

## 加载速率对 Al 膜纳米压入蠕变性能的影响 \*

王 飞 徐可为

(西安交通大学金属材料强度国家实验室, 西安 710049)

**摘 要** 纳米压入仪对 Si 片上多晶 Al 膜进行的压入蠕变实验表明, 加载方式对 Al 膜的蠕变性能有明显影响. 随加载速率和载荷的增大, Al 膜的总蠕变量和应力指数均有较大升高. 且蠕变初期可能存在异常高蠕变率. 分析认为这与是加载过程中未及发生的塑性变形的持续释放有关. 对于确定的薄膜材料及组织结构, 加载过程中积攒的塑性变形量及其释放速率将影响不同加载条件下的总蠕变量和应力指数.

**关键词** 纳米压入, 蠕变, Al 膜, 应力指数

中图法分类号 TB383

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2004)11-1138-05

## EFFECT OF LOADING RATE ON NANOINDENTATION CREEP PROPERTIES OF Al FILMS

WANG Fei, XU Kewei

State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049

Correspondent: XU Kewei, professor, Tel: (029)82663126, Fax: (029)82663453,

E-mail: kwxu@mail.xjtu.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.59931010)

Manuscript received 2003-11-17, in revised form 2004-03-08

**ABSTRACT** Constant loading rate/load creep experiments were conducted on polycrystalline Al thin films using nanoindentation instrument. The results indicated that the loading mode has an obvious effect on the creep properties. With increasing loading rate/load, total creep and stress exponent of the film were increased. The high creep rate in an initial loading stage was considered the result of the release of plastic deformation, which should have taken place in the loading of previous segment. It follows that the change of total creep and stress exponent of tested films depends sometimes on the amount of plastic deformation under different loading conditions.

**KEY WORDS** nanoindentation, creep, Al film, stress exponent

随着薄膜材料在微电子、微机械及表面防护等方面广泛应用, 薄膜力学行为成为研究热点. 薄膜结构的尺寸效应使薄膜力学性能与块体材料有较大差别, 这也从一个方面激发了人们的研究兴趣.

传统的蠕变测试方法在高温蠕变研究中发挥了重要作用<sup>[1,2]</sup>, 但测量材料的室温蠕变性能是十分困难的. 纳米压入技术的不断发展, 为研究材料的室温蠕变性能开辟了一条新路. 纳米压入蠕变的研究首先应用于块体材料, 如蠕变的应力指数<sup>[3,4]</sup>、晶粒影响<sup>[5]</sup>等, 薄膜材料的研究报导还很少.

压入蠕变实验方法主要有恒加载速率法 (CRL)<sup>[5]</sup>、

压入载荷松弛法 (ILR)<sup>[6]</sup>、恒定载荷法<sup>[7-9]</sup>、恒加载速率 / 载荷法<sup>[12]</sup>等. 本文针对多晶 Al 膜, 利用恒加载速率 / 加载载荷方法对其室温下蠕变性能进行研究. 实验结果显示多晶 Al 膜应力指数随不同加载条件会发生很大的变化, 分析认为实验的加载速率及材料的蠕变速率是两个必须考虑的因素.

### 1 实验方法

#### 1.1 试样制备

利用 JGP560V 磁控溅射仪制备 Al 膜. 镀膜前, 对 Al 靶清洗 30 min, 去除杂物. 镀膜功率 200 W, 本底气压  $7 \times 10^{-5}$  Pa, 工作气压 (Ar) 0.1 Pa, 气体流量 (Ar) 10 mL/min. SEM 观察多晶 Al 膜断面测得膜厚约 4.5  $\mu\text{m}$ . 为尽量排除微观结构对 Al 膜室温蠕变性能的影响, 本文选用同一炉镀制的 Al 膜进行纳米压入蠕变实验, 以排除工艺和材料不稳定和不均匀的影响.

\* 国家自然科学基金资助项目 59931010

收到初稿日期: 2003-11-17, 收到修改稿日期: 2004-03-08

作者简介: 王 飞, 男, 1976 年生, 博士生

### 1.2 压入蠕变实验

纳米压入实验使用 Nano indenter XP 型纳米压入仪, 载荷和位移精度分别为 75 nN 和 0.1 nm, 使用 Berkovich 三棱锥压头. 该仪器配有连续柔性测量装置 (CSM), 压入过程中可以连续测得柔度值, 从而获得每个位移点的硬度和弹性模量, 可以通过一次压入实验得到试样硬度随深度的变化. 实验在室温和空气环境下进行. 硬度  $H$  由下式给出:

$$H = \frac{P}{A} \quad (1)$$

式中  $P$  为载荷,  $A$  为压痕面积.

蠕变实验采用恒加载速率 / 加载载荷方法 (Const.  $\dot{P}/P$ ). 本文选取  $\dot{P}/P=0.02, 0.10, 0.20$  三种方式, 即对应的应变率  $\dot{h}/h$  为 0.01, 0.05, 0.10<sup>[3]</sup>. 最大载荷分别为 1 mN 和 10 mN. 当载荷达到最大载荷后, 保载 600 s, 然后卸载到最大载荷的 20%, 再保载 240 s 以测量热漂移, 最终完全卸载. 每种加载方式选取 8 个测试点, 应力指数的计算采用其算术平均值. 图 1 为压入载荷随时间的变化曲线.

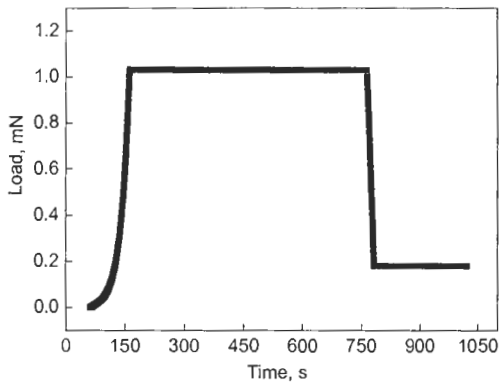


图 1 压入载荷随时间的变化

Fig.1 Applied load vs time during nanoindentation

## 2 实验结果及讨论

### 2.1 弹塑性变形对蠕变量的影响

相同保载载荷 (10 mN) 在不同应变率下纳米压入位移随保载时间变化的关系见图 2. 保载初期, 随时间增加压头压入深度迅速增加, 随后逐渐平缓, 达到稳态蠕变阶段. 如图 2 所示, 在相同的保载时间和保载载荷下三种不同加载方式得到的总蠕变量有很大差别,  $\dot{P}/P$  为 0.02, 0.10 和 0.20 时 (应变率为 0.01, 0.05, 0.10 s<sup>-1</sup>) 的蠕变量分别为 48, 67 和 112 nm. 这是由于不同加载方式下材料发生弹性塑性变形方式的不同. 当压头压入薄膜时, 先发生弹性变形, 然后为弹性变形与塑性变形共存, 最后达到完全塑性变形. 弹性变形在材料中的传播速度较快, 塑性变形则滞后于弹性变形. 在高加载速率 / 加载载荷的加载方式下, 压头压入材料速度较快, 加载过程中材料部分

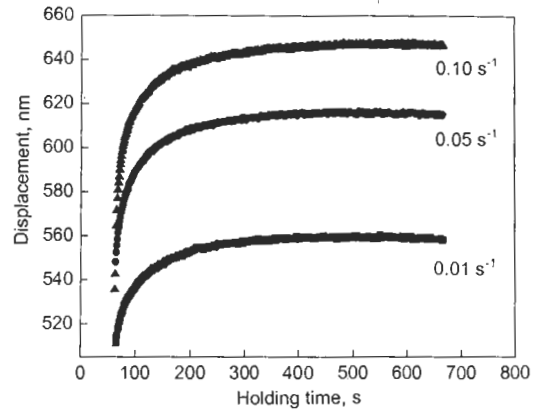


图 2 高载 (10 mN) 时不同应变率下压头位移随保载时间的变化  
Fig.2 Relationships between penetration depth and holding time under load of 10 mN and different strain rates for the Al films

塑性变形来不及发生, 使得这部分塑性变形得不到释放, 而在保载阶段释放出来. 因此在保载阶段塑性变形增加, 导致最终的蠕变量变大. 而对于低加载速率 / 加载载荷的加载方式, 由于压头压入材料速度比高载时慢, 加载过程中的塑性变形能够得到比较充分的释放, 所以在蠕变稳定阶段的蠕变量随加载速率 / 加载载荷的升高而减小.

在低载 (1 mN) 下 (图 3), Al 膜的蠕变曲线的变化规律与高载下基本一致. 首先注意到高加载速率 / 载荷 (0.20 即应变率 0.10 s<sup>-1</sup>) 的压入深度没有低加载速率 / 加载载荷 (0.10, 0.02 即 0.05 s<sup>-1</sup>, 0.01 s<sup>-1</sup>) 深, 这可能是由于在较小的压入深度下, 薄膜材料局部表面粗糙度等影响因素影响了纳米压入仪精确定位压入起始点造成的. 同时注意到低载下三种加载方式蠕变曲线最终压入深度比较接近, 这是因为加载的最大载荷比较小, 使得不同加载方式下材料的塑性变形量相差不大. 但是其总蠕变量也与高载时相同, 随  $\dot{P}/P$  的升高而增大,  $\dot{P}/P$  为 0.02, 0.10 和 0.20 时 (应变率为 0.01, 0.05, 0.10 s<sup>-1</sup>) 的蠕变量分别为 17, 21 和 31 nm.

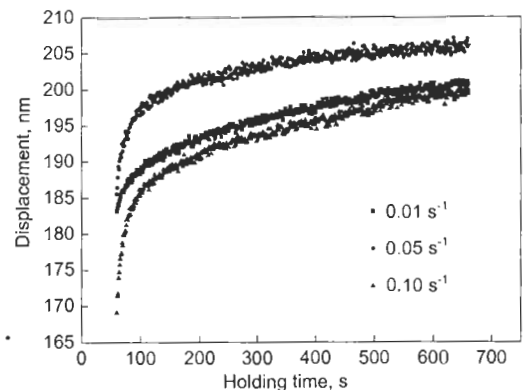


图 3 低载 (1 mN) 时不同应变率下压头位移随保载时间的变化  
Fig.3 Relationships between penetration depth and holding time under load of 1 mN and different strain rates for the Al films

2.2 应力指数的确定

纳米压入蠕变实验得到的应变率随时间变化的数据比较分散,尤其在蠕变后期因其应变率非常小会使测得的应力指数不准确.实验发现 Cu 膜的硬度随保载时间增加初期快速下降,随后速度趋缓,最后相对稳定.此段的硬度与时间关系研究不多,实际即为材料的室温蠕变行为.一些学者认为压入蠕变的曲线可用方程 (2) 来描述 [10,11]

$$\dot{\epsilon} = a\sigma^n \exp(-Q/RT) \tag{2}$$

其中  $\dot{\epsilon}$  和  $\sigma$  分别为应变和应力,  $a$  为常数,  $Q$  是热激活能,  $n$  为应力指数 (即  $1/m$ ,  $m$  为蠕变敏感系数). 应变率和硬度变化率的关系为 [12]

$$\dot{\epsilon} = -\beta \frac{1}{H} \frac{dH}{dt} \tag{3}$$

其中  $\beta$  为材料常数,且应力和硬度关系为 [3]

$$H = C\sigma \tag{4}$$

其中  $C$  为常数.将式 (3), (4) 代入方程 (2) 并将方程两边对时间  $t$  积分得压入蠕变的硬度与保载时间关系 [13]

$$-n \ln H = \ln B - Q/RT + \ln t \tag{5}$$

式 (4) 说明  $\ln H$  和  $\ln t$  之间存在线性关系,其斜率即为应力指数的倒数.图 4 为高载 (10 mN) 下不同加载速率 / 加载载荷的 Al 膜的硬度 - 保载时间曲线.

如图 4 所示,在蠕变早期,硬度快速下降.在这个阶段虽然  $\ln H$  和  $\ln t$  符合式 (4) 的线性关系,但这样高的蠕变速率并不能真正反映材料的蠕变性质.造成这个阶段的硬度随时间的快速下降的主要原因是加载阶段没有来得及发生的塑性变形在这个阶段与蠕变变形共同导致测试材料宏观变形,促使压头在载荷不变的情况下仍然能够快速的压入测试材料.之后,蠕变曲线进入一个转接期,直到残余的塑性能释放完全,蠕变才达到稳定状态.此时,  $\ln H$  和  $\ln t$  之间存在很好的线性关系,说明式 (5) 可以用来测量室温下 Al 膜的蠕变性能.

保载载荷同为 10 mN 的情况下,多晶 Al 膜的应力指数随  $\dot{P}/P$  的升高而升高,由  $n=7.8$  升高到  $n=13.6$ .说明蠕变速率有很大的降低.低载 (1 mN) 下应力指数随  $\dot{P}/P$  的变化规律与高载相同,随  $\dot{P}/P$  升高,  $n$  由 7.0 升高到 11.3 (图 5).

2.3 压入法蠕变实验的应力指数

本文实验结果显示多晶 Al 膜的应力指数在高载

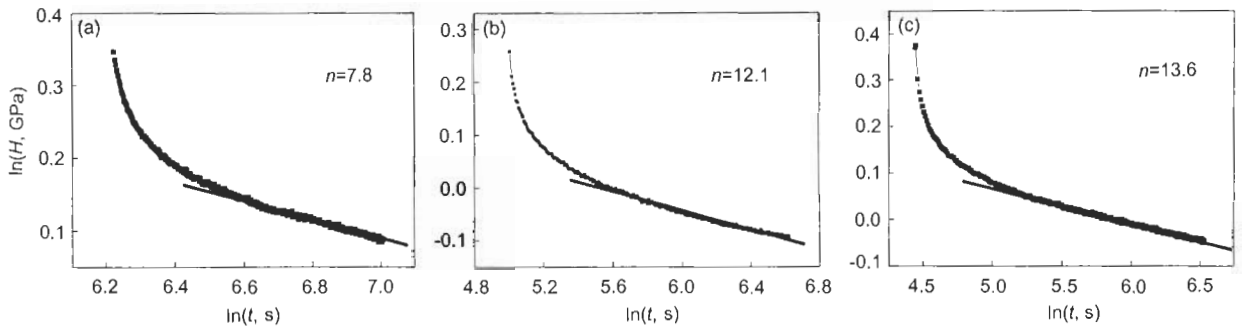


图 4 高载下硬度与时间的双对数变化

Fig.4 Hardness as a function of holding time under a load of 10 mN and  $\dot{P}/P=0.02$  ( $\dot{h}/h=0.10 \text{ s}^{-1}$ ) (a), 0.10 ( $\dot{h}/h=0.05 \text{ s}^{-1}$ ) (b) and 0.20 ( $\dot{h}/h=0.10 \text{ s}^{-1}$ ) (c)

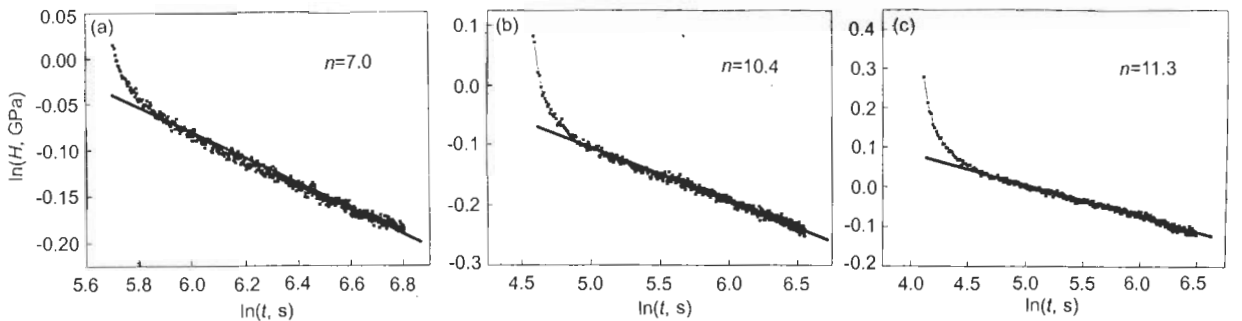


图 5 低载下硬度与时间的双对数变化

Fig.5 Hardness as a function of holding time under a load of 1 mN and  $\dot{P}/P=0.02$  (a), 0.10 (b) and 0.20 (c)

(10 mN) 和低载 (1 mN) 下分别为 7.8—13.6 和 7.0—11.3. 且在各个恒定  $\dot{P}/P$  下, 应力指数都随载荷升高而升高. Raman 和 Berriche<sup>[9]</sup> 利用恒定载荷方法对镀在 Si 基体上的厚度为 0.8  $\mu\text{m}$  和 1.6  $\mu\text{m}$  的 Al 膜进行压入蠕变实验, 测得 0.1 mN 到 8 mN 的载荷下应力指数范围为 7.9 到 9.5, 且随保载载荷升高, 应力指数的变化趋势与本文相同. Wu 等<sup>[14]</sup> 利用载荷释放法对磁控溅射镀制的厚度为 1  $\mu\text{m}$  和 0.7  $\mu\text{m}$  的 Al 膜进行压入蠕变实验, 测得其应力指数分别为 8.4 和 9.9. 以上结果与本文的实验结果基本相同, 其差别可能是由于镀膜工艺和薄膜厚度不同造成的.

Langdon<sup>[15]</sup> 测得经过退火的多晶 Al 块体材料的应力指数在 6.6—7 之间, 总体上比本文和文献中的 Al 膜应力指数小. 这可能是由于块体材料晶粒尺寸和表面位错数目与薄膜材料有很大不同造成的. 块体材料的晶粒尺寸比较大, 而压入仪的压头很小, 致使所有的变形只发生在块体材料的一个和少数几个晶粒中, 使得晶界滑移等现象不能发生或很少发生, 而由磁控溅射得到的薄膜材料晶粒较小, 晶界滑移对材料变形也有很大贡献. 同时薄膜材料表层的高密度位错也使其具有比块体材料更好的加工硬化能力, 即高的抵抗蠕变变形的能力, 也会降低材料的蠕变率.

#### 2.4 压入法蠕变实验蠕变量的确定

在相同的保载时间中, 高载 (10 mN) 下, 对应于加载应变率为 0.02, 0.10 和 0.20 的蠕变量分别为 48, 67 和 112 nm; 低载 (1 mN) 下分别为 17, 21 和 31 nm. 因此会得出随加载应变率的提高蠕变速率加快的结论. 但如前所示, 随加载应变率的提高, Al 膜的应力指数升高, 即蠕变敏感指数降低. 这与蠕变量变化的结论相反. 其原因在于蠕变初期的变形由两部分组成:

$$u = u_c + u_p \quad (5)$$

$u_c$  和  $u_p$  分别为真实蠕变变形和加载过程中没有完全释放的塑性变形, 而蠕变初期变形很大一部分来自这部分塑性变形. 随加载应变率的升高, 这种在蠕变阶段才能释放出来的塑性变形就越大, 由此得到的总蠕变量就高. 因此总蠕变量受加载方式的影响很大. 只有当这部分塑性变形完全释放, 即经过初期的快速压入和中间的过渡阶段后, 在蠕变达到稳态时材料的硬度和保载时间的双对数曲线才表现出线性关系, 这时才能计算得到材料的蠕变应力指数. 因此考察材料的蠕变性能应从总蠕变量和应力指数两方面考虑.

#### 2.5 基体对薄膜变形的影响

Al 膜 /Si 基体是软膜硬基体结构, 所以有必要考察纳米压入仪测得的 Al 膜蠕变性能是否受到了 Si 基体的影响. Raman 等<sup>[9]</sup> 认为其测得的 Al 膜应力指数随保载载荷升高而升高现象是因为在高载下压头接近膜基

界面受到了基体影响的结果, 而使蠕变率降低. 图 6 是 10 mN 载荷下的 Al 膜加载阶段硬度随压入深度的变化, 硬度值在压入的最初的几个纳米由 7.5 GPa 迅速降低到约 1.5 GPa, 表现出很强的压入尺寸效应, 之后硬度值随压入深度增加基本保持不变. 同时考虑到本文纳米压入的最大压入深度均小于膜厚的 1/7. 因此本文由硬度和保载时间得到的应力指数可以真实反映 Al 膜的蠕变性能.

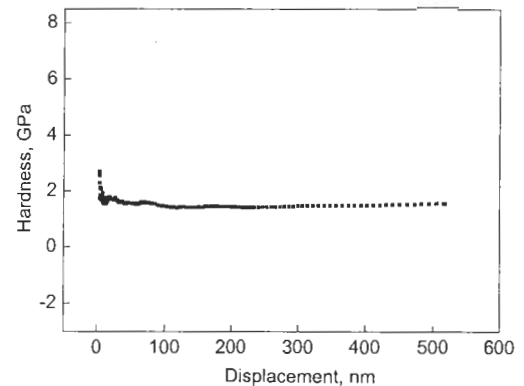


图 6 Al 膜硬度随时间的变化 (10 mN)

Fig.6 Hardness of Al film on the Si substrate as a function of holding time under load of 10 mN

本文纳米压入实验中多晶 Al 膜各个局部测试点其微观结构是相同的, 但随加载条件的不同, 其应力指数有很大的变化. 此实验结果并不能证明微观结构是否对室温蠕变应力指数产生影响, 但可以有力的证明加载条件对应力指数及其蠕变量是有很大影响的. 蠕变阶段蠕变量的增大主要是由加载阶段积攒的塑性变形在蠕变阶段释放引起的, 而应力指数随加载速率 / 载荷的变化而发生变化主要也是由这部分塑性变形造成的. 随  $\dot{P}/P$  的升高, 压头压入 Al 膜的速度加快, 使得加载阶段积攒的塑性变形增加, 并会在压头尖端产生比低  $\dot{P}/P$  时更多的位错, 因此高  $\dot{P}/P$  加载方式和由此引起的蠕变初期塑性变形的快速释放都会增加 Al 膜的加工硬化. 因此随  $\dot{P}/P$  升高多晶 Al 膜的应力指数升高 (即蠕变率降低). 同时注意到在各个  $\dot{P}/P$  下高载荷 (10 mN) 的应力指数都高于低载荷 (1 mN) 的应力指数, 也印证了大塑性变形量下材料的蠕变率会因为加工硬化的增强而降低.

### 3 结论

(1) 由于纳米压入仪具有非常高的载荷和位移分辨率, 成功地应用于磁控溅射多晶 Al 膜的室温蠕变性能的研究.

(2) 加载方式对测得材料的蠕变性能有很大的影响. 用恒加载速率 / 载荷法测量得到的多晶 Al 膜的应力指数和总蠕变量在不同加载条件下有比较大的差异, 其主要原因是加载过程中积累的塑性变形在蠕变过程中得到释放造成的.

(3) 随  $\dot{P}/P$  的升高, 在高载和低载下多晶 Al 膜的应力指数都有很大的升高.

(4) 在压入法蠕变实验中, 保载时的总蠕变量和应力指数给出的材料蠕变性能有可能是相反的, 因此考察加载方式对这两个蠕变参数的影响是非常必要的.

感谢黄立业博士在纳米压入实验中给予的帮助, 感谢张建民教授对本文部分实验结果的分析意见.

### 参考文献

- [1] Cui CH Y, Guo J T, Qi Y H, Ye H Q. *Acta Metall Sin*, 2002; 4: 342  
(崔传勇, 郭建亭, 齐义辉, 叶恒强. 金属学报, 2002; 4: 342)
- [2] Xiao B L, Ma ZH Y, Bi J. *Acta Metall Sin*, 2002; 9: 994  
(肖伯律, 马宗义, 毕敬. 金属学报, 2002; 9: 994)
- [3] Lucas B N, Oliver W C. *Metall Mater Trans A*, 1999; 30: 601
- [4] Chen J, Wang W, Lu L, Lu K. *Acta Metall Sin*, 2001; 11: 1179  
(陈吉, 汪伟, 卢磊, 卢柯. 金属学报, 2001; 11: 1179)
- [5] Mayo M J, Nix W D. *Acta Metall*, 1988; 36: 2183
- [6] Lafontaine W R, Yost B, Black R D, Li C Y. *J Mater Res*, 1990; 5: 217
- [7] Mayo M J, Siegel R W, Liao Y X, Nix W D. *J Mater Res*, 1992; 7: 973
- [8] Mayo M J, Siegel R W, Narayanasamy A, Nix W D. *J Mater Res*, 1990; 5: 1073
- [9] Raman V, Berriche R. *J Mater Res*, 1992; 7: 627
- [10] Li W B, Henshall J L, Hooper R M, Eastering E. *Acta Metall*, 1991; 39: 3099
- [11] Chang H, Alstetter C J, Averbach R S. *J Mater Res*, 1992; 7: 2962
- [12] Li W B, Henshall J L, Hooper R M, Eastering E. *Acta Metall*, 1991; 39: 3099
- [13] Shen B L, Itoi T, Yamasaki T, Ogino Y. *Scr Mater*, 2000; 42: 893
- [14] Wu T W, Moshref M, Alexopoulos P S. *Thin Solid Films*, 1990; 187: 295
- [15] Langdon T G. *Met Forum*, 1978; 1: 59