

残余应力对激光激发超声表面波技术检测 二氧化硅体材料杨氏模量的影响

睢晓乐, 肖夏, 戚海洋, 孔涛

天津大学微电子学院, 天津 300072

摘要 在理想理论模型中引入了包含残余应力的等效弹性常数,建立了二氧化硅的半无限大残余应力理论计算模型。研究了残余应力对激光激发超声表面波检测二氧化硅体材料杨氏模量的影响,并提出了误差判断依据。结果表明,当二氧化硅体材料的残余压应力小于 900 MPa 时,相对误差小于 5%,残余应力的影响可以忽略;当残余压应力大于 900 MPa 时,相对误差大于 5%,此时应考虑残余应力的影响。

关键词 测量; 无损检测; 残余应力; 激光激发超声表面波技术; 杨氏模量; 二氧化硅体材料

中图分类号 TN47 **文献标识码** A

doi: 10.3788/LOP54.121202

Influence of Residual Stress on Young Modulus Detection of SiO₂ Bulk Materials by Laser-Induced Surface Ultrasonic Wave Technique

Sui Xiaole, Xiao Xia, Qi Haiyang, Kong Tao

School of Microelectronics, Tianjin University, Tianjin 300072, China

Abstract With the introduction of the effective elastic constants including the residual stress in the ideal theoretical model, the half-infinite residual-stress theoretical calculation model of SiO₂ is established. The influence of residual stress on the Young modulus detection of SiO₂ bulk materials by the laser-induced surface ultrasonic wave technique is studied, and the error judgment basis is proposed. The results show that, when the residual compressive stress of SiO₂ bulk materials is less than 900 MPa, the relative error is less than 5% and the influence of residual stress can be ignored. While when the residual compressive stress is more than 900 MPa, the error is more than 5%, and the influence of residual stress should be taken into account.

Key words measurement; nondestructive testing; residual stress; laser-induced surface ultrasonic wave technique; Young modulus; SiO₂ bulk materials

OCIS codes 120.4290; 240.6690; 310.4925

1 引言

杨氏模量定义为弹性加载过程中应力与应变的比值,它表征样品的稳定性、可靠性,以及在一定应力作用下的使用寿命,因此,对材料杨氏模量的检测具有重要意义^[1]。激光激发超声表面波检测技术是一种利用脉冲激光在样品表面激发产生超声表面波,并利用其不同介质材料中的传播速度不同,对介质的表面特性进行分析和检测的方法^[2-3],具有检测速度快、不损伤材料等优点,利用该技术能够得到材料的杨氏模量、粘附性、泊松比等力学性能^[3-6],因而受到广泛关注。在传统的研究中,通常采用理想模型来获得理论色散曲线,即不考虑残余应力对测量的影响。在检测材料的杨氏模量时,最常采用的是波动方程的解析算法^[7-9]。

收稿日期: 2017-05-25; **收到修改稿日期:** 2017-06-19

基金项目: 国家自然科学基金(61571319)

作者简介: 睢晓乐(1992—),女,硕士研究生,主要从事材料残余应力方面的研究。E-mail: suixiaole@outlook.com

导师简介: 肖夏(1971—),女,博士,教授,主要从事新型薄膜材料的无损表征方面的研究。

E-mail: xiaxiao@tju.edu.cn(通信联系人)

在集成电路加工制造过程中,不可避免地引入残余应力^[10],这将对材料杨氏模量的检测准确性产生一定影响。因此,研究残余应力对激光激发超声表面波技术检测杨氏模量的准确性的影响具有重要意义。

二氧化硅是集成电路常见的材料之一,因此具有重要的研究价值。本文研究了残余应力对激光激发超声表面波技术检测二氧化硅杨氏模量的准确性的影响。对理论模型进行了修正,引入了包含残余应力的等效弹性常数,从而建立了二氧化硅的半无限大残余应力理论计算模型。通过引入误差判据,描述了残余应力对杨氏模量测量的影响。

2 基本原理

2.1 声弹性理论

弹性波在有应力的固体材料中的传播速度不仅取决于材料的二阶弹性常数和密度,而且与高阶弹性常数和应力也有关,这种声速与应力之间的关系称为声弹性效应^[11]。声弹性理论旨在研究弹性波在弹性材料中传播时,传播速度与应力之间关系,迄今已有 40 多年的研究历史^[12-13]。在声弹性理论中,物体处于无应力、应变的自然状态(O 态)中,质点在该状态下的位置矢量用自然坐标 \mathbf{x}^o 表示;当均匀预应力(残余应力或加载应力)作用于物体上时,物体在弹性形变范围内发生有限形变,物体状态由自然状态转换为初始状态(I 态),质点在该状态下的位置矢量用初始坐标 \mathbf{x}^i 表示;在有限形变的物体上叠加声波小扰动,则物体进一步变形,到达最终状态(F 态),质点在该状态下的位置矢量用 \mathbf{x}^f 表示。物体的自然状态、初始状态和最终状态如图 1 所示,其中三种位置矢量的起点 O 为笛卡儿坐标系的原点, ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 分别为坐标系的三个坐标轴。物体从 O 态变到 I 态是小变形,可视为静态,相应的质点位移用 \mathbf{u}^i 表示;物体从 I 态转换到 F 态,相应的质点位移用 \mathbf{u}^f 表示;物体从 O 态转换到 F 态,相应的质点位移用 \mathbf{u} 表示。

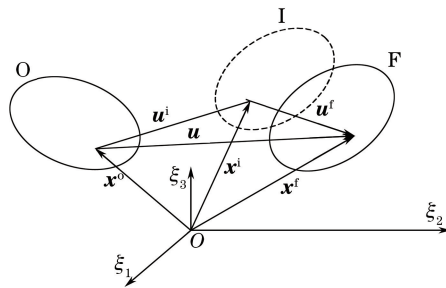


图 1 物体的自然状态、初始状态和最终状态

Fig. 1 Natural, initial and final states of object

声弹性理论有以下四个基本假设:1) 物体是超弹性的,均匀的;2) 所涉及的变形都在弹性形变范围内;3) 预变形是静态的;4) 所有的预变形和扰动都很小。对于初始坐标和自然坐标,波的运动方程^[14]可分别表示为

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_j^i} \left[(R_{IJKL} + \delta_{IK} \cdot \sigma_{JL}^i) \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_K^f}{\partial \mathbf{x}_L^i} \right] = \rho^i \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{u}_I^f}{\partial t^2}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_j^o} \left[(\Gamma_{IJKL} + \delta_{IK} \cdot T_{JL}^o) \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_K^f}{\partial \mathbf{x}_L^o} \right] = \rho^o \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{u}_I^f}{\partial t^2}, \quad (2)$$

式中整数 I, J, K, L 的取值范围均为 $[1, 3]$, 表示不同的方向;系数 R_{IJKL} 和 Γ_{IJKL} 取决于体材料的二、三阶弹性常数,且受到材料的对称性影响; δ_{IK} 为克罗内克函数, $I=K$ 时, $\delta_{IK}=1$, $I \neq K$ 时, $\delta_{IK}=0$; σ_{JL}^i 为残余应力; T^o 为比奥拉-克希霍夫应力, T_{JL}^o 为其在 JL 方向上的分量; ρ^o 为自然坐标下的密度; ρ^i 为初始坐标下的密度; t 为时间。 R_{IJKL} 和 Γ_{IJKL} 可以表示为

$$\begin{aligned} R_{IJKL} = & C_{IJKL} \cdot \left(1 - \frac{\partial \mathbf{u}_M^i}{\partial \mathbf{x}_M^i} \right) + C_{IJKLMN} \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_M^i}{\partial \mathbf{x}_N^i} + C_{MJKL} \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_I^i}{\partial \mathbf{x}_M^i} + \\ & C_{IMKL} \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_J^i}{\partial \mathbf{x}_M^i} + C_{IJML} \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_K^i}{\partial \mathbf{x}_M^i} + C_{IJKM} \cdot \frac{\partial \mathbf{u}_L^i}{\partial \mathbf{x}_M^i}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\Gamma_{IJKL} = C_{IJKL} + C_{MJKL} \cdot \frac{\partial u_i^i}{\partial x_M^o} + C_{IJML} \cdot \frac{\partial u_k^i}{\partial x_M^o} + C_{IJKLMN} \cdot e_{MN}^i, \quad (4)$$

式中整数 M, N 的取值范围均为 $[1, 3]$; C_{IJKL} 和 C_{IJKLMN} 分别为体材料的二、三阶弹性常数; e^i 为无限小应变张量, e_{MN}^i 为其在 MN 方向上的分量。

2.2 半无限大残余应力理论计算模型的建立

图 2 所示为超声表面波在半无限大体材料中的传播示意图, 其中 x_1, x_2 和 x_3 为坐标轴。表面波沿 $x_3=0$ 表面传播, 根据波动方程的性质, (1) 和 (2) 式的解^[15] 应具有如下形式

$$u_j = \alpha_j \exp(\mathbf{jk}bx_3) \exp[\mathbf{jk}(l_1x_1 + l_2x_2 + l_3x_3 - vt)], \quad (5)$$

式中 α_j 为超声表面波各谐波分量的相对振幅; \mathbf{k} 为传播向量, 其大小为波数; l_1, l_2 和 l_3 为超声表面波的方向余弦值, 对于超声表面波, $l_3=0$; b 表示在与传播方向垂直的平面上测得的波振幅与相位随深度的变化; v 为超声表面波的传播速度。将 (5) 式分别代入 (1)、(2) 式中, 用初始坐标和自然坐标表示平面波在媒介中传播的基本方程——克里斯托夫方程^[14], 分别为

$$[C_{IJKL}^a \cdot l_J \cdot l_L - \rho^i \cdot (v^i)^2 \cdot \delta_{JK}] \alpha_{KJ} = 0, \quad (6)$$

$$[\bar{C}_{IJKL}^a \cdot l_J \cdot l_L - \rho^o \cdot (v^o)^2 \cdot \delta_{JK}] \alpha_{KJ} = 0, \quad (7)$$

式中 C_{IJKL}^a 和 \bar{C}_{IJKL}^a 分别为初始坐标和自然坐标下的等效弹性常数 (E_{eff}), l_J, l_L 为方向余弦, α_{KJ} 为超声表面波各谐波分量的相对振幅。对 (6) 和 (7) 式进行求解, 便可得到超声表面波的传播速度。 C_{IJKL}^a 和 \bar{C}_{IJKL}^a ^[16] 可表示为

$$C_{IJKL}^a = R_{IJKL} + \sigma_{JL}^i \delta_{IK}, \quad (8)$$

$$\bar{C}_{IJKL}^a = \Gamma_{IJKL} + T_{JL}^o \delta_{IK}. \quad (9)$$

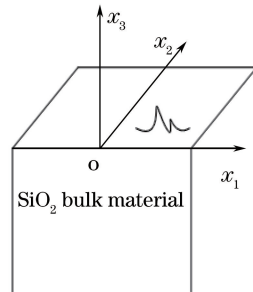


图 2 超声表面波在半无限大体材料中的传播示意图

Fig. 2 Schematic of surface ultrasonic waves propagating in semi-infinite general bulk materials

初始坐标下的 E_{eff} 会发生分裂, 如果换用自然坐标, 这些分裂消失^[16]。因此, 计算自然坐标下的 E_{eff} 。给 SiO_2 体材料施加均匀单轴压应力, 使得 $\sigma_{11}^o \neq 0, \sigma_{22}^o = \sigma_{33}^o = 0$ 。

对于各向同性 SiO_2 体材料^[16], 有

$$T_{11}^o \approx \sigma_{11}^i, T_{22}^o = T_{33}^o = \sigma_{22}^i = \sigma_{33}^i = 0, \quad (10)$$

则 (8) 式的矩阵形式可表示为

$$\begin{bmatrix} P_{11}^a - \rho^o (v^o)^2 & P_{12}^a & P_{13}^a \\ P_{21}^a & P_{22}^a - \rho^o (v^o)^2 & P_{23}^a \\ P_{31}^a & P_{32}^a & P_{33}^a - \rho^o (v^o)^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \end{bmatrix} = 0, \quad (11)$$

式中 $P_{IK}^a = \bar{C}_{IJKL}^a \cdot l_J \cdot l_L$ 。

要使 (11) 式有非零解, 则需使 (11) 式的行列式为 0, 即

$$\begin{vmatrix} P_{11}^a - \rho^o (v^o)^2 & P_{12}^a & P_{13}^a \\ P_{21}^a & P_{22}^a - \rho^o (v^o)^2 & P_{23}^a \\ P_{31}^a & P_{32}^a & P_{33}^a - \rho^o (v^o)^2 \end{vmatrix} = 0. \quad (12)$$

考虑到残余应力为体材料的内部应力, 则在界面 $x_3=0$ 处, 外加应力为 0, 即考虑边界条件:

$$t_{13} = \bar{C}_{IJKL}^a \frac{\partial u_K}{\partial x_L} = 0, \quad (13)$$

式中 t_{13} 为固体材料在 $x_3=0$ 表面的应力值。

表 1 所示为二氧化硅体材料参数^[17], 将参数代入(12)式中, 根据线性微分方程的性质, 将波动方程的解线性叠加并代入边界条件, 即联立(12)、(13)式, 并利用 MATLAB 软件编程计算, 则可求得超声表面波在半无限大残余应力二氧化硅体材料中的传播速度。

表 1 二氧化硅体材料参数

Table 1 Parameters of SiO₂ bulk materials

Material	Density / (kg·m ⁻³)	C ₁₁ /GPa	C ₁₂ /GPa	C ₄₄ /GPa	C ₁₂₃ /GPa	C ₁₄₄ /GPa	C ₄₅₆ /GPa
SiO ₂	2200.0	77.9	14.7	31.6	41.0	85.0	-8.0

3 计算结果及讨论

在集成电路加工制造过程中, SiO₂ 作为一种常见的材料, 一般引入的残余压应力在几十到几百兆帕之间, 在特殊的工艺条件下(如淀积时升高基底温度), 残余压应力会相应增大^[18-20]。因此, 对残余应力分别为 -40, -100, -200, -300, -400, -500, -600, -700, -800, -900, -1000 MPa 的情况进行讨论, 其中负号表示残余压应力。当杨氏模量值为 72 GPa 时, 在不同残余应力情况下, 通过理论计算所得出的超声表面波的速度不同。SiO₂ 体材料中超声表面波速度与残余应力之间的关系如图 3 所示。可以看出, 随着压应力的增大, 超声表面波的速度呈逐渐减小趋势。利用多项式拟合的方法, 可得到 SiO₂ 体材料中超声表面波速度与残余应力之间的近似对应关系, 即 $v=0.1 \cdot \sigma_{11} + 3388.4$ 。可利用此近似对应关系求得 SiO₂ 体材料中不同残余应力情况所对应的超声表面波的波速。

图 4 所示为由残余应力模型计算得到的频散曲线和由理想理论模型计算得到的频散曲线, 其中红线表示当杨氏模量(E)为 72 GPa、残余压应力为 40 MPa 时, 超声表面波在各向同性 SiO₂ 体材料表面传播时由残余应力模型计算得到的频散曲线。因为 SiO₂ 体材料为单一介质, 所以速度不随频率变化, 即频散曲线为一条直线; 黑线表示由理想理论模型计算得到的频散曲线, 由上到下黑色曲线对应的杨氏模量值依次为 72, 71.86, 71.84, 71 GPa。可以看出, 在红色曲线附近的上、下两条黑色曲线所对的杨氏模量值分别为 71.84 GPa 和 71.86 GPa。计算可得, 在杨氏模量为 72 GPa 的条件下, 由残余应力模型所得的曲线与由理想模型在杨氏模量为 71.85 GPa 时所得的曲线相重合。此时, 误差值(ΔE)为 0.15 GPa, 相对误差值($\Delta E/E$)为 0.21%, 在允许范围($\Delta E/E \leq 5\%$)内。因此, 在此条件下, 残余应力对激光激发超声表面波检测 SiO₂ 体材料杨氏模量的影响可以忽略不计。

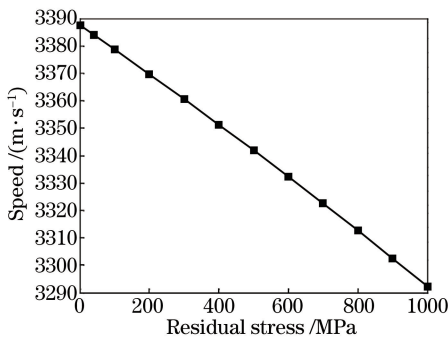


图 3 SiO₂ 体材料中超声表面波速度与残余应力之间的关系

Fig. 3 Speed of surface ultrasonic waves versus residual stress in SiO₂ bulk materials

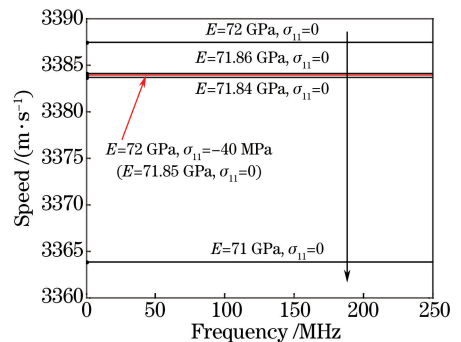


图 4 由残余应力模型和理想理论模型计算得到的频散曲线

Fig. 4 Dispersion curves calculated by residual stress model and ideal theoretical model

表 2 所示为不同残余应力下模型的相对误差。可以看出, 当残余压应力为 900 MPa 时, 相对误差值达到 5%, 且随着残余压应力的增大, 相对误差值持续增大。因此, 当残余压应力小于 900 MPa 时, 残余应力对

激光激发超声表面波检测 SiO₂ 体材料杨氏模量的影响可以忽略;当残余压应力大于 900 MPa 时,残余应力的影响应予以考虑。

表 2 不同残余应力下模型的相对误差

Table 2 Relative errors of models under different residual stresses

Residual stress /MPa	-40	-100	-200	-300	-400	-500	-600	-700	-800	-900	-1000
Relative error /%	0.14	0.56	1.11	1.53	2.08	2.64	3.19	3.75	4.31	5.00	5.56

4 结 论

从声弹性理论出发,建立了 SiO₂ 半无限大残余应力理论计算模型,从而得出不同残余应力下超声表面波在 SiO₂ 体材料中的传播速度。研究发现,随着 SiO₂ 体材料中压应力的增大,超声表面波在介质表面的传播速度呈逐渐减小的趋势;当残余压应力为 900 MPa 时,相对误差达到 5%,且随着残余压应力的增大,相对误差越来越大,即当残余压应力小于 900 MPa 时,残余应力对激光激发超声表面波检测 SiO₂ 体材料杨氏模量的影响可忽略不计,否则,应考虑残余应力的影响。

在通常情况下, SiO₂ 材料引入的残余压应力低于 900 MPa,故该研究结果为激光激发超声表面波检测样品表面杨氏模量的准确性提供了理论依据。未来将就层状结构残余应力模型展开相应的研究工作。

参 考 文 献

- [1] Lin K, Yu Y G, Xi J T, *et al.* A fiber-coupled self-mixing laser diode for the measurement of Young's modulus[J]. *Sensors*, 2016, 16(6): 928.
- [2] Zhu Qian, Qiu Jinhao, Zhang Chao, *et al.* Application of laser ultrasonic detection method for double-layer laminated material[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2016, 53(3): 031402.
朱倩, 裘进浩, 张超, 等. 双层层压材料中激光超声检测方法的应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2016, 53(3): 031402.
- [3] Li Zhiguo, Xiao Xia, Zhang Xinhui, *et al.* Dispersive characteristics of surface acoustic waves for measuring mechanical properties of low-*k* dielectrics used in ULSI[J]. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2005, 26(10): 2032-2037.
李志国, 肖夏, 张鑫慧, 等. 表征 ULSI 低介电常数互连材料机械特性的表面波频散特性[J]. *半导体学报*, 2005, 26(10): 2032-2037.
- [4] Fall D, Compoin F, Duquennoy M, *et al.* Surface acoustic wave characterization of optical sol-gel thin layers[J]. *Ultrasonics*, 2016, 68: 102-107.
- [5] Zhan Yu, Xue Junchuan, Liu Changsheng. Numerical simulation of laser ultrasonic elastic constant measurement based on Abaqus[J]. *Chinese J Lasers*, 2015, 42(5): 0508002.
战宇, 薛俊川, 刘常升. 激光超声测量弹性常数的 Abaqus 数值模拟[J]. *中国激光*, 2015, 42(5): 0508002.
- [6] Xiao X, Qi H Y, Tao Y, *et al.* Study on the interfacial adhesion property of low-*k*, thin film by the surface acoustic waves with cohesive zone model[J]. *Applied Surface Science*, 2016, 388: 448-454.
- [7] Shan X M, Xiao X, Liu Y L. Determination of Young's modulus and Poisson's ratio of nanoporous low-*k* thin film by laser-generated surface acoustic waves[J]. *Advanced Science Letters*, 2011, 4(3): 1230-1234.
- [8] Xiao Xia, Bai Maosen, Li Zhiguo, *et al.* Signal processing in the LSAWs experiment for determining Young's modulus of low-*k* film[J]. *Journal of Tianjin University*, 2007, 40(5): 554-558.
肖夏, 白茂森, 李志国, 等. LSAWs 测量低介电常数介质薄膜杨氏模量的信号处理[J]. *天津大学学报*, 2007, 40(5): 554-558.
- [9] 金宝印. 激光声表面波系统及其在薄膜杨氏模量测量中的应用研究[D]. 天津: 天津大学, 2011: 1-8.
- [10] Yang Yongliang, Yue Li, Li Na, *et al.* Study on the properties of DLC films with Si doping prepared by Rf-PECVD[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2015, 52(1): 013101.
杨永亮, 岳莉, 李娜, 等. Rf-PECVD 制备 Si 掺杂 DLC 薄膜性能的研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2015, 52(1): 013101.
- [11] 贺玲凤. 声弹性技术[M]. 北京: 科学出版社, 2002: 94-109.

- [12] Murnaghan F D. Finite deformation of an elastic solid[M]. New York: Wiley, 1951.
- [13] Hughes D S, Kelly J L. Second-order elastic deformation of solids[J]. Physical Review, 1953, 92(5): 1145-1149.
- [14] Duquennoy M, Ouafrouh M, Ourak M, *et al.* Influence of natural and initial acoustoelastic coefficients on residual stress evaluation: Theory and experiment[J]. Journal of Applied Physics, 1999, 86(5): 2490-2498.
- [15] 白茂森. LSAWs 技术表征 ULSI 互连布线 Low- k 介质薄膜机械特性的研究[D]. 天津: 天津大学, 2007: 6-10.
- [16] Duquennoy M, Ouafrouh M, Devos D, *et al.* Effective elastic constants in acoustoelasticity [J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(24): 244105.
- [17] Bogardus E H. Third-order elastic constants of Ge, MgO, and fused SiO₂ [J]. Journal of Applied Physics, 1965, 36(8): 2504-2513.
- [18] Leplan H, Geenen B, Robic J Y, *et al.* Residual stresses in evaporated silicon dioxide thin films: Correlation with deposition parameters and aging behavior[J]. Journal of Applied Physics, 1995, 78(2): 962-968.
- [19] Ye Xiaowen, Ding Tao, Cheng Xinbin, *et al.* Contrastive investigation of the residual stress of SiO₂ films prepared by electron beam evaporation in different relative humidity environments [J]. Infrared and Laser Engineering, 2012, 41(3): 713-717.
叶晓雯, 丁涛, 程鑫彬, 等. 电子束蒸发 SiO₂ 薄膜残余应力在不同湿度环境下的对比[J]. 红外与激光工程, 2012, 41(3): 713-717.
- [20] Shao Shuying, Tian Guanglei, Fan Zhengxiu, *et al.* Influences of the deposition parameters and aging time on the residual stress of SiO₂ films[J]. Acta Optica Sinica, 2005, 25(1): 126-130.
邵淑英, 田光磊, 范正修, 等. 沉积参量及时效时间对 SiO₂ 薄膜残余应力的影响[J]. 光学学报, 2005, 25(1): 126-130.