

金属薄膜沿陶瓷基界面脱胶的 微尺度力学研究^{*}

魏悦广

(中国科学院力学研究所 LNM 开放实验室, 北京 100080)

摘要 采用考虑微尺度效应的塑性应变梯度理论研究弹塑性(非线性)脱胶现象. 针对金属/陶瓷界面非线性脱胶机理, 分别采用两种断裂过程区模型进行分析. 通过将所得结果应用于铜/二氧化硅的实验结果中, 获得对应该体系的微尺度值及无位错核厚度值.

关键词 金属薄膜 非线性脱胶 微尺度力学

薄膜脱胶是微电子器件集成块破坏和封装失效的主要破坏特征, 由此将引起巨大的经济损失. 因此, 该项研究一直是国际力学和材料科学界的热门研究课题^[1,2]. 近年来的研究发现, 裂纹沿金属/陶瓷界面扩展时, 将表现出某些奇特现象, 而由传统的弹塑性理论无法解释. 如, 强张力现象^[3], 由实验结果观测到, 裂纹沿金属/陶瓷界面扩展时, 裂尖前方的分离应力可达到材料屈服应力的较大倍数(几倍甚至十几倍), 但由传统弹塑性理论预测出的相应值最大只能达到三四倍^[4,5], 其中文献[5]采用传统弹塑性理论研究了薄膜的非线性脱胶问题, 证明了界面脱胶时的分离应力最大只能达到材料屈服应力的三四倍. 上述奇特现象将对传统弹塑性理论的应用范围提出挑战. 可见, 对薄膜脱胶的研究, 既具有较大的经济价值, 也具有重要的科学研究价值.

近年来, 国际上提出和发展了一种新理论, 即考虑微尺度效应的塑性应变梯度理论^[6], 这一理论的突出特点是, 它在传统弹塑性理论的框架下, 考虑了应变梯度效应. 应变梯度项与应变项在本构关系中的匹配通过引入一刻画应变梯度之强度的特征尺度(length scale)来实现. 通过对材料微试样的弯曲实验^[7]和对微压痕实验结果的分析^[8]发现, 这一长度参量的显著影响区在微米量级(0.1~5 μm), 故也称为微尺度. 文献[9]完善了塑性应变梯度增量理论并将其应用于分析 I 型裂纹的弹塑性定常扩展情况, 结果显示裂纹扩展时的分离应力可以达到屈服应力的 10 倍以上.

本文对微尺度的塑性应变梯度增量理论对金属薄膜沿陶瓷基界面的非线性脱胶问题进行分析. 采用两种常用的描述裂纹弹塑性扩展的断裂过程区模型, 即粘聚力模型(简称 EPZ 模型^[10])和无位错核模型(简称 SSV 模型^[11]). 并将分析结果应用于铜/二氧化硅的实验结果, 获得对应该体系的微尺度值及无位错核厚度值.

1999-08-10 收稿

^{*}国家自然科学基金(批准号:19891180-01)和中国科学院基础研究基金资助项目

1 薄膜脱胶基本问题描述

在金属薄膜沿陶瓷基界面的脱胶问题中,薄膜可处理为弹塑性材料,陶瓷基为弹性材料. 由于薄膜中的残余应力(或称失配应力) σ_R 作用使得薄膜脱胶(或界面裂纹扩展). 在定常扩展情况下(将对此情况进行分析),在裂纹尖端附近弹塑性材料中,将出现主塑性区并随裂尖一起运动;主塑性区扫过的区域为塑性卸载区. 如图 1(a) 所示. 考虑平面应变情况. 引起薄膜脱胶的总能量为

$$G_{crit} = \frac{1 - \nu^2}{2} \frac{h^2 \sigma_R^2}{E}, \tag{1}$$

其中 E, ν 为薄膜的 Yang 氏模量和 Poisson 比, σ_R 为薄膜中的残余应力. 在分析裂纹弹塑性扩展时,通常采用两种描述断裂过程区的模型——粘聚力模型 (EPZ 模型) 和无位错核模型 (SSV 模型),如图 1(b) 所示. 这两种模型的优点之一是它们可将总能量分成两部分,即

$$G_{crit} = G_0 + P, \tag{2}$$

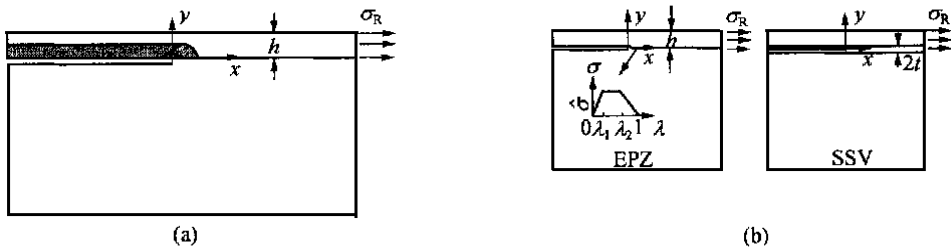


图 1 主塑性区和卸载区以及 EPZ,SSV 两种模型

(a) 金属薄膜沿陶瓷基界面的脱胶,主塑性区和卸载区;(b) 描述裂纹弹塑性扩展时的两种模型,EPZ 模型和 SSV 模型

其中 G_0 为裂纹扩展时裂尖的分离能量, P 为非弹性变形所消耗的总能量,包括主塑性区贮存的能量和卸载区消耗的能量之和.

1.1 EPZ 模型

如图 1(b) 所示,在断裂过程区,给出了粘聚力(或称分离应力)与张开位移的关系. 最大分离应力为 σ^* ,张开位移比

$$= \sqrt{\left(\frac{t_n}{c_n}\right)^2 + \left(\frac{t_t}{c_t}\right)^2}, \tag{3}$$

其中 t_n, t_t 分别为断裂过程区裂纹面的法向和切向相对位移,上标 c 表示其临界值. $= 1$ 为裂纹扩展的临界状态. 通常定义一面力势函数^[12]

$$W(n, t) = \int_0^c \sigma(n, t) d, \tag{4}$$

导出在断裂过程区内面力和张开位移之间的关系式为

$$T_n = \frac{\partial W}{\partial t_n} = \frac{(\sigma)}{c_n} \frac{t_n}{c_n}, T_t = \frac{\partial W}{\partial t_t} = \frac{(\sigma)}{c_t} \frac{t_t}{c_t}. \tag{5}$$

当 $= 1$ 时,由(4)式可得裂纹面的分离能量为(参考图 1(b))

$$G_0 = (1/2) \sigma^* \left(\frac{c_n}{2} + \frac{c_t}{2} - l \right). \tag{6}$$

在计算时,常取 $\hat{c}_i = \hat{c}_n$,除此之外,计算结果对 ν_1, ν_2 的取值不敏感. 在本文的计算中,取 $\nu_1 = 0.15, \nu_2 = 0.5$. 所以,EPZ 模型有两个独立的重要参数 (σ_0, \hat{c}_n) , \hat{c}_n 可通过(6)式由这两个独立参数表达.

1.2 SSV 模型

采用 SSV 模型时, σ_0 值可直接通过计算 J 积分获得. 其中 J 积分路径位于无位错核的弹性层内且环绕裂纹尖端,如图 1(b)所示. SSV 模型的两个重要的独立参数为 (σ_0, t) .

1.3 能量参数关系

为分析简单起见,本文忽略由于薄膜与基体间的模量失配对结果的影响,取 $\nu_s = E, \nu_s = \nu$ 并考虑薄膜的单向拉伸应力应变关系服从幂硬化规律

$$\begin{aligned} \sigma &= \sigma_y / E, \text{ 当 } \epsilon \leq \epsilon_y, \\ \sigma &= (\sigma_y / E) (\epsilon / \epsilon_y)^{1/N}, \text{ 当 } \epsilon > \epsilon_y. \end{aligned} \quad (7)$$

对于金属薄膜,残余应力 σ_R 为薄膜的屈服应力 σ_y [2]. 这样,薄膜脱胶时临界能量与材料参数、模型参数以及微尺度 l 间的参数关系可表示为

$$\begin{aligned} \frac{G_{\text{crit}}}{\sigma_0} &= \frac{1}{6} \frac{h}{R_0} = f \left(\frac{E}{\sigma_y}, \nu, N, \frac{\sigma_y}{\sigma_0}, \frac{l}{R_0} \right) \quad (\text{EPZ 模型}), \\ \frac{G_{\text{crit}}}{\sigma_0} &= \frac{1}{6} \frac{h}{R_0} = g \left(\frac{E}{\sigma_y}, \nu, N, \frac{t}{R_0}, \frac{l}{R_0} \right) \quad (\text{SSV 模型}), \end{aligned} \quad (8)$$

上式中引入了一个特征长度参数

$$R_0 = \frac{E \sigma_0}{3 (\sigma_y)^2 (1 - \nu^2)}, \quad (9)$$

它是小范围屈服情况塑性区的尺寸; l 为塑性应变梯度理论的微尺度值,其值大小反映应变梯度效应的强弱; N 为薄膜材料的幂硬化指数. 参数关系(8)式的确切表达式可通过将塑性应变梯度增量理论应用于薄膜脱胶的分析中获得. 关于塑性应变梯度理论及其增量理论的详细介绍请参考文献[6,9].

2 薄膜脱胶的数值求解方法

考虑薄膜与基体界面裂纹的定常扩展问题. 由于塑性应变梯度增量本构关系为率无关形式,故在定常扩展情况下,可将该增量本构关系转化为全量形式的偏微分方程(在主塑性区)和全量形式的线性应力应变关系(在卸载区和弹性区) [13]. 事实上,在定常扩展情况,所有场量的增量关系可表示为(以塑性应变张量增量为例)

$$\dot{\epsilon}_{ij}^p = -\dot{a} \frac{\partial \epsilon_{ij}^p}{\partial x_1}, \quad (10)$$

其中 \dot{a} 为裂纹的扩展速度, x_1 为原点镶嵌在裂纹顶端并指向裂尖运动方向的坐标. 将有关诸如(10)式形式的关系代入率无关增量本构关系,可得主塑性区应力应变关系对 x_1 的偏微分方程组,与裂纹扩展速度 \dot{a} 无关.

采用有限元方法求解这样的偏微分方程组,一个有效的方法是在主塑性区和卸载区设计等高度的单元带以便在迭代求解过程中对 x_1 进行数值积分. 在塑性应变梯度理论中,由于考

虑了位移二阶导数项(或称应变梯度项)的贡献,故一般说来传统的位移有限元方法将失效,需要采用协调的纯位移导数单元进行计算。但对于 I 型裂纹弹塑性问题,采用 9 节点位移等参元可得到有效的计算结果^[9]。而对弹塑性薄膜的脱胶情况,裂纹尖端的混合度($\hat{\gamma}_{tip}$)随着 $\hat{\gamma}_y$ (EPZ 模型)或者 R_0/t (SSV 模型)的增大急速趋于 0 (I 型)^[5],故本文采用 9 节点位移等参元进行计算,数值积分点采用 2×2 的 Gauss 分布。

3 结果及其分析

考虑到铜薄膜,在本文的计算中采用 $E/\sigma_Y = 300$, $\nu = 0.3$, $N = 0.1$ 的材料参数值。考查薄膜脱胶总能量与界面分离能量比 G_{crit}/Γ_0 随模型参数 $\hat{\gamma}_y$ (EPZ 模型)或者 R_0/t (SSV 模型)以及材料微尺度 l/R_0 的变化规律;并结合铜/二氧化硅的实验结果,预测出薄膜脱胶时的分离应力 $\hat{\sigma}$ 值、无位错核厚度 t 值以及材料微尺度 l 值。

图 2 给出了脱胶时薄膜层的主塑性区形状及大小。该图为采用 EPZ 模型得到的结果。由于采用 SSV 模型得到的结果与之完全类似,故未列出。由图 2 可知,考虑应变梯度效应时的主塑性区形状及大小与不考虑时相比略有改变。从图中所列情况可看出,主塑性区的大小已达到薄膜厚度的 $1/2$,故薄膜脱胶为大范围屈服时的界面裂纹扩展问题。

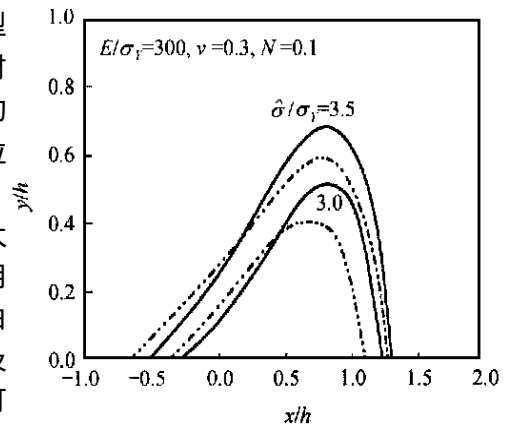


图 2 薄膜脱胶时的主塑性区形状
实线为 $l/R_0 = 0.0$, 虚线为 $l/R_0 = 0.3$

图 3(a) 给出了采用 EPZ 模型计算得到的能量比随最大分离应力以及不同微尺度变化的参数曲线。由图可知,随着微尺度值的增大,即随着应变梯度强度的提高,界面裂纹扩展时的最大分离应力将增大。如,当能量比达到 10 倍时,并当 $l/R_0 = 1.0$ 时,分离应力值将增大大约 2.5 倍。由图可知,界面粘合强度越高,即 $\hat{\gamma}_y$ 值越大,脱胶时所需总能量 G_{crit} 越大,在残余应力相同的情况下,由 (8) 式可知薄膜的临界厚度 h_{crit}

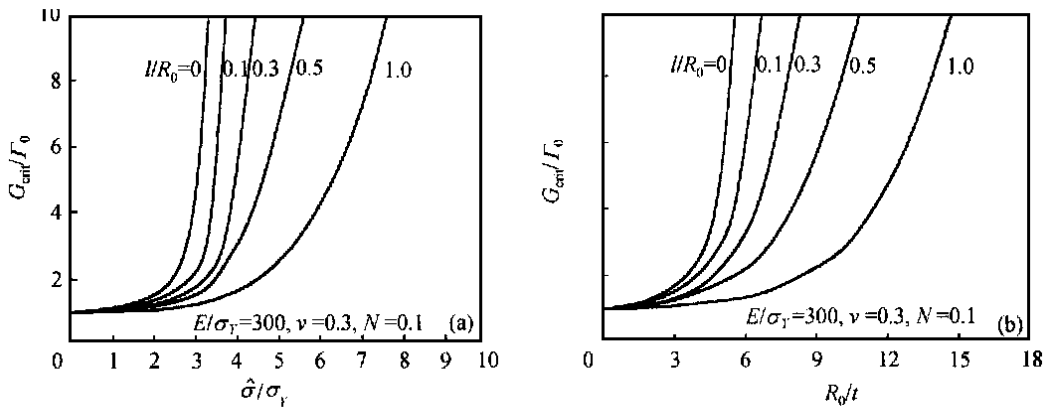


图 3 薄膜脱胶时总能量与裂尖分离应力和无位错核厚度间的参数关系
(a) EPZ 模型结果, (b) SSV 模型结果

越大.

图 3(b) 给出了采用 SSV 模型计算得到的薄膜脱胶时的能量比随模型参数 t (无位错核厚度) 以及微尺度值的变化曲线. 对比图 3(b) 与图 3(a) 可看出, 两种模型得到的结果非常相似, SSV 模型参数 R_0/t 的作用与 EPZ 模型参数 $\hat{\gamma}$ 的作用非常相似, 如果在图 3(b) 中将参数 R_0/t 近似用 $2\hat{\gamma}$ 替代, 则将近似得到图 3(a) 的结果. 由图 3(b) 可知, 随着 t 值的减小, 脱胶所需总能量增大, 即界面强度提高, 则可以说强界面无位错核的厚度较小. 另外由 (8) 式可知, 在薄膜残余应力相同的情况下, t 越小对应薄膜脱胶的临界厚度越大.

4 铜/二氧化硅脱胶实验及其微尺度预测

有了图 3(a) 及 (b) 所示的薄膜脱胶问题的参数曲线, 再结合实验结果, 可预测出对应 EPZ 模型和 SSV 模型的参数值 ($\hat{\gamma}$, t) 以及材料的微尺度值 l .

大量的金属薄膜/陶瓷基界面脱胶实验结果^[1,2,14]表明, 脱胶时薄膜中的残余应力 (或屈服应力) 的大小与薄膜厚度成反比, 可近似为与其厚度幂次方的倒数成线性关系. 在此, 结合文献[14]关于铜/二氧化硅的实验结果进行分析. 图 4 为铜薄膜的屈服应力随其厚度变化的实验结果, 则屈服应力与厚度 $1/2$ 次方倒数可近似为一直线关系

$$\sigma_y = \sigma_y^0 \left[1 + \sqrt{h_0/h_{Cu}} \right], \tag{11}$$

其中拟合参数 (σ_y^0 , h_0) 如图 4 所示. 将 (11) 式代入 (8) 式的第 1 式可得

$$\frac{G_{crit}}{\sigma_y^0} = f \left(\frac{E}{\sigma_y^0}, \nu, N, \frac{\hat{\gamma}}{\sigma_y^0 \left[1 + \sqrt{h_0/h_{Cu}} \right]}, \frac{l}{R_0} \right). \tag{12}$$

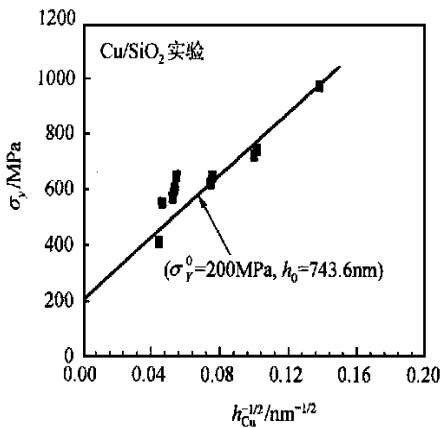


图 4 铜薄膜屈服应力与厚度的关系为实验结果, —为拟合曲线

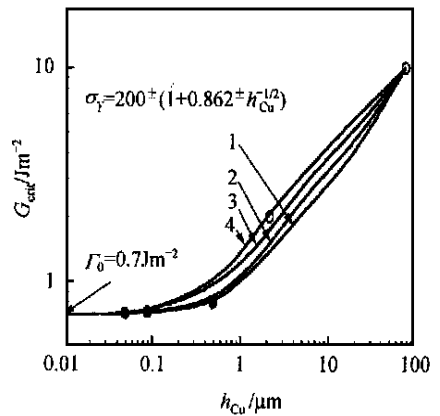


图 5 界面脱胶时总能量随薄膜厚度的变化 (预测结果和实验的对比)

1 为 $\hat{\gamma}$, $l/R_0 = (0.76, 0.0)$, 2 为 $\hat{\gamma}$, $l/R_0 = (1.00, 0.3)$, 3 为 $\hat{\gamma}$, $l/R_0 = (1.24, 0.5)$, 4 为 $\hat{\gamma}$, $l/R_0 = (1.75, 1.0)$

由 (12) 式及图 3(a) 的结果, 可得图 5 中 4 种情况的预测结果. 图中也给出了文献[14]的实验结果. 实验结果是从两种不同的界面处理工艺中获得的, 一种为界面的干燥处理 (evaporated,

结果对应图中的黑点)^[14],另一种为粘结扩散界面处理(diffusion bonded,结果对应图中的圆圈)^[14],其中后一种处理方法获得了更好的界面强度.

通过对比图 5 中的预测结果与实验结果,可以得到下述几个方面的信息:

(1) 当薄膜厚度较小时($h_{Cu} < 0.1 \mu m$),图 5 中所有结果都一致,无论是弱界面还是强界面,界面韧性均较低,塑性变形对界面断裂韧性的贡献可忽略.

(2) 随着薄膜厚度的增加,界面强度 $\hat{\sigma}$ 与微尺度 l 的关系近似为一直线,如图 6 所示. 不考虑应变梯度效应对应于弱界面. 随着微尺度的增加,最大分离应力将增大. 这与文献[9]对考虑应变梯度 I 型裂纹弹塑性定常扩展所得到的结论一致.

(3) 考虑塑性应变梯度效应时 $G_{crit} \sim \log_{10} h_{Cu}$ 具有较小的曲率.

对比图 5 的预测结果和实验结果,可见与实验相匹配的分离应力和微尺度值近似为

$$\hat{\sigma} = 1.75 \text{ GPa}, l / R_0 = 1.0.$$

当取 $E / \gamma = 300$, $\nu = 0.3$, $\gamma = 300 \text{ MPa}$ ($h_{Cu} > 2 \mu m$),可得

$$l = 0.1 \mu m.$$

可见,由薄膜脱胶的实验和理论分析获得的微尺度值小于由微弯曲实验^[7]和微压痕实验^[8]所获得的微尺度值.

对比图 3(a)与(b),若考虑 G_{crit} / σ_0 随 l / R_0 的变化规律不因所采用模型的不同而发生实质性的改变,故可得

$$2t = \frac{R_0}{\gamma} = 0.017 \mu m.$$

该值与文献[15]由自洽方法估算的无位错核厚度为同量级大小.

5 结论及讨论

本文对金属薄膜沿陶瓷基界面的非线性脱胶问题进行了详细的微尺度力学分析,并结合铜薄膜沿二氧化硅陶瓷界面脱胶的实验结果预测出脱胶时的分离应力、无位错核厚度以及材料的微尺度值.

薄膜非线性脱胶问题是典型的微尺度效应占主导的情况. 在失配应力的作用下,微小厚度的薄膜(厚度为微米、亚微米或亚微米以下)与陶瓷基实现强匹配,并因界面处理工艺及技能的不同而形成强弱界面,薄膜将发生大范围塑性屈服等情况. 在薄膜脱胶时将发生各种奇特现象,对这些情况,传统的弹塑性理论无法应用以至失效. 在对金属材料与陶瓷基界面性能的研究中,最近 Lipkin 等人^[3]发现,经过不同工艺的界面处理,界面脱胶的断裂功 σ_0 变化并不大,但所需总能量 G_{crit} 将有非常大的改变(甚至可增大 100 倍),这说明界面的分离应力 $\hat{\sigma}$ 有较大的增加. 可见,描述薄膜非线性脱胶时采用的两个界面控制参数是必要的. 从上节的分

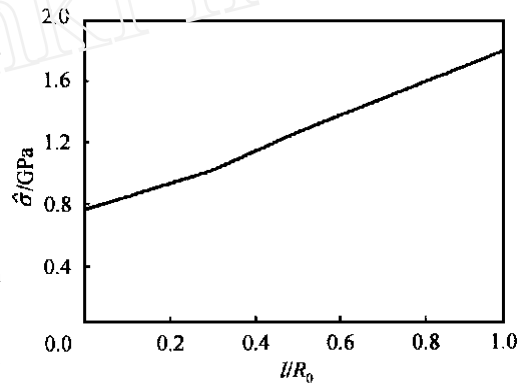


图 6 刻画界面强弱的分离应力与微尺度的关系

析可知, λ 的改变直接与塑性应变梯度的强弱有关, 即可由 l 刻画. 因此, 采用塑性应变梯度理论分析薄膜的非线性脱胶问题是必要的, 而且是可行的.

参 考 文 献

- 1 Nix W D. Mechanical properties of thin films. *Metal Trans*, 1939, 20A: 2 217 ~ 2 245
- 2 Vinci R P, Zelinski E M, Bravman J C. Thermal strain and stress in copper thin films. *Thin Solid Films*, 1995, 262: 142 ~ 153
- 3 Lipkin D M, Clarke D R, Evans A G. Effect of interfacial carbon on adhesion and toughness of gold-sapphire interfaces. *Acta Mater*, 1998, 46(13): 4 835 ~ 4 850
- 4 Tvergaard V, Hutchinson J W. The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic-plastic solids. *J Mech Phys Solids*, 1992, 40(6): 1 377 ~ 1 397
- 5 Wei Y, Hutchinson J W. Nonlinear delamination mechanics for thin films. *J Mech Phys Solids*, 1997, 45(7): 1 137 ~ 1 159
- 6 Fleck N A, Hutchinson J W. Strain gradient plasticity. In: Hutchinson J W, Wu T Y, ed. *Advances in Applied Mechanics*, 1997, 33: 295 ~ 361
- 7 Stolken J S, Evans A G. A micro-bend test method for measuring the plasticity length scale. *Acta Mater*, 1998, 46(14): 5 109 ~ 5 115
- 8 Begley M R, Hutchinson J W. The mechanics of size-dependent indentation. *J Mech Phys Solids*, 1998, 46(10): 2 049 ~ 2 068
- 9 Wei Y, Hutchinson J W. Steady-state crack growth and work of fracture for solids characterized by strain gradient plasticity. *J Mech Phys Solids*, 1997, 45(8): 1 253 ~ 1 273
- 10 Needleman A. A continuum model for void nucleation by inclusion debonding. *J Applied Mechanics*, 1987, 54: 525 ~ 531
- 11 Suo Z, Shih C F, Varias A G. A theory for cleavage cracking in the presence of plastic flow. *Acta Metall Mater*, 1993, 41(5): 151 ~ 157
- 12 Tvergaard V, Hutchinson J W. The influence of plasticity on mixed mode interface toughness. *J Mech Phys Solids*, 1993, 41(6): 1 119 ~ 1 135
- 13 Dean R H, Hutchinson J W. Quasi-static steady crack growth in small scale yielding. In: *Fracture Mechanics*, Philadelphia: ASTM STP700, 1980, 383 ~ 405
- 14 Bagchi A, Evans A G. The mechanics and physics of thin film decohesion and its measurement. *Interface Sci*, 1996, 3: 169 ~ 193
- 15 Beltz G E, Rice J R, Shih C F, et al. A self-consistent model for cleavage in the presence of plastic flow. *Acta Mater*, 1996, 44(10): 3 943 ~ 3 954