li T, Xi Z C, Lacour S P, et al. Delocalizing strain in a thin metal film on a polymer substrate[J]. *Mechanics of Materials*, 2005, 37:261–273.
- [9] Lu Nanshu, Suo Zhigang, Vlassak J J. The effect of film thickness on the failure strain of polymer-supported metal films[J]. *Acta Materialia*, 2010, 58:1679–1687.
- [10] Akogwu O, Kwabi D, Midturi S, et al. Large strain deformation and cracking of nano-scale gold films on PDMS substrate[J]. *Materials Science and Engineering B*, 2010, 170:32–40.
- [11] Djaziri S, Faurie D, Bourhis E L, et al. Deformation modes of nanostructured thin film under controlled biaxial deformation[J]. *Thin Solid Films*, 2013, 530:30–34.
- [12] Sidler K, Vazquez-Mena O, Savu V, et al. Resistivity measurements of gold wires fabricated by stencil lithography on flexible polymer substrates[J]. *Microelectronic Engineering*, 2008, 85:1108–1111.
- [13] Frantlovic' M, Jokic' I, Savu V, et al. Effects of tensile stress on electrical parameters of thin film conductive wires fabricated on a flexible substrate using stencil lithography[J]. *Microelectronic Engineering*, 2012, 98: 230–233.
- [14] 门玉涛, 王世斌, 李林安 等. 固体薄膜拉伸分叉行为的研究进展[J]. *实验力学*, 2013, 28(1):36–48 (MEN Yutao, WANG Shibin, LI Linan, et al. Research Progress of Bifurcation Behavior of Solid Film Subjected to stretch[J]. *Journal of Experimental Mechanics*, 2013, 28(1):36–48(ji Chinese))
- [15] Gruber P A, Jochen B, Onuseit F, et al. Size effects on yield strength and strain hardening for ultra-thin Cu films with and without passivation: A study by synchrotron and bulge test techniques[J]. *Acta Materialia*, 2008, 56: 2318–2335.

Experimental Investigation on Determining the Bifurcation of Micro-Nano Scale Metallic Thin Film Subjected to Tensile Loading

ZHANG Guan-hua, WANG Shi-bin, LI Lin-an, WANG Zhi-yong, JIA Hai-kun, HE Wei

(Department of Mechanical Engineering Mechanics, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract: In order to determine the bifurcation of micro-nano scale metallic thin film subjected to uniaxial tensile loading, using magnetron sputtering technology, copper film with 500nm thickness was deposited on a PI(polyimide) substrate to manufacture stretching specimens with film/substrate structure. Under uniaxial tensile loading, the relation between film resistance and film strain can be obtained through measuring the resistance variation of copper film during tensile loading. Experimental data were compared with theoretical result. Thus, it is determined that the separation point between theoretical curve and experimental curve on plastic stage is exactly the bifurcation point of copper film. Based on above argument, the bifurcation behavior of copper thin film subjected to uniaxial tensile loading was studied. Results show that the bifurcation of micro-nano scale copper film deposited on PI substrate and subjected to uniaxial tensile loading occurs soon after elastic deformation stage, which causes film damage and shorter plastic deformation stage and localized stage. There is very small increasing rate of resistance on elastic stage and slightly larger increasing rate of resistance on plastic stage; when micro crack occurs on film surface, resistance increasing rate rapidly increases.

Keywords: micro-nano thin film; bifurcation; resistance; electrical resistance measurement method