

鼓泡法测量有机薄膜力学性能*

任凤章 周根树** 赵文轸 胡志忠 郑茂盛 鞠新华

西安交通大学金属材料强度国家重点实验室, 西安 710049

摘要 为了检验鼓泡法测试薄膜力学性能的可靠性, 用鼓泡法试验研究了一种有机薄膜的弹性模量、弹性极限, 及其在低碳钢基体上粘结的界面结合能. 结果表明, 该膜力学性能的测试结果与鼓泡法试样尺寸无明显关系, 且与单向拉伸和拉脱实验结果基本相符. 鼓泡实验测得该膜的二维弹性模量 Y 为 (2.5 ± 0.3) GPa, 弹性极限 σ_e 为 (14.0 ± 1.5) MPa, 界面结合能 G 为 (13.9 ± 2.2) N/m.

关键词 鼓泡实验 弹性模量 弹性极限 界面结合能

薄膜技术已广泛地用于电子元件和工程结构件的制造. 薄膜的力学行为对于薄膜元器件的稳定性和可靠性非常重要. 因而, 薄膜力学性能一直是一个重要的研究领域. 研究薄膜力学性能的方法很多, 但鼓泡法是一种既能确定薄膜的弹性模量、残余应力、屈服强度、断裂强度, 同时又能确定界面结合能的重要实验方法.

自1959年 Beams 等^[1]首创鼓泡实验测定沉积在基体上的薄膜力学性能以来, 鼓泡实验在试样设计和理论模型研究等方面已取得很大进展. Vlassak 等^[2]给出了方形和矩形孔试样鼓泡实验测量弹性模量和残余应力的力学模型. Karimi 等^[3]用鼓泡实验测定了 Si 基体上 SiN_x 薄膜的弹性模量和残余应力, 以及在 Si 基体上的 $\text{SiN}_x + \text{TiN}_y$ 复合膜的 SiN_x 和 TiN_y 膜各自的残余应力和弹性模量. Jensen^[4]给出了鼓泡实验无残余力膜各种挠度范围下的界面结合能的表达式. Hohlfelder 等^[5]导出了残余应力存在下的界面结合能的表达式, 并研究了氮化物基体丙烯酸酯膜的界面结合能. Zheng 等^[6]研究了界面滑移对界面结合能测试结果的影响, 并提出了比例位移模型.

迄今为止, 试样孔径对鼓泡实验结果的影响, 鼓泡实验与单向拉伸实验和拉脱实验结果的对比研究还少见报道. 本文在自制的鼓泡仪上, 以有机压

敏胶带为研究对象, 对其弹性模量, 弹性极限, 及其在低碳钢基体上粘结时的界面结合能进行了全面的研究, 并将其实验结果与单向拉伸实验和拉脱实验的结果进行了对比.

1 实验方法

1.1 鼓泡实验的装置及原理

鼓泡实验装置如图1所示. 用胶粘剂将分离膜贴于带孔的基体上或用微机械加工技术在有膜的基体上加工出小孔做成鼓泡实验试样. 在膜的一侧逐渐增加气体压力, 并测量膜中心的挠度, 从而得到压力与挠度的关系. 压力的大小由压力传感器测量, 其分辨率为1kPa, 最大测量限为1MPa. 膜

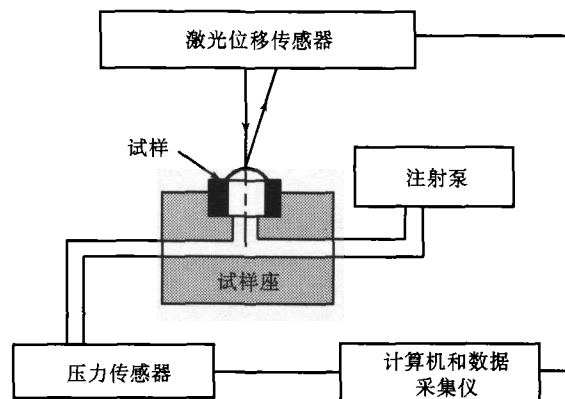


图1 鼓泡实验装置示意图

2001-07-13 收稿, 2001-10-17 收修改稿

* 国家自然科学基金资助项目(批准号: 59931010 和 59831040)

** 联系人, E-mail: zhoughs@xjtu.edu.cn

中心的挠度由红外激光位移传感器测量, 其分辨率为 $2\ \mu\text{m}$, 测量范围 $\pm 4\ \text{mm}$. 数据由计算机采集和处理.

实验测得的是压力与挠度的关系曲线, 该曲线隐含着薄膜的力学参数. 依据压力与挠度的变化规律, 结合适当的力学理论模型, 就可求得薄膜的力学性能.

1.2 实验过程

实验所选用的薄膜有机压敏胶带厚度为 $0.05\ \text{mm}$. 基体为 A3 钢 $\phi 30\ \text{mm}$ 圆片, 在圆片的中心加工有直径 d 分别为 $6.00, 8.04, 10.10, 11.88, 16.00$ 和 $18.00\ \text{mm}$ 的圆孔. 基体表面磨光, 用丙酮和酒精清洗干净. 将此胶带四周张紧贴于基体上. 粘贴时使所有试样单位面积的粘贴压紧力相同.

本实验旨在测量胶带的弹性性能(二维弹性模量 Y 和弹性极限 σ_e)以及胶带与低碳钢基体的界面结合能. 试样装夹如图 2 所示. 对弹性性能测试时, 压盖的孔径 D 需与试样孔径 d 相同, 且两孔保持同心, 否则易造成膜与基体过早分离而使鼓起的有效孔径尺寸不确定而无法测定弹性极限. 每个孔径测量 5 个试样.

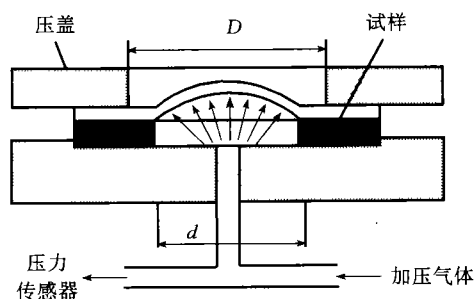


图 2 试样装夹图

测量界面结合能时, 压盖孔径 D 必须大于试样孔径 d , 以免限制了膜基界面的自由分离. 实验中, 缓慢加压, 用放大镜观察试样内孔边缘膜基结合情况, 当膜基开始分离时, 记录这时的临界压力和中心挠度. 每个孔径测量 5 个试样.

1.3 单向拉伸实验和拉脱实验

单向拉伸实验在深圳 CMT4204 万能实验机上进行. 拉伸速度为 $50\ \text{mm}/\text{min}$.

拉脱实验如图 3 所示. 实验时, 把胶带四周张紧粘在与鼓泡实验试样同样材质、同样表面处理的基体上. 所用粘贴压紧力也相同. 试样做好后进

行 $\theta = 90^\circ$ 的缓慢拉脱实验. 实验时, 观察膜基界面, 并记录膜基沿界面开始分离时的临界拉力.

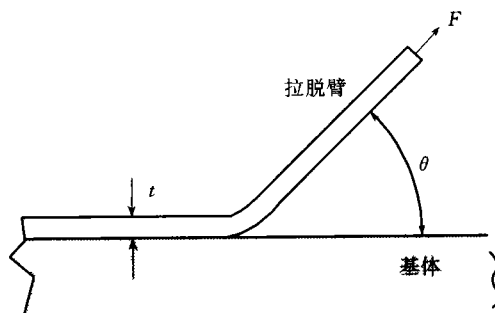


图 3 拉脱实验示意图

2 结果与分析

2.1 单向拉伸

实验测得胶带单向拉伸的应力-应变曲线如图 4 所示. 实验重复性很好, 3 个试样的平均值为: 弹性模量 $E = 1.3\ \text{GPa}$, 弹性极限 $\sigma_{0e} = 13.5\ \text{MPa}$, 按双线性模型简化的屈服应力 $\sigma_y = 16\ \text{MPa}$, 屈服应变 $\epsilon_y = 1.23\%$, 硬化参数 $\alpha = 0.046$.

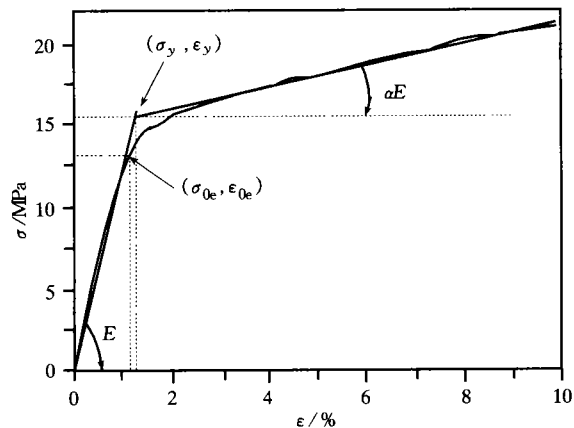


图 4 单向拉伸应力-应变曲线

单向拉伸实验是最普遍的一种机械性能实验方法, 它具有简单、可靠、能清楚反映材料受力时变形过程等特点. 在这里用作验证鼓泡实验的结果.

2.2 拉脱实验

为了测定界面结合能, 并与鼓泡实验作对比研究, 进行了 90° 拉脱实验. 拉脱实验方法简单可靠, 被广泛用于测量膜基界面结合强度. 过去只是用测得的拉脱强度来表示界面结合强度的高低, 而未获得真正的界面结合强度. 近年来, 拉脱实验的理论解释有了突破性进展, 文献 [7~9] 给出了一些界面结合能的表达式.

根据能量守恒原理,对缓慢进行的拉脱实验,单位面积界面结合能 G 可表示为

$$G = \frac{F}{b} - \Psi, \quad (1)$$

式中 F 为拉脱力, b 为试样宽度, F/b 即为拉脱强度, Ψ 为薄膜与基体沿膜基界面分离一个单位面积时薄膜塑性弯曲耗散功(简称塑性弯曲耗散功).

Kinloch 等^[8]给出的 Ψ 的表达式为

$$\Psi = G_{\max, e}(1-\alpha) \left(\frac{k_0}{3} + \frac{2(1-\alpha)^2}{3k_0} - 1 \right),$$

$$1 < k_0 < 2(1-\alpha)/(1-\alpha) \text{ 或 } \alpha \geq 0.5, \quad (2a)$$

$$\Psi = G_{\max, e} \left(\frac{4}{3} \alpha(1-\alpha)^2 k_0^2 + 2(1-\alpha)^2(1-2\alpha)k_0 + \frac{2(1-\alpha)}{2(1-2\alpha)k_0} (1 + 4(1-\alpha)^3) - (1-\alpha)(1 + 4(1-\alpha)^2) \right),$$

$$k_0 > 2(1-\alpha)/(1-\alpha) \text{ 和 } \alpha < 0.5, \quad (2b)$$

式中 $G_{\max, e} = \frac{1}{2} (E \epsilon_y^2 t)$ 为单位面积非加工硬化材料薄膜($\alpha=0$)的最大弹性应变能, E 为薄膜弹性模量, ϵ_y 为薄膜屈服应变, t 为薄膜厚度, k_0 为薄膜的屈服曲率半径与拉脱臂前端的实际曲率半径之比. 屈服曲率半径为薄膜在弯曲时其外表面开始发生塑性屈服时的曲率半径, 而实际曲率半径为拉脱臂与基体开始接触处薄膜的实际曲率半径. α 为薄膜加工硬化参数.

薄膜的屈服曲率半径和拉脱臂前端的实际曲率

半径无法从实验中测得,可计算求值.

(2a)或(2b)式与其他的一些方程联合可求得塑性弯曲耗散功,然后将其代入(1)式就可求得界面结合能.

实验测得5个试样拉脱强度 $F/b = (62.5 \pm 7.2) \text{ N/m}$, 界面结合能 $G = (14.5 \pm 1.9) \text{ N/m}$. 由此可见,用拉脱强度代表界面结合能是不合适的,界面结合能仅占拉脱强度的一小部分,大部分能量因塑性弯曲变形而耗散掉.

2.3 鼓泡实验

2.3.1 弹性性能的测定 在鼓泡实验中,对线弹性材料薄膜,在其弹性变形阶段和大挠度条件下($h \gg t$),压力与挠度关系符合球冠模型方程^[1]

$$P = \frac{4t}{a^2} \sigma_0 h + \frac{8tY}{3a^4} h^3, \quad (3a)$$

$$\text{或 } \frac{P}{h} = \frac{4t}{a^2} \sigma_0 + \frac{8tY}{3a^4} h^2, \quad (3b)$$

式中 P 为加载(气体)压力, h 为薄膜中心挠度(高度), Y 为薄膜的二维弹性模量, $Y = E/(1-\nu)$, ν 为 Poisson 比, t 为薄膜厚度, a 为圆孔半径, σ_0 为膜内残余应力(粘贴时引入).

由(3b)式可以看出: P/h 与 h^2 符合线性关系. 由这条直线的截距和斜率可求得膜内残余应力 σ_0 和二维弹性模量 Y . 图5是加载压力较低的情况下(薄膜未发生塑性变形),不同孔径试样的 $P-h$ 曲线(a)和 $P/h-h^2$ 曲线(b). 由图5可以看出, P/h 与 h^2 线性关系很好.

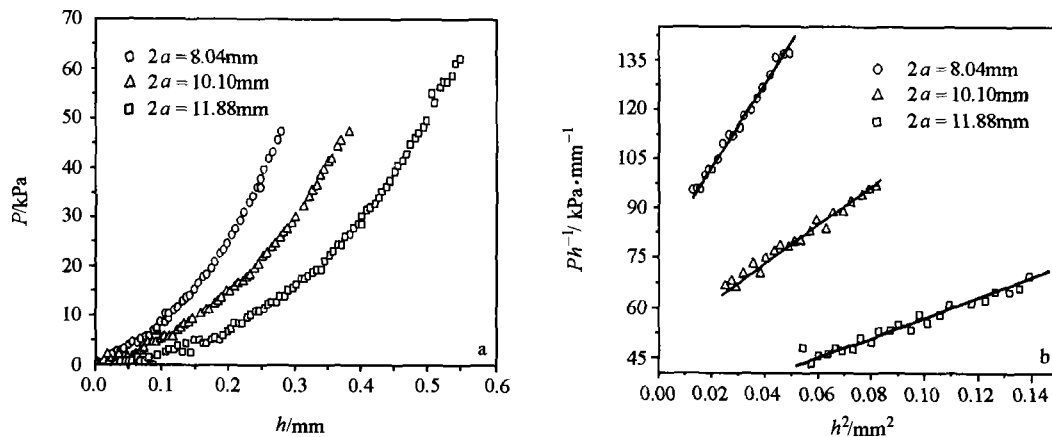


图5 不同孔径的(a) $P-h$ 曲线和(b) $P/h-h^2$ 曲线

求解 $P/h-h^2$ 曲线时, 因小挠度下, $P-h$ 关系不遵守球冠模型方程, 这时压力 P 与挠度 h 的测量精度也较低, 故舍去 $P-h$ 曲线低压力 ($P \leq 10$ kPa) 小位移部分.

用有限元分析表明: 用球冠模型方程求解膜内残余应力和二维弹性模量与有限元方法符合很好^[2].

鼓泡实验时, 膜内应力 σ 与压力 P 、挠度 h 有以下关系

$$\sigma = \frac{Pa^2}{4ht}, \quad (4)$$

当膜内应力 σ 超过其弹性极限 σ_e (二维等向弹性极

限)时, 薄膜将发生塑性变形, 这时 $P/h-h^2$ 关系将偏离其线性部分, 如图 6(a)所示. 根据起始偏离点的坐标就可求得薄膜开始发生塑性变形时的压力 P 和挠度 h 的值, 把 P 和 h 的值代入(4)式就可求得弹性极限 σ_e .

在求弹性极限 σ_e 时, 也可以先根据 $P/h-h^2$ 曲线前端的线性部分(薄膜处于弹性变形阶段)求得薄膜的残余应力 σ_0 和二维弹性模量 Y , 再利用公式(3a)拟合出薄膜的 $P-h$ 曲线. 若薄膜一直处于弹性变形状态, 那么其 $P-h$ 关系将符合此曲线. 将拟合的 $P-h$ 曲线与实测 $P-h$ 曲线叠加就可求得实测曲线偏离拟合曲线的起始点坐标, 如图 6(b)所示. 把求得坐标值代入(4)式就可求得弹性极限 σ_e .

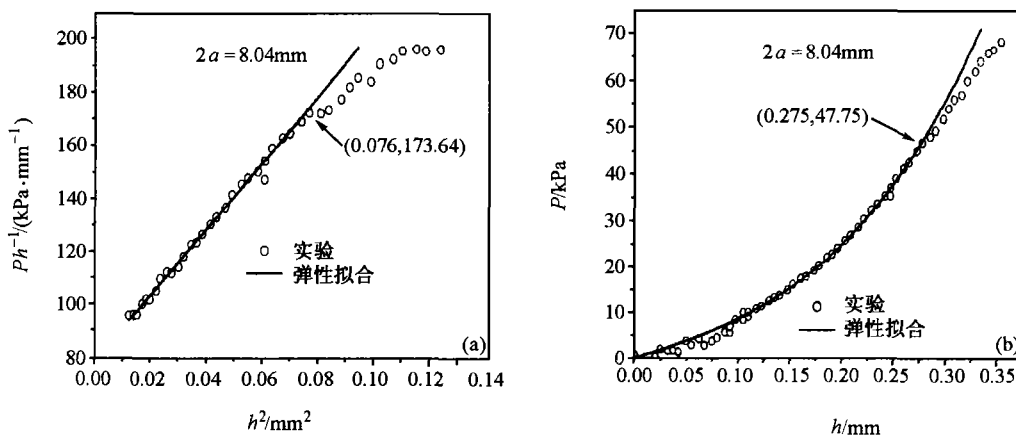


图 6 弹性极限测量图 (a) $P/h-h^2$ 曲线 (b) $P-h$ 曲线

在平面应力条件下, 根据 Mises 应变能判据, 若二维等向应力等于单向拉伸的弹性极限时, 材料开始发生塑变. 即材料的二维等向弹性极限与单向拉伸的弹性极限相同, σ_e 与 σ_{0e} 之间可以直接对比.

由表 1 可见, 二维弹性模量 Y 和弹性极限 σ_e 数值较稳定, 重复性好, 不随试样孔径的变化而变化. Y 值在 2.3~2.8 GPa 之间. ν 值应在 0.45 左右, 若 $\nu=0.45$, 那么弹性模量 E 约在 1.3~1.5 GPa 之间, 和单向拉伸基本相符. σ_e 值范围为 12.5~15.5 MPa, 在其范围内有些值偏离 σ_{0e} 较多, 这主要是因为 σ_e 值是材料起始塑性变形时的应力, 其测量精度受仪器精度和人为因素影响较大(σ_{0e} 也同样). 不过, 总的平均值约 14.0 GPa, 和拉伸的弹性极限 σ_{0e} 接近.

表 1 不同孔径的弹性模量 Y 和弹性极限 σ_e

$2a/\text{mm}$	Y/GPa	σ_e/MPa
6.00	2.5 ± 0.2	13.5 ± 0.4
8.04	2.7 ± 0.1	13.7 ± 0.6
10.10	2.6 ± 0.1	14.2 ± 0.9
11.88	2.6 ± 0.2	14.0 ± 1.0
16.00	2.5 ± 0.1	13.9 ± 1.4
18.00	2.6 ± 0.1	14.2 ± 1.3

由以上结果可以看出, 鼓泡实验中数据较稳定, 重复性好, 真实可靠, 这也使得鼓泡实验在研究进行拉伸实验困难的金属膜和无机化合物膜的力学性能方面尤显重要.

2.3.2 膜基界面结合能 Janson^[4]根据界面断裂的混合模型, 给出了绝对柔性(弯曲刚度为零)无残余应力膜试样的界面结合能表达式

$$G = \frac{P_0 h_0}{f(\nu)} \left(\frac{1}{8\gamma} + \frac{\gamma^2(1-\nu^2)}{2} \right), \quad (5)$$

式中 P_0 , h_0 分别为膜基界面起始分离时的临界压力和挠度, $f(\nu) = \sqrt[3]{3(1-\nu)/(7-\nu)}$, $\gamma = g(\nu)$, 当 $\nu = 0.45$, γ 数值解为 0.362.

(5)式是在薄膜处于弹性状态下导出的.

在薄膜厚度较小时, 膜内残余力对界面结合能的影响较小^[5,10]. 由于压敏胶带厚度较小, 计算界面结合能时忽略残余应力对界面结合能的影响, 又因压敏胶带的弯曲刚度较小, 所以, 计算界面结合能时, 可以采用公式(5). 实验结果如表 2 所示.

表 2 不同孔径试样界面结合能 ($\nu = 0.45$)

$2a/\text{mm}$	$P_0 h_0/\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$	$G/\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$
6.00	20.7 ± 2.1	13.0 ± 1.3
8.04	22.6 ± 1.1	14.2 ± 0.7
10.10	22.3 ± 1.4	14.0 ± 0.9
11.88	23.8 ± 1.6	15.0 ± 1.0
16.00	22.1 ± 1.7	13.9 ± 1.1
18.00	22.9 ± 1.0	14.4 ± 0.6

实验中测得的 P_0 , h_0 值不仅不同孔径试样相差较大, 就是同一孔径试样相差也较大. 这是由于试样制备时, 因各试样膜内残余应力不同而引起的. 但是 $P_0 h_0$ 值相差不大, 如表 2 所列. 把每个试样的 P_0 , h_0 值代入(4)式求出膜基分离时的膜内应力, 发现其应力均小于 σ_{0e} . 这说明膜基分离时薄膜未发生塑性变形, 因此可用(5)式求解.

由表 2 可以看出, 求得界面结合能 $G = (13.9 \pm 2.2) \text{ N/m}$, 与试样孔径无关, 与拉脱实验结果 $G = (14.5 \pm 1.9) \text{ N/m}$ 基本一致.

3 结论

(1) 鼓泡实验测定的压敏胶带二维弹性模量 Y

为 $(2.5 \pm 0.3) \text{ GPa}$ 、弹性极限 σ_e 为 $(14.0 \pm 1.5) \text{ MPa}$ 、与低碳钢基体的界面结合能 G 为 $(13.9 \pm 2.2) \text{ N/m}$. 试样尺寸对实验结果没有影响;

(2) 鼓泡实验结果与拉伸实验和拉脱实验结果基本相符;

(3) 鼓泡实验可应用于薄膜自身力学性能以及膜基结合能的测试.

参 考 文 献

- 1 Beams J W. The Structure and Properties of Thin Film. New York: John Wiley and Sons, 1959. 183
- 2 Vlassak J J, et al. A new bulge test technique for the determination of Young's modulus and Poisson's ratio of thin films. J Mater Res, 1992, 7: 3242
- 3 Karimi A, et al. Characterisation of TiN thin films using the bulge test and the nanoindentation technique. Thin Solid Films, 1997, 308, 309: 334
- 4 Jensen H M. The blister test for interface toughness measurement. Engineering Fracture Mechanics, 1991, 40(3): 475
- 5 Hohlfelder R J, et al. Measuring Interfacial Fracture Toughness with the Blister Test. In: William W, Gerberich ed, Thin Films: Stresses and Mechanical Properties VI [C]. Pittsburgh, PA: Materials Research Society, 1997. 436, 115
- 6 Zheng M, et al. Frictional effects of interface bonding energy in blister testing. Theor Appl Fract Mech, 1999, 32: 75
- 7 Kim K S, et al. Elastoplastic analysis of the peel test. Int J Solids Struct, 1988, 24: 417
- 8 Kinloch A J, et al. The peeling of flexible laminates. Int J Fract, 1994, 66: 45
- 9 Moidu A K, et al. Analysis of the peel test: Prediction of adherend plastic dissipation and extraction of fracture energy in metal-to-metal adhesive joints. J Test Eval, 1995, 23: 241
- 10 Gent A N, et al. Blow-off pressures for adhering layers. J Appl Polym Sci, 1987, 33: 1567