

薄膜/基体的热失配致界面层裂研究

张东波 魏悦广*

中国科学院力学研究所, 北京 100190

摘要 本文研究了热失配引起的残余应力作用下的薄膜/基体体系的界面层裂特征。假设薄膜和基体材料分别为弹塑性材料和弹性材料, 薄膜/基体界面的层裂采用复合型的粘聚力模型来刻画。研究了对应不同薄膜材料参数和不同界面参数情况的界面层裂发生机制, 给出了层裂发生时临界温度荷载与薄膜/基体几何参数、材料参数以及模型参数之间的关系。

关键词 薄膜/基体, 界面层裂, 热失配, 粘聚力模型

1 引言

涂层或粘结于基体上的薄膜或多层材料中的单独片层等均不可避免的承受着残余应力的作用^[1]。薄膜中的残余应力主要来源于沉积过程、外延、以及热膨胀失配等因素。承受应力状态的薄膜/基体体系往往在边缘处产生很强的应力集中, 极易导致其在该界面处发生起始层裂^[2]。

早在 19 世纪, 人们就认识了沉积在基体上的薄膜中残余应力的存在和这些应力对薄膜层裂的影响, 例如, 沉积在基体上的梯薄膜由于振动或局部受热易于开裂^[3]。Stoney^[4]发现, 在探照灯的发射镜中, 当铜薄膜的厚度超过 10 微米时, 在银薄膜上作为保护层的电解沉积铜易于脱落。直到今天, 由热失配引起的残余应力对薄膜/基体体系性能的影响依然是人们研究的热点。Teixeira^[5-6]研究了热残余应力对物理气相沉积薄膜的影响, 并且讨论了热残余应力作用下薄膜/基体体系的失效模式。Yu 和 Hutchinson^[7]对薄膜/基体界面的两种层裂模式进行了研究, 一种是薄膜/基体界面完全层裂, 另一种是部分层裂。Hsueh 等^[8]对热应力作用下多层膜体系的 I 型层裂行为进行了分析。

本文将研究不同薄膜/基体界面体系在热失配引起的残余应力的作用下界面发生层裂的力学行为。如图 1 所示的薄膜/基体体系, 厚度为 t 的弹塑性薄膜粘结在弹

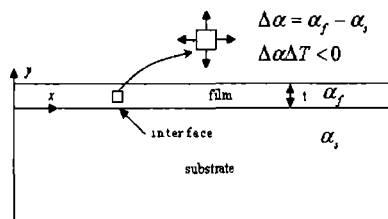


图 1 薄膜/基体体系的热失配平面应变简化分析模型

* 通讯作者; Email: ywei@lnm.imech.ac.cn

性基体上, 由于薄膜和基体材料的热膨胀系数不同, 在该体系的制造过程中温度由高温环境降到常温的工作环境, 薄膜中产生了由热失配引起的残余压应力, 其极易导致薄膜/基体界面发生层裂。本文采用复合型粘聚力模型 (cohesive model) 刻画薄膜/基体界面的层裂^[9-11], 关于复合型粘聚力模型将在下节作简要介绍。本文的主要目的是通过研究建立界面层裂临界温度荷载随材料参数和模型参数的变化关系, 实现界面层裂的系统表征。

2 混合型粘聚力模型

用粘聚力模型来刻画双材料界面分离过程的方法已经被许多学者所采用, 并被证实是行之有效的方法^[10-14], 下面简单介绍一下混合型粘聚力模型。

如图 2 所示分别为纯 I 型和纯 II 型的 traction-separation (T-S) 关系示意图。对于纯 I 型或纯 II 型情况, 当界面的法向或切向应力达到界面临界分离应力 $\hat{\sigma}$ 或 $\hat{\tau}$ 时, 界面粘结刚度开始退化直至退化到零。图中曲线所示面积分别为纯 I 型和纯 II 型情况下的界面断裂韧性 Γ_{I0} 和 Γ_{II0} 。

使用比较广泛的准则是幂指数准则判断界面是否层裂:

$$\left\{ \frac{G_I}{\Gamma_{I0}} \right\}^\alpha + \left\{ \frac{G_{II}}{\Gamma_{II0}} \right\}^\alpha = 1 \quad (1)$$

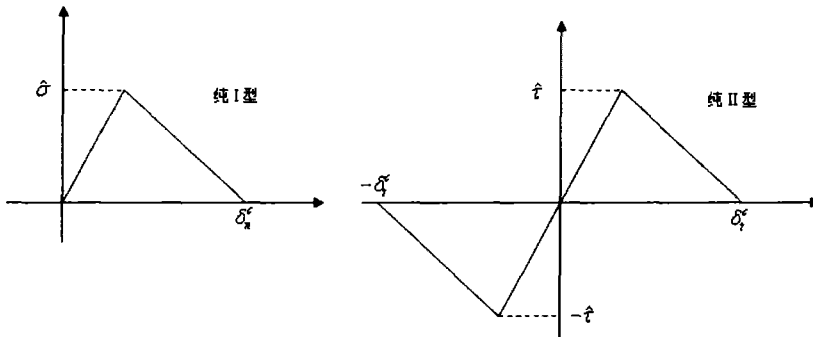


图 2 粘聚力模型示意图, δ_n^c 和 δ_t^c 分别为纯 I 型和纯 II 型破坏的法向和切向临界分离位移

式中 G_I 和 G_{II} 分别为 I 型和 II 型的断裂韧性,

$$G_I = \int_0^{\delta_n^c} \sigma(\delta_n) d\delta_n, \quad G_{II} = \int_0^{\delta_t^c} \tau(\delta_t) d\delta_t \quad (2)$$

混合型断裂韧性为

$$G = G_I + G_{II} \quad (3)$$

在计算中, 界面失效准则采用 $\alpha = 1$ ^[15, 16]。定义表征界面分离能量混合度的相位角

$$\Psi = \tan^{-1} \sqrt{\frac{G_{II}}{G_I}} \quad (4)$$

3 计算结果与讨论

如图 1 所示, 韧性薄膜粘结在弹性基体上, 薄膜材料在单轴拉伸时的应力应变关系由

幂硬化关系刻画为

$$\sigma = \begin{cases} E\varepsilon & (\sigma \leq \sigma_Y) \\ \sigma_Y(\varepsilon/\varepsilon_Y)^n & (\sigma > \sigma_Y) \end{cases} \quad (5)$$

式中 E 为材料的弹性模量, ν 为泊松比, σ_Y 为屈服应力, $\varepsilon_Y = \sigma_Y/E$ 为屈服应变, n 为幂硬化指数。基体为弹性材料, 各材料参数选取如下:

薄膜: $\sigma_Y, n_f, \nu_f, E_f, t, \alpha_f$;

基底: ν_s, E_s, α_s ;

界面: $\hat{\sigma}, \delta_n^c, \hat{t}, \delta_t^c$;

临界温度载荷: ΔT 。

本文中, 对于具有不同热膨胀系数的薄膜和基体材料, 通过温度的改变 ΔT 来模拟薄膜/基体体系中的残余应力, 并且假设薄膜中的残余应力为拉应力, 即要求 $\Delta\alpha\Delta T < 0$, 其中 $\Delta\alpha = \alpha_f - \alpha_s$, 并且模型简化为平面应变问题 (不考虑材料参数随温度的改变)。薄膜/基体界面发生层裂的临界温度载荷与材料参数之间有如下的关系:

$$(\Delta\alpha\Delta T)_{cr} = F\left(\frac{E_f}{E_s}, \frac{E_f}{\sigma_Y}, \frac{\hat{\sigma}}{\sigma_Y}, \frac{\hat{t}}{\sigma_Y}, \frac{\delta_n^c}{t}, \frac{\delta_t^c}{t}, n_f, \nu_f, \nu_s\right) \quad (6)$$

下面采用有限元法对热失配引起的残余应力作用下薄膜/基体界面起始层裂进行研究。

3.1 界面应力分布

为了便于比较, 首先考虑薄膜/基体之间是理想结合的情况 (界面粘结强度为无限大)。图 3 给出了当 $E_f/E_s = 0.4, E_f/\sigma_Y = 400, \nu_f = \nu_s = 0.3$ 时, 薄膜材料在不同幂硬化指数情况下, 界面上的应力分布情况, 此时取 $\Delta\alpha\Delta T = 0.005$ 。可以看出, 对于文中的三种情况, 正应力和剪应力都是在边缘处最大。在边缘处正应力为拉应力, 大约在距离边缘 $0.5t$ 处, 正应力由拉应力变为压应力。随着薄膜材料幂硬化指数增大, 无论是正应力 σ_{yy}/σ_Y 还是剪应力 τ_{xy}/σ_Y , 其数值都越来越大。

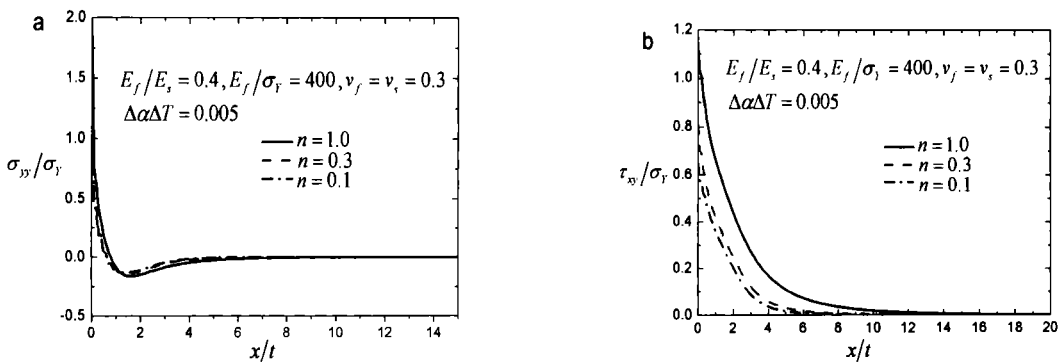


图 3 理想界面粘结情况的应力分布: (a) 正应力; (b) 剪应力

若考虑薄膜/基体界面为有限粘结强度, 采用粘聚力模型来刻画界面。当 $E_f/\sigma_Y = 400, n = 0.1, \delta_n^c/t = \delta_t^c/t = 0.1$ 时, 分别考虑界面分离强度 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{t}/\sigma_Y = 1.0$ 和 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{t}/\sigma_Y = 0.4$ 时, 界面发生层裂之前沿界面的应力分布情况如图 4 和图 5 所示。由图可知, 当界面分离强度为 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{t}/\sigma_Y = 1.0$ 时, 随着残余应力的增加, 界面边缘处的正应力与剪应力都经历

先增加后减小的过程，而正应力大于剪应力，这是因为在此情况下界面的起始层裂是 I 型主导的，下节将通过相角来说明。对于界面强度 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{\tau}/\sigma_Y = 0.4$ 的情况，界面边缘处的正应力与剪应力同样经历先增加后减小的过程，但剪应力大于正应力，这是因为在此情况下界面的起始层裂是 II 型主导的。对于其他情况，可以得到类似的结果。

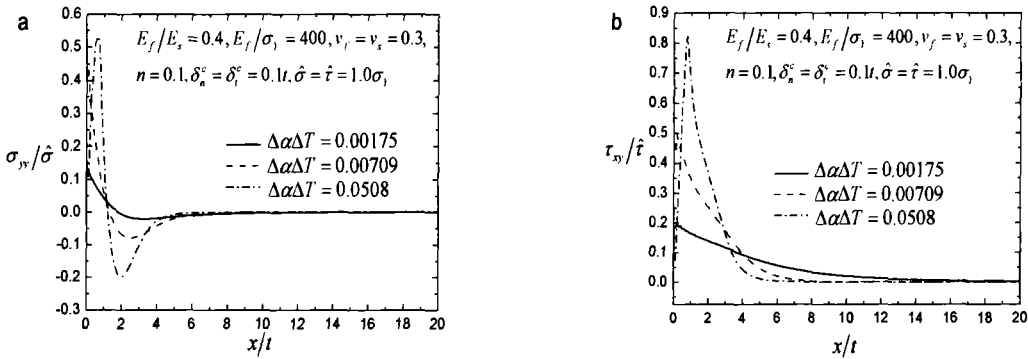


图 4 界面分离强度为 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{\tau}/\sigma_Y = 1.0$ 时，不同温度载荷情况下，沿界面的应力分布：
(a) 正应力；(b) 剪应力

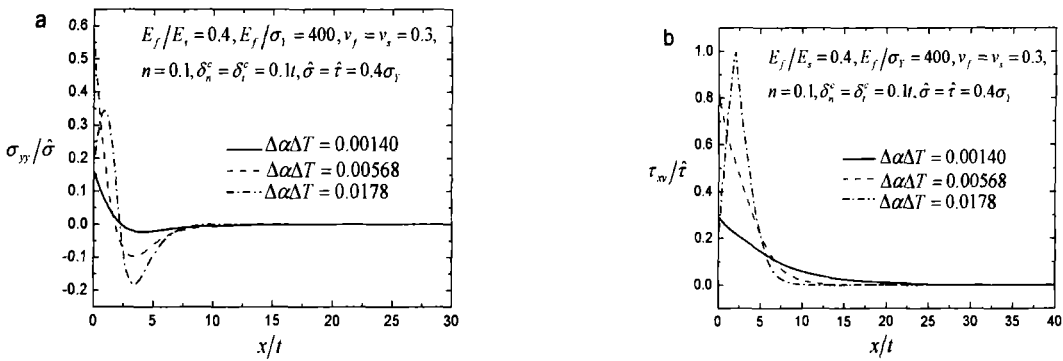


图 5 界面分离强度为 $\hat{\sigma}/\sigma_Y = \hat{\tau}/\sigma_Y = 0.4$ 时，不同温度载荷情况下，沿界面的应力分布
(a) 正应力；(b) 剪应力

3.2 界面起始层裂发生时的参数关系

界面层裂采用粘聚力模型刻画，层裂准则如(1)式所示。

情况一：分别讨论 $E_f/\sigma_Y = 100, 200, 400$ 三种情况，对每一种情况，选取 $\delta_n^c = \delta_t^c = 0.1t$ ， $(\hat{\sigma} = \hat{\tau})/\sigma_Y = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1.0$ 。图 6 给出了界面层裂的临界温度载荷以及相角随着界面分离强度的变化情况。从图中可以看出，界面起始层裂的临界温度载荷随着 $\hat{\sigma}/\sigma_Y$ 呈非线性增大，随着 $\hat{\sigma}/\sigma_Y$ 的增大， E_f/σ_Y 对临界温度载荷的影响也变得越来显著。对于发生界面层裂时的相角，随着 $\hat{\sigma}/\sigma_Y$ 呈非线性下降的趋势，随着 $\hat{\sigma}/\sigma_Y$ 的增大，界面起始层裂由 II 型主导转变为 I 型主导。需要说明的是，此时是根据相角的大小来判断界面层裂的类型：当相角 $\Psi > 45^\circ$ 时，界面为 II 型主导；相角 $\Psi < 45^\circ$ 时，为 I 型主导。

情况二：讨论界面层裂的临界温度载荷随界面分离位移的变化。图 7 给出了 $E_f/\sigma_Y = 100, 200, 400$ ，薄膜的幂硬化指数 $n = 0.1$ ，界面发生层裂的临界温度载荷随界面分离位移的变化。从中可以看出界面层裂的临界温度载荷随界面分离位移呈线性变化。计算中发现对于一定的 $\hat{\sigma}/\sigma_Y$ 值，相角随着分离位移的变化很小。

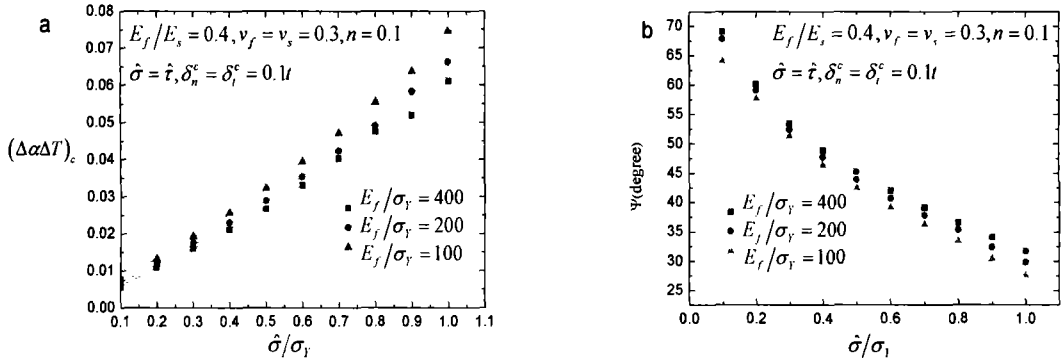


图6 界面层裂的临界温度载荷及分离相位角随界面分离强度 $\hat{\sigma}/\sigma_y$ 的变化, 其中(a) 临界温度载荷, 散点为数值计算结果, 实线为多项式拟合曲线; (b) 相位角

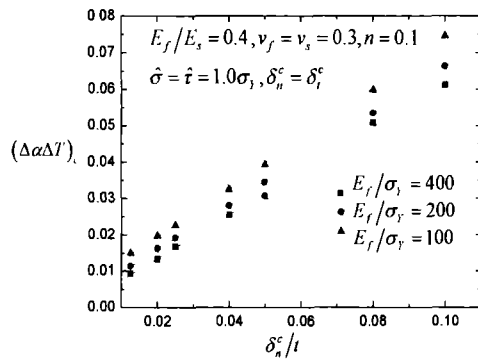


图7 界面层裂的临界温度载荷随界面分离位移 δ_n^c/t 的变化; 散点为计算结果, 实线为拟合曲线

情况三: 当 $\hat{\sigma} \neq \hat{\tau}$, 讨论当界面分离强度 $\hat{\sigma}/\hat{\tau} = 1.0, 2.0$ 时界面的层裂情况。对于 $\hat{\sigma}/\hat{\tau} = 1.0, 2.0$, 取参数 $\hat{\tau}/\sigma_y = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1.0$ 。图8给出了临界温度载荷及相角的变化情况。从图8a中不难看出, 随着 $\hat{\tau}/\sigma_y$ 的减小, 对 $\hat{\sigma}/\hat{\tau} = 1.0, 2.0$ 这两种情况, 二者的临界温度载荷越来越接近, 在图8b中不难得到解释, 随着 $\hat{\tau}/\sigma_y$ 的减小, II型的主导作用越来越显著。

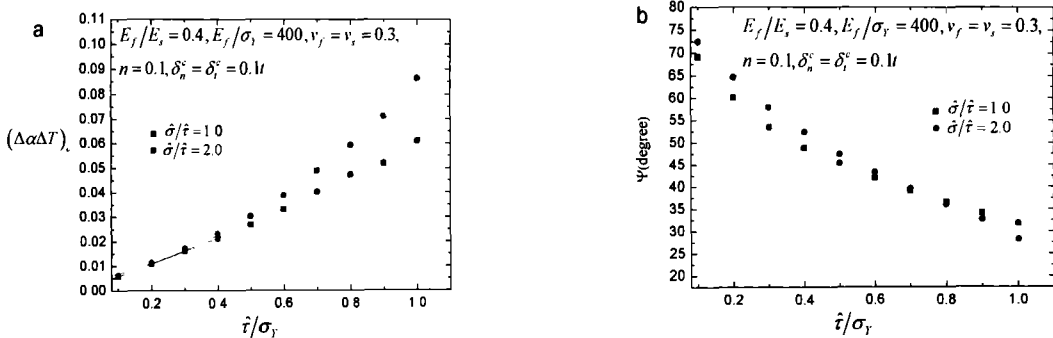


图8 界面层裂的临界温度载荷以及相位角随着界面分离强度的变化情况, 其中, (a) 临界温度载荷, 散点为数值计算结果, 实线为多项式拟合曲线; (b) 相位角

4 结论

本文应用有限元法对热失配引起残余应力作用下薄膜/基体界面起始层裂进行了研究。针对薄膜基体材料具有不同的热膨胀系数,文中模拟了薄膜/基体体系中由热失配引起的残余应力,对弹塑性薄膜粘结在弹性基体上的情况进行了研究,薄膜和基体间的界面采用复合型粘聚力模型来刻画。通过研究,得到了如下结果:

(1) 在界面分离位移 δ_n^c (δ_i^c) 一定的情况下,薄膜/基体界面起始层裂的临界温度载荷随界面分离强度呈非线性增加,而界面层裂的相角随着界面分离强度的增大而减小;

(2) 薄膜/基体界面起始层裂的临界温度载荷随界面分离位移呈线性增加,且相角随界面分离位移的变化很小;

(3) 讨论了 $\hat{\sigma} \neq \hat{t}$ 时界面发生层裂的情况。

致谢

感谢国家自然科学基金项目(项目编号:10672163,90816004)的资助。

参考文献

- 1 Freund L B, Suresh S. *Thin Film Materials: Stress, Defect Formation and Surface Evolution*. Cambridge University Press, 2004
- 2 Cannon R M, Fiser R M, Evans A G. Decohesion of thin films from ceramic substrates. *Mater Res Soc Symp Proc*, 1986, 54: 799~804
- 3 Gore G. On the properties of electro-deposited antimony. *Phil Trans R Soc Lond*, 1858, 148: 185~197
- 4 Stoney G G. The tension of metallic films deposited by electrolysis. *Proc R Soc Lond*, 1909, 82: 172~175
- 5 Teixeira T. Mechanical integrity in PVD coatings due to the presence of residual stresses. *Thin Solid Films*, 2001, 392: 276~281
- 6 Teixeira T. Residual stress and cracking in thin PVD coatings. *Vacuum*, 2002, 64: 393~399
- 7 Yu H H, Hutchinson J W. Delamination of thin film strips. *Thin Solid Films*, 2003, 423: 54~63
- 8 Hsueh C H, Lee S, Lin H Y. Analyses of mode I edge delamination by thermal stresses in multilayer systems. *Composites: Part B*, 2006, 37: 1~9
- 9 Needleman A. A Continuum model for void nucleation by inclusion debonding. *J Appl Mech*, 1987, 54: 525~531
- 10 Xu X P, Needleman A. Void nucleation by inclusion debonding in a crystal matrix. *Modell Simul Mater Sci Eng*, 1993, 1: 111~132
- 11 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: 1377~1397
- 12 Tvergaard V, Hutchinson J W. The influence of plasticity on mixed mode interface toughness. *J Mech Phys Solids*, 1993, 41: 1119~1135
- 13 Wei Y, Hutchinson J W. Nonlinear delamination mechanics for thin films. *J Mech Phys Solids*, 1997, 45: 1137~1159

- 14 Wei Y, Hutchinson J W. Interface strength, work of adhesion and plasticity in the peel test. *Int J Fract*, 1998, 93: 315~333
- 15 Wang J S, Suo Z. Experimental determination of interfacial toughness curves using Brazil-nut-sandwich. *Acta Metall Mater*, 1990, 38: 1279~1290
- 16 Hutchinson J W, Suo Z. Mixed model cracking in layered materials. *Adv Appl Mech*, 1992, 29: 63~191