

纳米压痕法测量 Cu 的室温蠕变速率敏感指数*

张建民^{1)†} 徐可为²⁾

¹⁾ 陕西师范大学物理学与信息技术学院, 西安 710062)

²⁾ 西安交通大学金属材料强度国家重点实验室, 西安 710049)

(2003 年 10 月 8 日收到, 2003 年 11 月 26 日收到修改稿)

把恒加载速率/载荷法 (const. \dot{P}/P) 和恒载荷法 (const. P) 相结合, 提出了一个稳态加载和长时间保载的纳米压痕蠕变试验新方法. 该方法不仅适用于高蠕变能力的低熔点材料, 也适用于低蠕变能力和存在压痕尺寸效应的高熔点材料. 用该方法确定 Cu 的室温蠕变速率敏感指数 m 为 0.01, 并发现其值不受加载段所用的 \dot{P}/P 值和达到的最大压入位移 h_{\max} 的影响.

关键词: 纳米压痕, 铜, 蠕变, 蠕变速率敏感指数

PACC: 0365B, 0620H, 6220F, 8140L

1. 引 言

许多材料 (特别是高熔点材料) 的室温蠕变能力较低, 传统的拉伸方法很难准确测量这些材料的室温蠕变速率敏感指数 m . 纳米压入仪具有极高的载荷和位移分辨率, 是研究材料室温蠕变特性的一种有效方法.

有两种类型的纳米压入仪: 载荷控制型和位移控制型. 前者是控制作用于压头上的载荷 P , 测量压头压入材料的位移 h . 后者则相反, 即控制压头压入材料的位移 h , 测量作用于压头上的载荷 P ^[1]. 载荷控制型纳米压入仪测量材料的蠕变速率敏感指数 m 常用的方法有三种: 即恒加载速率法 (const. \dot{P})^[2], 恒载荷法 (const. P)^[3-5] 和恒加载速率/载荷法 (const. \dot{P}/P)^[6]. 位移控制型纳米压入仪测量材料的蠕变速率敏感指数 m 的常用方法为载荷松弛法 (LR)^[7].

恒加载速率法和恒载荷法是 Mayo 和 Nix 等在 1988 年和 1990 年提出来的, 并分别用于研究 Pb-Sn 和 Sn-38wt% Pb 合金^[2] 和 TiO₂^[3], ZnO^[4], Sn 和 Al^[5] 的蠕变行为. 这两种方法均属于非稳态的压入过程, 即压入应变速率 \dot{h}/h 随不同压痕 (对恒加载速率法) 或同一压痕的不同深度 (对恒载荷法) 变化. 恒加

载速率/载荷法是 Lucas 和 Oliver 在 1999 年研究高纯 In 的蠕变行为时提出来的. 他们采用金刚石 Berkovich 三棱锥压头, 控制加载速率使加载速率/载荷 \dot{P}/P 为恒定值, 结果发现加载过程中材料的硬度 H 和压入应变速率 \dot{h}/h 均为恒定值 (即为稳态的压入过程), 并且 $\dot{h}/h = (\dot{P}/P)^2$. 由加载过程中的恒硬度 H 和恒应变速率 \dot{h}/h 的双对数曲线的斜率确定 In 的蠕变速率敏感指数 m ^[6]. 我们曾以 Cu 为例对该方法进行了考查, 结果发现 (1) 恒 \dot{P}/P 加载确实能够得到恒定的应变速率 \dot{h}/h , 但 $\dot{h}/h = (\dot{P}/P)^n$ (n 为加载曲线 (即 $P-h$ 曲线) 的拟合指数). (2) 硬度 H 并不是常数, 而是随压入深度 h 的增加而减小, 即存在压痕尺寸效应 (ISE). (3) 恒 \dot{P}/P 法不能用于确定 Cu 等高熔点材料的蠕变速率敏感指数 m ^[8].

本文把恒加载速率/载荷法与恒载荷法相结合. 用前者实现稳态的压入过程, 以避免原恒载荷法所用的非常高的恒加载速率 ($\dot{P} = 1.85 \text{ mN/s}$) 引起的振荡和非稳态性. 用后者相对大的塑性变形 (加载段末储存在材料中的弹性变形转变为塑性变形) 过程研究材料的蠕变行为. 测得 Cu 的室温蠕变速率敏感指数 m 为 0.01, 并发现其值不受加载方式 (包括加载段所用的 \dot{P}/P 值和达到的最大压入位移 h_{\max}) 的影响.

* 国家自然科学基金 (批准号 50271038, 59931010) 资助的课题.

† E-mail: jianm_zhang@yahoo.com

2. 材料及实验步骤

Cu 因其电阻率低和熔点高两大特点常代替 Al 作为集成电路的内连导线,以便降低焦耳热和提高抗电迁移能力^[9]. 但和 Al 一样, Cu 的蠕变也是影响集成电路的可靠性和使用寿命的一个重要原因^[10]. 因此,对 Cu 蠕变行为的研究具有一定的现实意义. 我们选取厚度为 0.5 mm 纯度为 99.98% 的 Cu 箔作为试样,经机械抛光获得光滑表面后再用稀硝酸溶液腐蚀掉氧化或加工硬化层.

采用美国 MTS 公司生产的纳米压入仪进行压入试验,该设备为载荷控制型,除容易控制载荷 P 外,其加载速率 \dot{P} 、加载速率/载荷 \dot{P}/P 也容易控制. 仪器的载荷 P 和位移 h 的分辨率分别为 75 nN 和 0.1 nm. 采用金刚石 Berkovich 三棱锥压头.

压入过程包括以下六个阶段 (1) 表面接近段: 用 10 nm/s 的下降速率使压头缓慢靠近试样表面. 当接触刚性突然增大时,表明压头已接触到试样表面. 连续刚性测量 (CSM) 是通过附加在压头上的微小高频振荡力实现的^[11]. (2) 加载段: 采用恒加载速率/载荷 (const. \dot{P}/P) 加载方式使压头压入试样到预定的最大深度 h_{\max} . 为了考查加载方式的影响,选取 $\dot{P}/P = 0.2, 0.1, 0.05$ 和 0.01 s^{-1} 和 $h_{\max} = 500, 1000$ 和 1500 nm 进行比较试验. (3) 第一次保载段: 当压头压入到预定的最大深度 h_{\max} 时 (载荷 P 也达到了最大值 P_{\max}), 保持最大载荷 30 min, 使储存于加载系统和试样中的弹性变形转变为试样的塑性变形, 实现类似于 Mayo 和 Nix 的恒载荷 (const. P) 蠕变过程^[3,4]. 但他们是采用恒加载速率 (const. \dot{P}) 方式加载并且保载时间仅为 1 min. 我们采用稳态的恒加载速率/载荷 (const. \dot{P}/P) 方式加载后长时间 (30 min) 保载以便获得更低的应变速率 \dot{h}/h , 扩展应变速率变化范围, 提高应变速率敏感指数 m 的确定准确性. (4) 第一次卸载段: 恒载荷蠕变过程结束后, 卸载到 $0.2P_{\max}$. (5) 第二次保载段: 保持 $0.2P_{\max}$ 载荷 7 min, 获得仪器的热漂移速率, 对实验数据进行热漂移校正. (6) 第二次卸载段: 把载荷从 $0.2P_{\max}$ 卸载到零. 对每个压入过程均重复三次 (压三个坑) 以考查实验的重复性. 作为例子, 图 1 给出了用 $\dot{P}/P = 0.01 \text{ s}^{-1}$ 加载到最大深度 $h_{\max} = 1000 \text{ nm}$ 的压入过程中的 $P-t$ 曲线, 其中表面接近段 (1) 和第二次卸载段 (6)

的数据尚未记录.

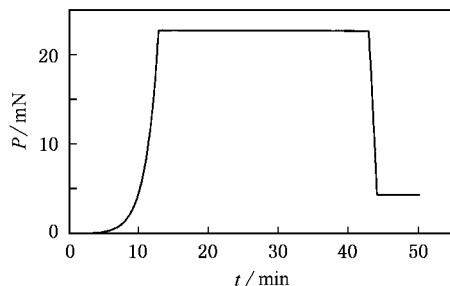


图 1 $\dot{P}/P = 0.01 \text{ s}^{-1}$ 加载到最大深度 $h_{\max} = 1000 \text{ nm}$ 的压入过程中的 $P-t$ 曲线

3. 结果及讨论

3.1. 载荷-位移曲线

图 2 为 $\dot{P}/P = 0.2, 0.1, 0.05$ 和 0.01 s^{-1} 加载到同一最大位移 $h_{\max} = 500 \text{ nm}$ 对应的三个阶段 (加载段、第一次保载段和第一次卸载段) 的 $P-h$ 曲线.

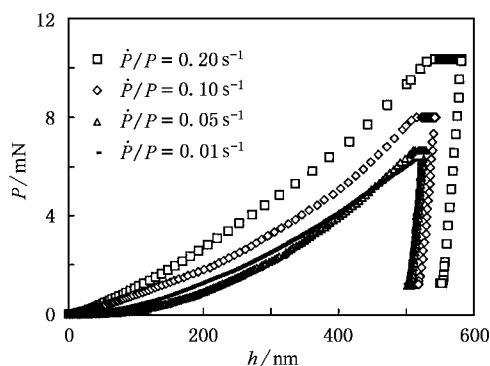


图 2 $\dot{P}/P = 0.2, 0.1, 0.05$ 和 0.01 s^{-1} 加载到 $h_{\max} = 500 \text{ nm}$ 对应三个阶段的 $P-h$ 曲线

加载段所用的时间 Δt_{load} 和达到的最大载荷 P_{\max} , 第一次保载段 ($P = P_{\max}$, $t = 30 \text{ min}$) 所产生的蠕变位移 Δh_{creep} , 第一次卸载段所产生的弹性恢复位移 $\Delta h_{\text{re cov}}$ 和弹性恢复比 $R_{\text{re cov}}$ ($\Delta h_{\text{re cov}}$ 除以第一次保载段末的位移) 列在表 1 中.

表 1 $P-h$ 曲线 (图 2) 上的一些特征参数

$\frac{\dot{P}}{P}/\text{s}^{-1}$	$\Delta t_{\text{load}}/\text{min}$	P_{\max}/mN	$\Delta h_{\text{creep}}/\text{nm}$	$\Delta h_{\text{re cov}}/\text{nm}$	$R_{\text{re cov}}/\%$
0.20	0.77	10.37	36.85	23.48	4.06
0.10	1.21	8.02	27.48	24.12	4.45
0.05	2.29	6.69	13.04	18.40	3.50
0.01	7.86	6.30	8.36	20.25	3.90

从表 1 可以看出 (1) 压入一定深度 (这里为 500 nm) 所需要的最大载荷 P_{\max} 随 \dot{P}/P 的增加而增加. 这是由于 \dot{P}/P 越大, 加载段所用的时间 Δt_{load} 越短 (见表 1), 依赖于时间的变形 (如滞弹性和蠕变) 越小, 要达到一定深度需要进一步加载. (2) 第一次保载段所产生的蠕变位移 Δh_{creep} 也随 \dot{P}/P 的增加而增加. 这也是由于高 \dot{P}/P 值加载过程中发生的依赖于时间的变形越小, 加载段末材料中储存的相对大的弹性变形导致 (转变为) 保载段相对大的塑性变形. (3) 卸载线近似为直线并且弹性恢复比 $R_{\text{re cov}} \approx 4\%$, 因此在以下计算中将用总位移代替塑性位移.

3.2. 用恒载荷段 ($P = P_{\max}$, $t = 30 \text{ min}$) 确定 Cu 的室温蠕变速率敏感指数 m

压头作用下的材料由远离压头的非变形区和靠近压头的弹塑性变形区组成, 蠕变过程与弹塑性区边界向非变形区扩展的速率有关. 若假设弹塑性区边界和压头的瞬时接触面积 A 随时间的变化规律相同, 因此可用瞬时接触面积的时间变化率与瞬时接触面积的比值定义压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i$, 即 $\dot{\epsilon}_i = \dot{A}/A$. 由于锥形压头的几何相似性 (例如对理想的 Berkovich 三棱锥压头, $A = 24.5h^2$), 可进一步用瞬时塑性位移速率与瞬时塑性位移的比值 \dot{h}/h 定义压入应变速率, 即 $\dot{\epsilon}_i = \dot{h}/h$. 由表 1 可知, Cu 的弹性恢复比 $R_{\text{re cov}} \approx 4\%$, 因此我们用总位移代替塑性位移.

材料的流变应力是温度和应变速率的函数. 当温度恒定时, 流变应力 σ 与应变速率 $\dot{\epsilon}$ 满足指数关系, 即 $\sigma = C_1(\dot{\epsilon})^m$. C_1 为常数, m 称为蠕变速率敏感指数.

材料的硬度是表征材料抵抗塑性变形能力的物理量, 与材料的流变应力和加工硬化能力有关. 若假设瞬时硬度 $H = P/A$ (可作为平均应力) 和瞬时压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i$ 分别与单拉伸蠕变试验的流变应力 σ 和应变速率 $\dot{\epsilon}$ 成正比, 便可得到类似的关系, 即 $H = C_2(\dot{\epsilon}_i)^m$, C_2 为常数. 因此, 类似于传统的单拉伸蠕变试验分析方法, 可由保载过程的瞬时硬度 H 和瞬时压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i$ 的双对数曲线的斜率确定材料的蠕变速率敏感指数 m . 在保载过程中, 尽管载荷 P 保持不变, 但由于位移 (因而使接触面积 A) 随时间增加而使硬度 H 随时间减小.

图 3 为用 $\dot{P}/P = 0.05 \text{ s}^{-1}$ 加载到三个不同最大

深度 $h_{\max} = 1500, 1000, 500 \text{ nm}$ (对应的最大载荷 $P_{\max} = 38.48, 20.67, 6.23 \text{ mN}$) 后保持最大载荷 30 min 过程中的位移-时间曲线. 对应 $h_{\max} = 1000$ 和 500 nm 的曲线分别向上平移了 490 和 990 nm 以便比较. 可以看出, 在保载初期, 位移快速增加, 随着保载时间的延长位移随时间的增加速率逐渐变慢. 这是因为在保载初期, 蠕变变形主要是压头下稳态弹塑性区的形成过程, 随着保载时间的延长材料中逐渐形成稳定的变形结构, 各种类型缺陷的形成和湮没达到动态平衡, 变形进入到准稳态阶段.

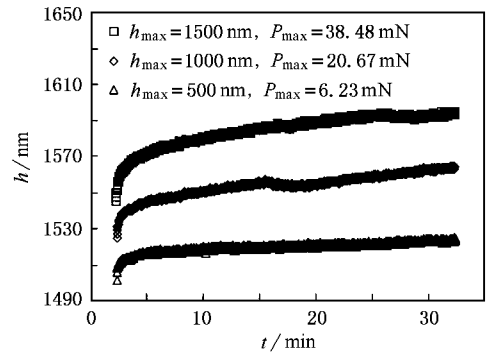


图 3 压入不同深度 $h_{\max} = 1500, 1000, 500 \text{ nm}$ 后保载 30 min 过程中的 $h-t$ 曲线

图 4 为根据图 3 所示的三个保载段的 $h-t$ 曲线计算的瞬时压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i = \dot{h}/h$ 和对应的瞬时硬度 $H = P/A$ 的双对数曲线. 较好的线性数据点分布表明上述假设的正确性, 即 $H = C_2(\dot{\epsilon}_i)^m$. 在 30 min 的恒载荷蠕变过程中, 压入应变速率的变化范围几乎跨越 4 个数量级. 由三条直线的斜率确定的 Cu 的应变速率敏感指数 m 为 0.01.

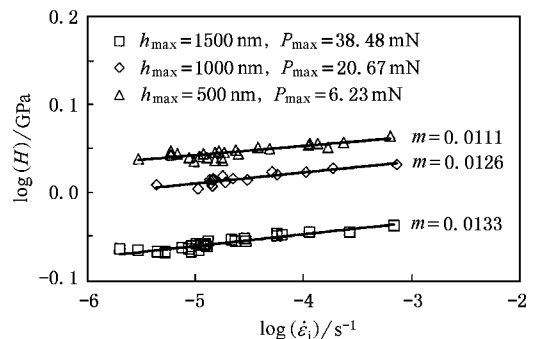


图 4 压入不同深度 $h_{\max} = 1500, 1000, 500 \text{ nm}$ 后保载 30 min 过程中的 $\log(H) - \log(\dot{\epsilon}_i)$ 曲线

用四个不同的加载速率/载荷 ($\dot{P}/P = 0.20, 0.10, 0.05, 0.01 \text{ s}^{-1}$) 加载到同一最大深度 $h_{\max} = 500$

nm(对应的最大载荷 $P_{\max} = 10.37, 8.02, 6.69, 6.23$ mN)后的保载段($P = P_{\max}, t = 30$ min)的 $h-t$ 曲线如图 5 所示.图中对 \dot{P}/P 值较大的曲线向上平移较大的位移以便使曲线分离.从图 5 可以看出,这些曲线的形状与图 3 所示的用同一 $\dot{P}/P = 0.05$ s⁻¹ 加载到三个不同最大深度 $h_{\max} = 1500, 1000, 500$ nm 后的保载段($P = P_{\max}, t = 30$ min)的 $h-t$ 曲线类似.

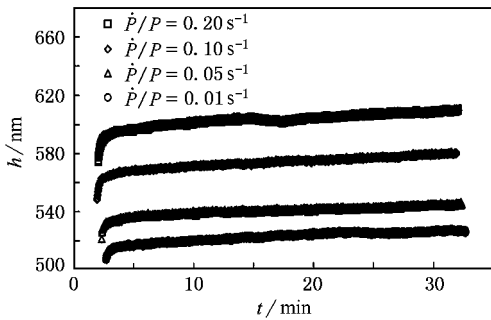


图 5 $\dot{P}/P = 0.20, 0.10, 0.05, 0.01$ s⁻¹ 加载到 $h_{\max} = 500$ nm 后保载 30 min 过程中的 $h-t$ 曲线

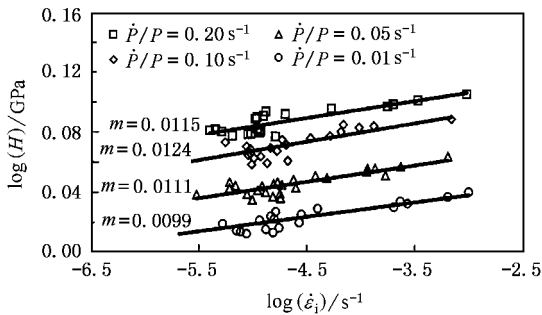


图 6 $\dot{P}/P = 0.20, 0.10, 0.05, 0.01$ s⁻¹ 加载到 $h_{\max} = 500$ nm 后保载 30 min 过程中的 $\log(H) - \log(\dot{\epsilon}_i)$ 曲线

根据图 5 所示的四个保载段的 $h-t$ 曲线计算的瞬时压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i$ 和对应的瞬时硬度 H 的双对数曲线如图 6 所示.由四条直线的斜率确定的 Cu 的应变速率敏感指数 m 为 0.01.这与上述结果一致.

4. 结 论

(1) 纳米压入仪具有极高的载荷和位移分辨率,是研究高熔点材料室温蠕变特性的一种有效方法.

(2) 由于依赖于时间变形(如滞弹性和蠕变)的影响,压入一定深度所需的最大载荷 P_{\max} 和保载段($P = P_{\max}, t = 30$ min)所产生的蠕变位移 Δh_{creep} 均随 \dot{P}/P 的增加而增加.

(3) Cu 的卸载线近似为直线并且弹性恢复比 $R_{\text{re cov}} \approx 4\%$, 因此可用总位移代替塑性位移.

(4) 对恒温纳米压入试验,保载段的瞬时硬度 $H = P/A(h)$ 与瞬时压入应变速率 $\dot{\epsilon}_i = \dot{h}/h$ 满足指数关系,即 $H = B(\dot{\epsilon}_i)^m$.因此,可由 H 和 $\dot{\epsilon}_i$ 的双对数曲线的斜率确定材料的蠕变速率敏感指数 m .

(5) 延长保载时间,可以得到更低的压入应变速率,加宽应变速率的变化范围,提高确定蠕变速率敏感指数 m 的准确性.

(6) 该方法不仅适用于高蠕变能力的低熔点材料,也适用于低蠕变能力和存在压痕尺寸效应的高熔点材料(如 Cu).用该方法确定的 Cu 的室温蠕变速率敏感指数 m 为 0.01,与恒 \dot{P}/P 加载段所用的 \dot{P}/P 值和最大压入深度 h_{\max} 无关.

[1] Nix W D 1989 *Metall. Trans. A* **20** 2217
 [2] Mayo M J, Nix W D 1988 *Acta Metall.* **36** 2183
 [3] Mayo M J, Siegel R W, Narayanasamy A et al 1990 *J. Mater. Res.* **5** 1073
 [4] Mayo M J, Siegel R W, Liao Y X et al 1992 *J. Mater. Res.* **7** 973
 [5] Raman V, Berriche R 1992 *J. Mater. Res.* **7** 627
 [6] Lucas A N, Oliver W C 1999 *Metall. Mater. Trans. A* **30** 601

[7] Hannula S P, Stone D S, Li C Y 1985 *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **40** 217
 [8] Zhang J M, Xu K W 2004 *J. Test. Eval.* **13** to be published
 [9] Zhang J M, Xu K W, Ma F 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1993 (in Chinese) [张建民、徐可为、马 飞 2003 物理学报 **52** 1993]
 [10] Murarka S P 1997 *Mater. Sci. Eng. R* **19** 87
 [11] Oliver W C, Pharr G M 1992 *J. Mater. Res.* **7** 1564

The measurement of creep rate sensitivity of copper at room temperature by using nanoindentation *

Zhang Jian-Min¹⁾ Xu Ke-Wei²⁾

¹⁾ College of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710062, China)

²⁾ State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 8 October 2003 ; revised manuscript received 26 November 2003)

Abstract

A new nanoindentation creep test, i.e. a steady-state loading segment followed by the constant load for long period of time, has been proposed by combining a constant loading rate divided by the load (const. \dot{P}/P) with a constant load test (const. P). The method is applicable not only to the materials with lower melting temperature and higher creep ability, but also to those materials with higher melting temperature and lower creep ability and an indentation size effect. The strain rate sensitivity m of Cu at room temperature determined by the method is about 0.01. It is also found that the previous loading schemes, including the values of the \dot{P}/P used during loading segment and the maximum depths h_{\max} at the end of the loading segment, have no obvious influence on the values of the strain rate sensitivity m .

Keywords : nanoindentation, copper, creep, creep rate sensitivity

PACC : 0365B, 0620H, 6220F, 8140L

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50271038, 59931010).