

薄膜/基体界面的层裂行为研究

张东波 魏悦广

(中国科学院力学研究所, 北京, 100190)

摘要 撕裂试验作为一种简单而有效的实验方法在界面工程中有广泛的应用。本文采用有限元法对薄膜/基体界面的撕裂过程进行数值模拟。薄膜/基体界面的层裂采用复合型的粘聚力模型来刻画。本文的研究内容主要分成两部分: 首先对多角度撕裂的界面破坏形式进行了系统的研究, 得到了稳态撕裂力与撕裂角度之间的关系。其次, 研究了由于热失配引起残余应力作用下的薄膜/基体体系的界面层裂特征, 得到了层裂临界温度与薄膜/基体几何参数、材料参数以及粘聚力模型参数之间的关系。

关键词 薄膜/基体, 界面层裂, 撕裂试验, 热失配, 粘聚力模型

引言

近年来, 薄膜/基体结构在微/纳米工程中得到广泛的应用, 研究薄膜/基体界面的力学性能得到广泛的关注。为了检验薄膜和基体间的粘结强度, 早在 20 世纪 50 年代, 人们就设计了一种简单的实验方法——撕裂试验^[1], 该试验由于其简单易操作至今仍在许多领域都有广泛的应用。早期对于撕裂试验的研究多局限于弹性撕裂, 即将薄膜和基体都作为弹性材料来处理。后来, 对于韧性薄膜, 为了预测由于塑性耗散引起能量释放率(撕裂力)的增大, Kim 及其合作者^[2]提出并采用了梁的弯曲模型对撕裂中的塑性耗散进行预测。Wei 和 Hutchinson^[3]在分析弹塑性薄膜的撕裂问题时, 采用了一种不同于 Kim 的弯曲模型的方法, 除已脱胶部分之外, 薄膜的脱胶过程由平面应变弹塑性有限元方法模拟, 在分析过程中采用粘聚力模型来刻画韧性薄膜沿基体界面被撕裂或脱胶过程, 所得结果无论是在定性还是定量上均与 Kim 的梁弯曲模型结果有很大区别。

鉴于几种关于韧性薄膜撕裂模型对结果预测的不一致, 几位学者联名倡议提出开展关于薄膜撕裂实验刻画模型有效性检验的国际合作^[4]。在倡议中指出无论采用何种方法, 都须采用粘聚力模型来刻画界面断裂过程。而此后有很多工作都采用粘聚力模型来刻画界面。

如果考虑残余应力的影响, 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地承受着残余应力的作用^[5]。薄膜中的残余应力的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, 极易导致其在该处界面起始层裂发生^[6]。如何评价残余应力对薄膜/基体体系界面的影响也显得至关重要。

本文将对撕裂试验以及热失配引起残余应力作用下的薄膜/基体体系的界面层裂行为展开研究。薄膜/基体体系界面采用混合性粘聚力模型来刻画。研究了对应不同薄膜材料参数和不同界面参数情况下的撕裂行为, 给出了撕裂力和界面分离功以及界面分离强度等参数之间的关系, 并对界面层裂模式进行了分析。同时对多角度撕裂的界面破坏形式进行了系统的研究, 给出了稳态撕裂力及相角与撕裂角度之间的关系。

对由于热失配引起残余应力作用下的薄膜/基体体系的界面层裂行为的研究。假设薄膜和基体材料分别为弹塑性材料和弹性材料。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。

1 混合型粘聚力模型

用粘聚力模型 (cohesive model) 来刻画双材料界面已经被许多学者所采用, 并被证实是行之有效的方法^[7-10]。下面简单介绍一下混合型粘聚力模型。

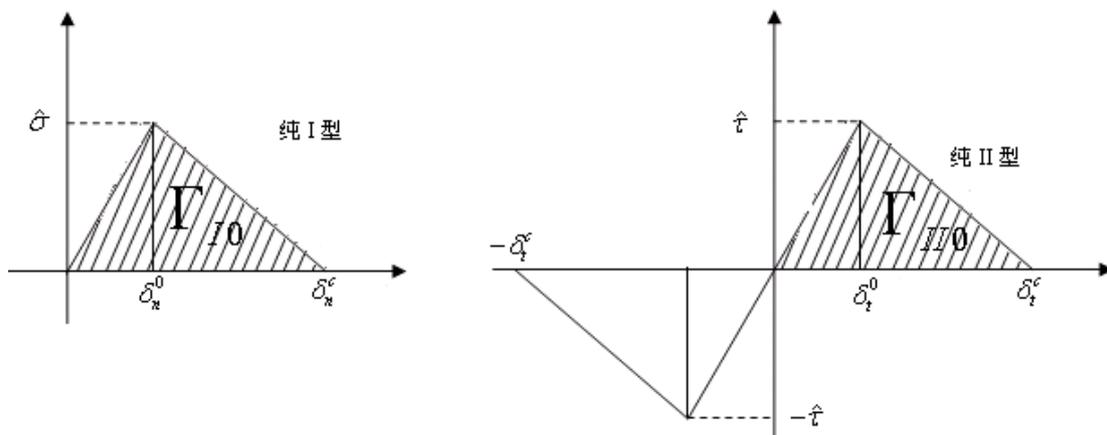


图 2. 粘聚力模型示意图, δ_n^c 和 δ_t^c 分别为纯 I 型和纯 II 型破坏的法向和切向临界分离位移

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 型或者纯 II 型情况下, 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, 界面材料的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} 。

在混合载荷作用下, 损伤起始及其相应的刚度退化往往在界面应力未达到临界应力时已经发生。设损伤起始时满足应力分量的二次关系:

$$\left\{ \frac{\langle \sigma \rangle}{\hat{\sigma}} \right\}^2 + \left\{ \frac{\tau}{\hat{\tau}} \right\}^2 = 1 \quad (1)$$

式中, $\langle \rangle$ 代表 Macaulay 括号, 表示纯压缩变形并不产生损伤。

判断界面是否层裂使用比较广泛的准则是幂指数准则,

$$\left\{ \frac{G_I}{\Gamma_{I0}} \right\}^\alpha + \left\{ \frac{G_{II}}{\Gamma_{II0}} \right\}^\alpha = 1 \quad (2)$$

式中, G_I , G_{II} 分别为 I 型和 II 型的断裂韧性,

$$G_I = \int_0^{\delta_n} \sigma(\delta_n) d\delta_n, \quad G_{II} = \int_0^{\delta_t} \tau(\delta_t) d\delta_t \quad (3)$$

混合型断裂韧性为

$$G = G_I + G_{II} \quad (4)$$

在计算中, 界面失效准则采用 $\alpha = 1$ ^[11-12]。定义表征界面分离能量混合度的相位角

$$\theta = \tan^{-1} \sqrt{\frac{G_{II}}{G_I}} \quad (5)$$

2 多角度撕裂模型及结果

如图 2 所示，厚度为 t 的薄膜粘聚在基体上，在薄膜的一端，沿着与薄膜/基体界面呈 Φ 角度方向施加撕裂力，设单位宽度上的撕裂力为 P 。在撕裂力的作用下，薄膜/基体界面将发生层裂。薄膜沿基体界面被撕裂的通过如图 1 所示粘聚力模型来刻画。

对于撕裂试验而言，在薄膜撕裂过程中，单位宽度撕裂力 P 和界面的粘结断裂韧性 Γ_0 之间存在如下的关系，

弹性撕裂

$$P(1 - \cos \Phi) = \Gamma_0 \quad (6)$$

弹塑性撕裂

$$P(1 - \cos \Phi) = \Gamma_0 + \Gamma^P \quad (7)$$

其中 Γ^P 为塑性耗散引起的能量释放率的增加。

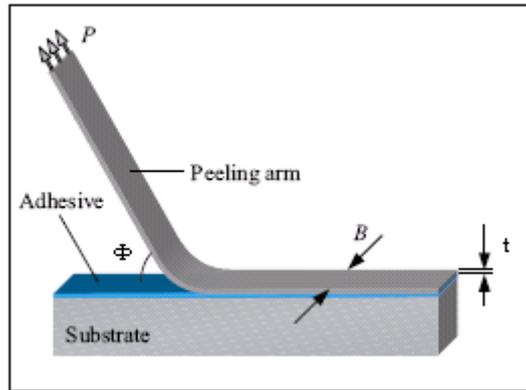


图 2 撕裂试验示意图

在本文中研究弹塑性薄膜在不同撕裂角度下的撕裂过程。薄膜材料在单轴拉伸时的应力应变关系均由幂硬化关系刻画为

$$\sigma = \begin{cases} E\varepsilon, & \sigma \leq \sigma_Y \\ \sigma_Y (\varepsilon/\varepsilon_Y)^n, & \sigma \geq \sigma_Y \end{cases} \quad (8)$$

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。

选取如下参数：

薄膜: $\sigma_{Y1}, n_1, \nu_1, E_1, t$;

基底: ν_2, E_2 ;

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

撕裂力、界面裂纹长度及撕裂角度: $P, \Delta a, \Phi$ 。

通过简单的量纲分析得到:

$$\frac{P}{\Gamma_{I0}} = F_1 \left(\frac{\delta_n^c}{t}, \frac{\delta_t^c}{t}, \frac{\hat{\sigma}}{\sigma_{Y1}}, \frac{\hat{\tau}}{\sigma_{Y1}}, \frac{\sigma_{Y1}}{E_1}, \frac{\sigma_{Y2}}{\sigma_{Y1}}, \frac{E_2}{E_1}, n_1, n_2, \nu_1, \nu_2, \Phi \right); \quad (9)$$

$$\frac{\Delta a}{t} = F_2 \left(\frac{\delta_n^c}{t}, \frac{\delta_t^c}{t}, \frac{\hat{\sigma}}{\sigma_{Y1}}, \frac{\hat{\tau}}{\sigma_{Y1}}, \frac{\sigma_{Y1}}{E_1}, \frac{\sigma_{Y2}}{\sigma_{Y1}}, \frac{E_2}{E_1}, n_1, n_2, \nu_1, \nu_2, \Phi \right). \quad (10)$$

薄膜和基底采用 4 节点二维平面应变单元模拟, 界面采用 cohesive 单元来刻画。

图 3 给出了不同界面强度下相角和撕裂力随撕裂角度的变化关系。无论是稳态撕裂力还是相角在 0° 撕裂时都是最大的, 随着撕裂角度的增加, 相角和撕裂力都呈现先下降后上升的变化趋势。

对于 $E_1/\sigma_{Y1} = 500, E_2/E_1 = 6, \nu_1 = 0.3, n_1 = 0.1, \hat{\sigma} = \hat{\tau} = \sigma_{Y1}, \delta_n^c = \delta_t^c = 0.1t$ 的情况, 从 0° 撕裂时界面稳态扩展的应力分布 (图 4a) 不难看出, 在 0° 撕裂时界面主要受到剪切了的作用, 这也说明 0° 撕裂时界面为纯 II 型破坏; 从图 3 (b) 可以看出, 大约在撕裂角为 18.8° 时, 相角为 45° , 18.8° 为 I 型和 II 型破坏的临界撕裂角度。图 5 给出了撕裂角为 18.8° 时界面稳态扩展时界面的应力分布。图 6 给出了不同分离位移情况下, 相角和撕裂力随撕裂角度的变化关系。

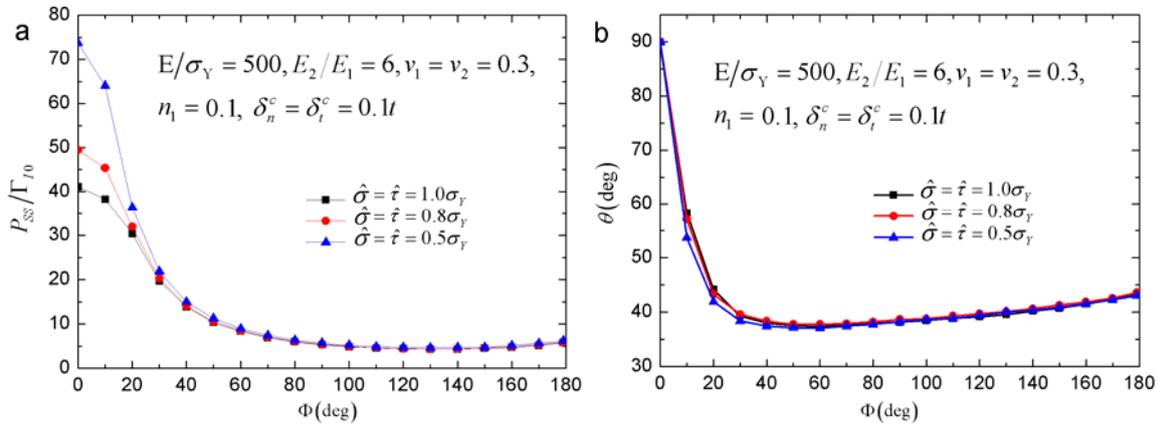


图 3 不同 $\hat{\sigma}/\sigma_{Y1}$ 情况下撕裂角度的影响 (a) 稳态撕裂力 P vs 撕裂角 Φ ; (b) 相角 θ vs 撕裂角 Φ

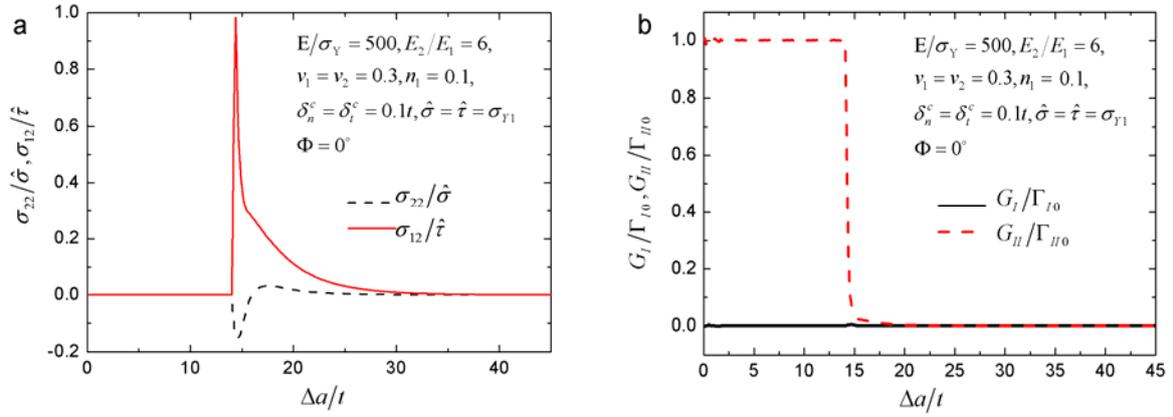


图 4 撕裂角为零度时，(a) 界面的应力分布，(b) 能量释放率

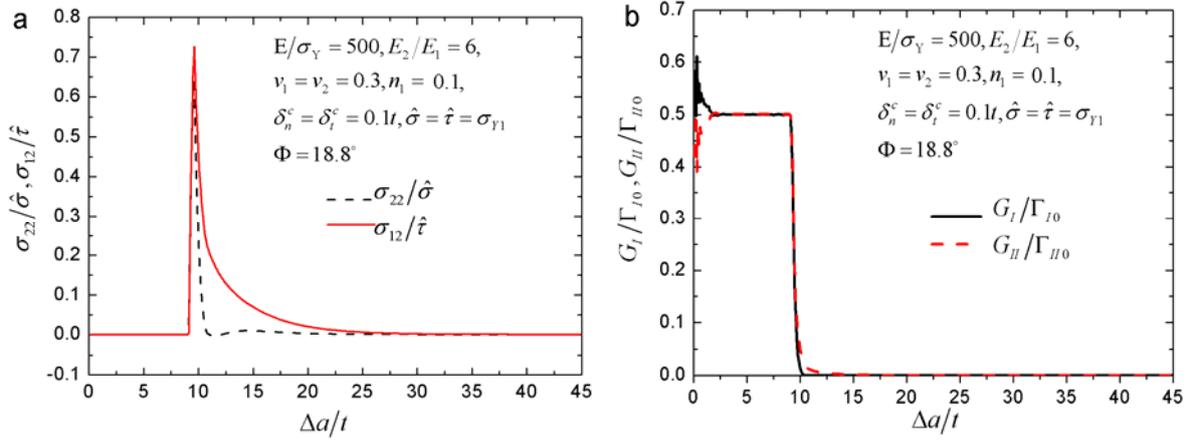


图 5 撕裂角为 18.8° 时，(a) 界面的应力分布 (b) 能量释放率

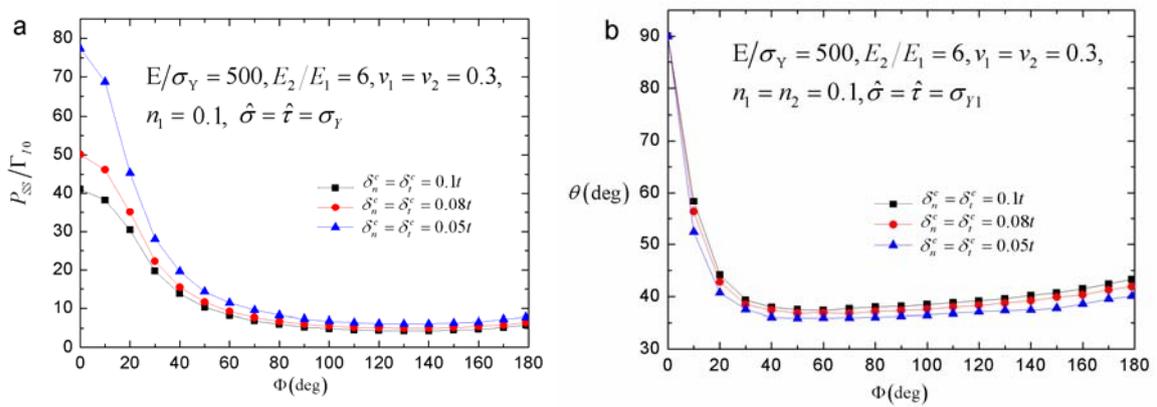


图 6 不同分离位移情况下撕裂角度的影响 (a) 稳态撕裂力 P vs 撕裂角 Φ ; (b) 相角 θ vs 撕裂角 Φ

3 热失配致界面层裂

当考虑残余应力影响时，由于薄膜和基体材料的热膨胀系数不同，图 7 所示的薄膜/基体体系，在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。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关系：

$$(\Delta\alpha\Delta T)_{crit} = F\left(\frac{E_f}{E_s}, \frac{\hat{\sigma}}{\sigma_Y}, \frac{\hat{t}}{\sigma_Y}, \frac{\delta_n^c}{t}, \frac{\delta_t^c}{t}, n, \nu_f, \nu_s\right) \quad (11)$$

薄膜的本构同样采用(8)式所示的幂硬化形式，基体为弹性，其中 E_f 、 E_s 分别为薄膜和基体的弹性模量， n 为薄膜的幂硬化指数， σ_Y 为薄膜的屈服强度， ν_f 、 ν_s 分别为薄膜和基体的泊松比。

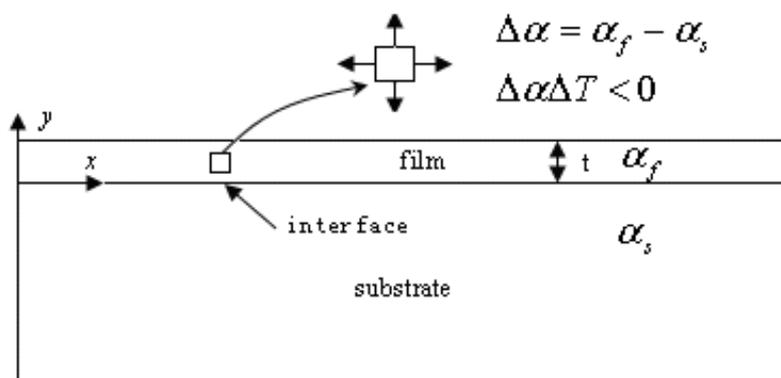


图 7 薄膜/基体体系的热失配平面应变简化分析模型

下面采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研究，薄膜/基体界面采用混合型粘聚力模型刻画。计算了 $E_f/\sigma_Y = 400$ 时，讨论了薄膜材料的幂硬化指数的影响，

选取 $\delta_n^c = \delta_t^c = 0.1t, 0.0125t$ ，分别计算了 $n = 0.1, 0.3, 1.0$ 时的情况。

图 8 给出了不同幂硬化指数情况下， $\delta_n^c = \delta_t^c = 0.1t$ 时，界面层裂的临界载荷以及相角随着界面分离强度的变化情况。从图 8a, 9a 的计算结果中可以看出，当 $n = 0.1$ 时，对于选取的两种分离位移情况，界面的临界温度载荷随着分离强度的变化趋势是一致的，都呈现非线性的变化趋势，且曲线的斜率逐渐增大；对于 $n = 0.3$ ，对应两种分离位移，界面的临界温度载荷随着分离强度的呈现线性变化关系；随着幂硬化指数的增大，当 $n = 1.0$ ，即薄膜为弹性时，界面的临界温度载荷随着分离强度的也呈现非线性线性变化关系，但是曲线的斜率随着分离强度的增大而减小。随着幂硬化指数的增大，界面的临界温度载荷随着分离强度的增大的趋势是由急趋缓的。图 8b, 9b 分别给出了

$\delta_n^c = \delta_t^c = 0.1t, 0.0125t$ 时, 在不同的薄膜幂硬化情况下, 界面层裂的相角随着界面分离强度的变化情况。从图示结果可以看出, 随着界面强度的增强, 相角都呈减小的趋势, 而且层裂经历了由 II 型主导相向 I 型主导的转变。在相同界面强度下, 相角随着薄膜幂硬化指数的增加也越来越大。

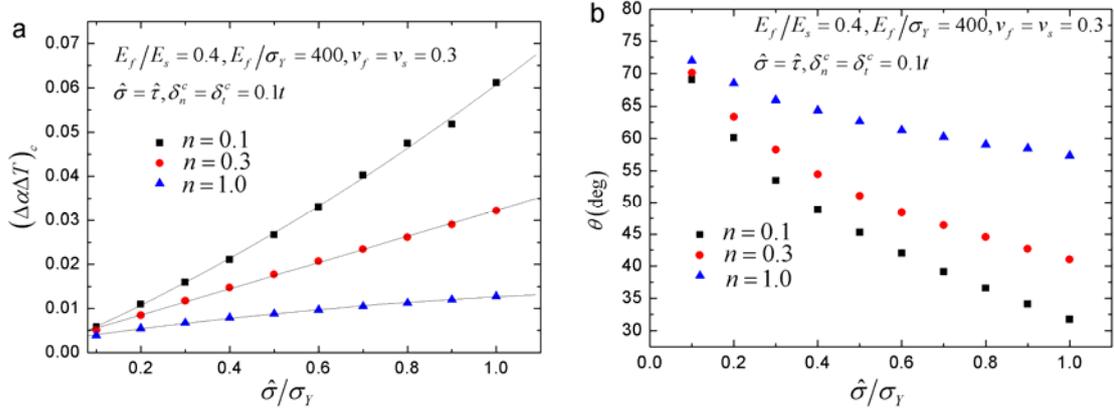


图 8. $\delta^c = 0.1t$ 时, 不同幂硬化指数情况下, 界面层裂的临界载荷以及相角随着界面分离强度的变化情况.

(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) 相角

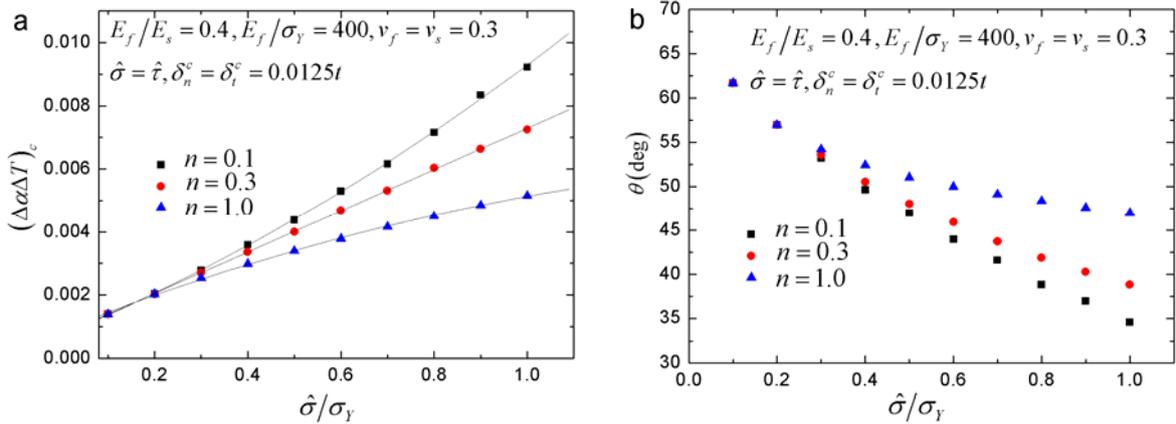


图 9. $\delta^c = 0.0125t$ 时, 不同幂硬化指数情况下, 界面层裂的临界载荷以及相角随着界面分离强度的变化情况.

(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) 相角

4 全文总结

研究了撕裂试验的多角度撕裂问题, 通过对表征界面分离能量混合度的相位角的分析, 对撕裂试验中界面层裂的类型进行研究; 给出了撕裂力以及相角随着撕裂角度的变化关系。

采用混合型粘聚力模型刻画薄膜/基体界面。针对薄膜、基体材料具有不同的热膨胀系数, 通过改变温度来模拟薄膜/基体体系中由热失配引起的残余应力。建立界面层裂临界失配应变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。

参考文献

1. Spies, G. J., "The peeling test on redux-bonded joints," *Journal of Aircraft Engineering*, 1953, 25, 64-70.
2. Kim, K.S., Aravas, N., "Elastoplastic analysis of the peel test," *International Journal of Solids and Structures*, 1988, 24, 417-435.
3. Wei Y, Hutchinson J.W. , "Interface strength, work of adhesion and plasticity in the peel test," *International Journal of Fracture*, 1998, 93, 315-333
4. Cotterell B, Williams G, Hutchinson J, Thouless M, "Annoucement of a Round Robin on the analysis of the peel test," *International Journal of Fracture*, 2002, 114, L9-L13
5. Freund L B, Suresh S. *Thin film materials: stress, defect formation and surface evolution*. Cambridge University Press, 2004
6. 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
7. Xu X P, Needleman A. Void nucleation by inclusion debonding in a crystal matrix. *Modelling Simul Mater Sci Eng*, 1993, 1: 111~132
8. 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
9. Tvergaard V, Hutchinson J W. The influence of plasticity on mixed mode interface toughness. *J Mech Phys Solids*, 1993, 41: 1119~1135.
10. Wei Y, Hutchinson J W. Nonlinear delamination mechanics for thin films. *J Mech Phys Solids*, 1997, 45: 1137-1159
11. Wang J S, Suo Z. Experimental determination of interfacial toughness curves using Brazil-nut-sandwich. *Acta Metall Mater*, 1990, 38: 1279-1290
12. Hutchinson J W, Suo Z. Mixed mode cracking in layered materials. *Advances in Applied Mechanics*, 1992, 29: 63-191

DELAMINATION OF THE THIN FILM-SUBSTRATE INTERFACE

Zhang Dongbo, Wei Yueguang

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190)

Abstract The peel test has been widely used in many research areas for its simple test method. In this paper, a systematical numerical study is explored to simulate peel process of thin film/substrate system, and the interface fracture is described by a cohesive model. First, the relationship between steady-state peel force and peel angle is obtained by the multi-angle peel tests. Second, delamination arising from thermal mismatch of interface is studied, and how the critical temperature changes with geometric parameters, material parameters and cohesive parameters is determined.

Key words: thin film-substrate, delamination, peel test, thermal mismatch, cohesive mode