

응력완화 경로분석과 압입자/시편간 접촉형상 모델링에 바탕한 박막재료의 국소 잔류응력 평가

이윤희* · 김성훈* · 장재일** · 권동일*

Evaluation of Thin Film Residual Stress through the Analysis of Stress Relaxation Path and the Modeling of Contact Morphology

Yun-Hee Lee, Sung-Hoon Kim, Jae-il Jang, and Dongil Kwon

Key Words : Nanoindentation(나노 압입시험), Thin film residual stress(박막 잔류응력), Indentation load-depth curve(압입하중-변위곡선), Stress relaxation path(응력완화 경로)

Abstract

Residual stress is a dominant obstacle to efficient production and safe usage of products by reducing the mechanical strength and failure properties. Especially, it causes interfacial failure and substrate deflection in the case of thin film. So, the exact evaluation and optimum control of thin film residual stress is indispensable. However, hole drilling or X-ray diffraction techniques have some limits in application to thin film. And, curvature technique for thin film materials cannot give the information about local stress variation. Therefore, we applied the nanoindentation technique in evaluating the thin film residual stress. In this study, we modeled the change of nanoindentation loading curve for residually stressed and stress-free thin films during stress relaxation. The value of residual stress was directly related to the indentation depth change by relaxation. The residual stress from nanoindentation analysis was consistent with the result from curvature technique.

기호설명

L_0, L_T : 무응력 및 인장응력시 압입하중,
 h_i, h_i^T, h_i^C : 무응력/인장/압축응력시 압입깊이,
 h_s, h_p, h_n : 접촉면 주위의 탄성 굽힘, pile-up 및 sink-in 깊이, h_c, A_c, a : 접촉 깊이/면적/반경,
 E_r : 환산탄성계수, ν : Poisson 비, S : stiffness,
 L_{res} : 잔류응력 유도 수직하중, σ_{res} : 잔류응력.

1. 서론

박막 재료 및 용접, 브레이징 등의 방법으로

제조된 이중 접합재는 불연속적인 계면의 존재와 제조과정 중의 열이력에 의해 잔류응력을 갖게된다. 또한 스폿피닝과 같은 표면 강화나 기계적 가공에 의한 불균일한 소성변형에 의해서도 잔류응력이 발생한다. 이러한 잔류응력은 그 크기에 따라서 소재의 피로강도 및 파손특성에 심각한 영향을 끼쳐서 원활한 제품의 생산을 방해하고 사용중의 안정성을 저해하는 중요한 인자 중의 하나이다¹⁾. 특히, 최근 사용이 급증한 박막 재료에서 잔류응력은 아래와 같은 다양한 종류의 손상을 유발한다^{2,3)}. 즉 박막에 균열을 유발하거나, 압축 잔류응력이 심각할 경우에는 박막/기판 사이의 계면 파괴를 유도하기도 한다. 또, 잔류응력에 의한 소성변형, 기판의 굽힘 현상뿐만 아니라 막 자체의 응력기울기로 인한 막의 굽힘 현상도 성공적, 경제적 제품생산에 악영향을 미치는 요인으로 간주된다.

잔류응력은 발생원인에 따라서 크게 고유응력과 열응력으로 나눌 수 있다⁴⁾. 박막의 증착 중에

* 서울대학교 재료공학부
 ** ㈜ 프론틱스 연구개발부

발생하는 고유응력은 박막내부의 결정립계, 공공, 전위, 불순물 및 이상입자와 같은 미세조직 변화와 매우 밀접한 관계를 갖고 제조방법에 따라 서로 달라지기 때문에, 아직까지 발생원인과 응력과의 상관관계에 대한 일반적인 연구보다는 개별적인 연구가 진행되고 있다. 반면에 열응력은 박막과 기판 사이의 열팽창계수의 차이에 의해 생성되는 것으로서, 제조 후 냉각 시 또는 사용 중 온도변화에 의해 발생한다.

이들 잔류응력의 측정 방법으로는 hole drilling, X-선 회절, 곡률 측정법 및 Raman 방법 등이 있다⁵⁻⁷⁾. 그러나, hole drilling 및 X-선 회절법은 벌크 재료에 사용되었던 방법으로서 시험 준비 및 시험 과정이 까다로울 뿐만 아니라 박막에 적용하는데 한계점이 있다. 또, Raman 방법은 시험은 간단하지만 해석 방법이 정성적이며, 곡률 측정도 박막 표면의 평균적인 잔류응력 정보만 제공한다는 문제점이 있다. 이처럼 박막 재료의 잔류응력 측정을 위해 여러가지 기법과 잔류응력의 형성과 분포 등에 대한 다양한 연구가 진행되고 있으나, 아직까지 정성적이며 경험적인 접근법을 벗어나지 못하고 있다. 이에 따라 박막 잔류응력의 평가에 적용을 위한 비파괴적이며, 활용이 쉬운 정량적 잔류응력 평가법이 필요하게 되었다.

따라서, 본 연구에서는 기존의 박막재료의 강도 물성 평가에 주로 사용되었던 나노 압입시험 기법⁸⁻⁹⁾을 박막의 잔류응력 평가에 적용하였다. 이를 위하여 최근 여러 연구결과 보고된 잔류응력과 무관한 고유경도의 개념¹⁰⁻¹¹⁾을 이용하고, 잔류응력에 따라 민감하게 변화하는 압입하중 인가곡선¹²⁾을 이론적으로 분석하였다. 위의 분석을 여러 두께의 DLC 박막에 대한 압입곡선 변화에도 도입함으로써 잔류응력을 직접적으로 평가하고자 하였다.

2. 이론적 분석

2.1 잔류응력과 압입하중의 상호작용

박막에는 그림 1 과 같이 표면부에 평행하게 면내 등방향 잔류응력이 존재한다. 잔류응력의 영향으로 인해 압입하중 인가곡선의 형상이 달라진다. 즉, 일정 최대 압입깊이에 도달하기 위한 외부 인가하중은 인장 잔류응력에서 가장 작고, 압축 잔류응력에서 가장 크게 된다. 무응력 상태의 외부 인가하중과 응력 상태에서의 외부 인가하중의 차이가 바로 잔류응력에 의해 유도된 수직하중이라 볼 수 있고, 이 추가하중의 방향과 크기에 대한 모델링은 그림 2 와 같이 기존의 연

구¹³⁾에서 확인해 볼 수 있다.

우선 3 축 정수압 응력은 재료의 소성변형과 무관하므로 소성 변형강도를 나타내는 고유경도와도 무관하다.

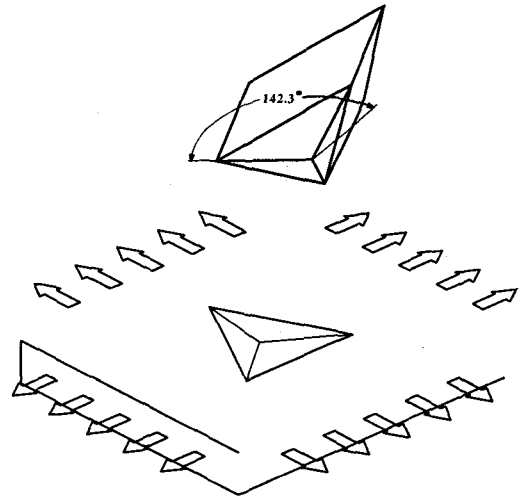


Fig. 1. Indentation on residually stressed thin film using Berkovich indenter.

그러므로, 박막에 작용하는 2 축 등방향 잔류응력은 3 축 등방향 응력상태에서 1 축 응력을 제거한 상태와 동가로 고려해 볼 수 있다.

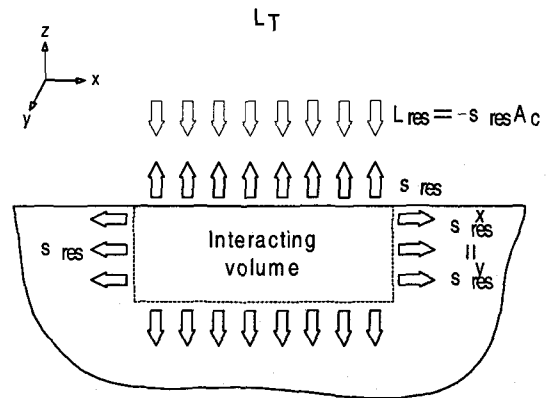


Fig. 2. Interaction of biaxial thin film residual stress (in-plane) and surface-normal indentation load.

즉, 박막 단면에 대한 모식도인 그림 2 와 같이 면내의 2 축 인장 잔류응력($\sigma_{res}^x = \sigma_{res}^y$)은 3 축 인장응력에 z 축으로 동일한 크기의 1 축 압축응력을 인가하면 형성된다. 식 (1)에서 σ_z 로 나타

낸 잔류응력의 압입하중 L_r 에 대한 영향은 박막 표면에 수직방향으로 동일한 크기의 반대부호를 가지는 응력항으로 고려할 수 있다. z 축 방향의 응력은 시편 전체를 고려하면 상쇄되지만, 압입 시험과 관련된 시편 표면 국소 영역에서는 비평형적으로 압입하중과 상호작용을 유발하게 된다.

$$\begin{aligned} \sigma_{res}^x &= \sigma_{res}^y = \sigma_{res} \\ \sigma_z &= -\sigma_{res} \end{aligned} \quad (1)$$

그러나, 잔류응력 유도 수직하중(L_{res})의 영향으로 인해 압입하중-변위곡선의 구체적인 형상 변화는 발생하지만 잔류응력에 의해서 압입자/시편간의 접촉면적 및 고유경도는 변하지 않는다는 사실에서 본 연구에서는 잔류응력에 따르는 압입하중-변위곡선의 형태 변화와 고유경도 불변을 동시에 만족시키는 압입자/시편 간의 접촉형상을 모델링하였다.

2.2 잔류응력을 고려한 접촉형상 모델링
잔류응력에 따른 압입하중 인가곡선의 형상 변화는 그림 3으로 나타낼 수 있다.

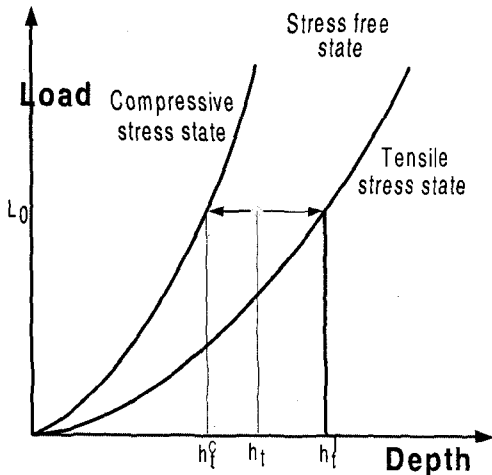


Fig. 3. Change of maximum indentation depth for a same applied load by the effect of residual stress states.

동일한 압입하중을 인가할 때 응력 상태에 따라 최대 압입깊이의 차이가 발생한다. 즉, 동일 압입하중에 대해 인장 잔류응력에서는 무응력 상태의 최대 압입깊이 h_t 에 비해 최대 압입깊이가 h_t^T 로 증가하고, 이와 반대로 압축 잔류응력에 의해서는 최대 압입깊이가 h_t^C 로 감소하게 된다.

또한, 고유경도가 잔류응력에 무관하게 일정하다는 개념^{10,11)}을 적용하면, 동일한 외부 인가하중에 대하여 압입자/시편간의 접촉면적 및 접

촉깊이는 일정해야 한다. 즉, 위의 두가지 개념을 동시에 만족시키려면 잔류응력에 따라 그림 4의 접촉형상을 발생시키게 된다. 그림 4를 살펴보면 (a)의 압축 잔류응력에서 (b)의 무응력 상태를 거쳐 (c)의 인장 잔류응력으로 변함에 따라 동일한 압입하중에 대해 최대 압입깊이는 h_t^C 에서 h_t 를 거쳐서 h_t^T 로 증가한다.

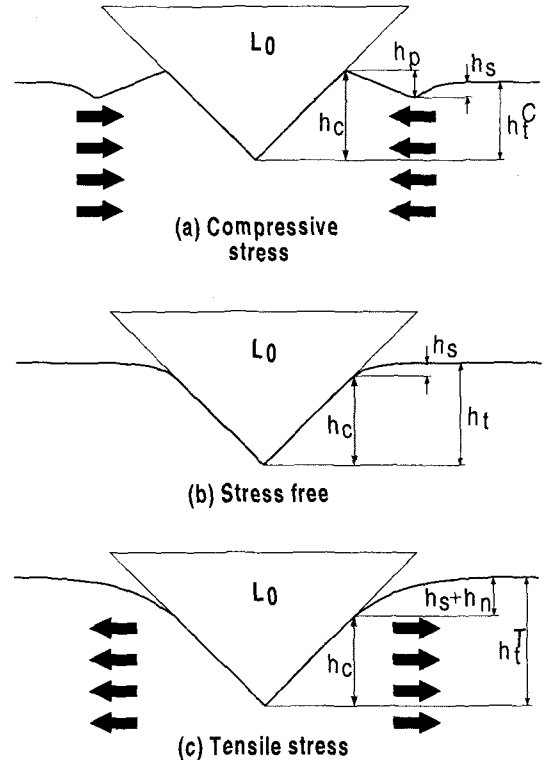


Fig. 4. Theoretically modeled surface morphologies around the contacts for (a) compressive stress, (b) stress free and (c) tensile stress states.

또, 이와 함께 잔류응력에 무관하게 압입자/시편의 접촉깊이는 동일해야 하므로, 압축응력 상태에서는 압입자 주변의 탄성적인 pile-up 양상이 발생하게 되며, 인장 응력에서는 압입자 주변의 탄성적인 sink-in 양상에 의해 접촉깊이가 일정해진다. 그러므로, 인장 혹은 압축 잔류응력 상태에서 무응력 상태로 응력 완화가 일어날 경우, 탄성적인 pile-up 및 sink-in 깊이인 h_p 및 h_n 의 제거가 일어나고, 이에 따라 최대 압입깊이는 증가 혹은 감소하여 무응력 상태의 최대 압입깊이에 도달하게 된다.

2.3 하중제어 응력완화 모델링

그림 3 과 4 에 나타난 잔류응력에 따른 압입하중 인가곡선 및 접촉형상에 대한 정보를 바탕으로 응력완화 과정을 모델링할 수 있다.

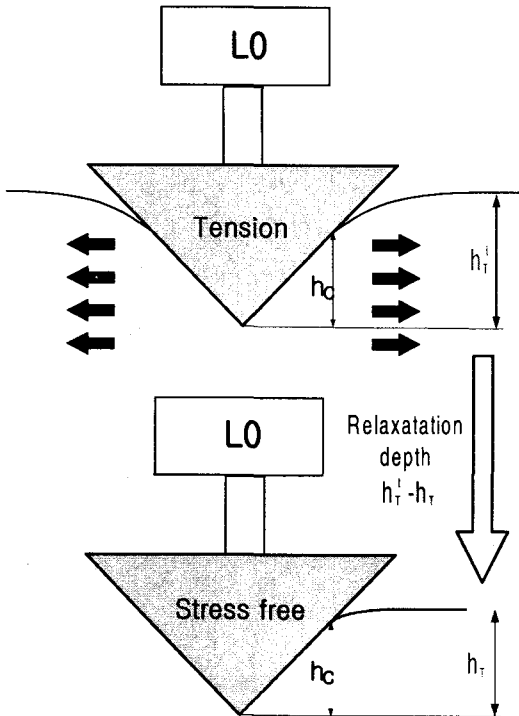


Fig. 5. Decrease of maximum indentation depth during the load controlled stress relaxation.

압입하중 제어 잔류응력 완화과정은 그림 5의 모식도를 통해 구체적으로 살펴볼 수 있다. L_0 의 일정 압입하중에 대해 인장응력 상태와 무응력 상태 모두 동일한 접촉깊이 h_c 를 갖는다. 반면에 최대 압입깊이는 인장 잔류응력 시 h_i^T 인 반면 잔류응력 완화에 의해 h_i 로 감소한다. 즉, 최대 압입깊이의 감소분인 $h_i^T - h_i$ 가 잔류응력 완화에 의해 발생하며, 식 (2)를 통하여 잔류응력 유도 수직하중 L_{res} 와 관련된다.

$$h_i^T - h_i = \frac{(1-\nu^2)}{2E_r a} L_{res} \quad (2)$$

또, 잔류응력은 식 (3)과 같이 잔류응력 유도 수직하중을 접촉면적으로 나눔으로써 계산된다.

$$\sigma_{res} = \frac{L_{res}}{A_c} \quad (3)$$

3. 실험 방법

나노 압입시험시 응력 완화 모델링을 통한 잔류응력의 분석을 위하여 아래와 같은 실험을 진행하였다. 우선 시편은 화학 진공증착 방법을 통해 실리콘 기판 위에 합성한 두께 0.6 μm 의 다이아몬드성 카본(Diamond Like Carbon) 박막을 사용하였다. 우선 잔류응력 상태에서 얻어진 압입하중-변위곡선의 상호 비교를 위한 무응력 상태의 박막은 실리콘 기판의 제거를 통해 이뤄졌다. 기판을 제거하면 증착 중 박막 내의 결합에 의해 발생하는 일부의 고유응력을 제외한 계면에서 박막/기판 간의 상호 구속으로 발생하는 모든 응력은 제거된다. 우선 실리콘 기판이 $\text{HNO}_3:\text{HF}:\text{CH}_3\text{COOH}$ 를 6:3:1로 혼합한 용액에 가용성인 반면에 다이아몬드성 카본 박막은 불용성인 성질을 이용하여 실온에서 실리콘 기판을 완전히 제거하였다. 기판이 제거된 자유막은 에탄올을 이용하여 세척한 뒤, 접촉제 없이 시험용 지지대에 올려놓고 나노 압입시험을 행하였다. 압입하중은 2000 μN 으로 압입각도가 일정한 Berkovich 압입자를 이용하여 250 $\mu\text{N/s}$ 의 일정속도로 압입시험을 행하였다. 또한, 나노 압입시험을 통해 해석된 잔류응력과의 상호비교를 위하여 레이저 곡률법을 사용하여 DLC 박막의 평균잔류응력을 평가하였다.

4. 결과 및 고찰

다이아몬드성 카본 박막에 대한 나노 압입시험 결과 그림 7 과 같이 구체적인 압입하중-변위곡선의 형상 변화를 확인할 수 있었다.

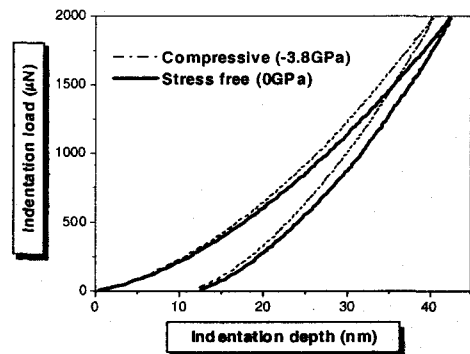


Fig. 6. Comparison of indentation curves from as deposited and free standing films.

무응력 상태의 자유막에 대한 압입하중 인가곡선이 증착 상태의 압입하중 인가곡선에 비해 오른쪽에 위치함을 통하여 이들 박막의 잔류응력이 압축응력임을 확인할 수 있었다. 압입하중 곡선을 이용한 접촉면적과 탄성계수의 평가를 위하여 자유막에서 평면 편치이론을 적용하였다. 우선 하중 제거곡선을 만족시키는 적합화 곡선을 얻고, 이 곡선의 미분을 통한 기울기에서 stiffness S 와 변위축과 접하는 절편에서 접촉깊이 h_c 를 평가하였다. 접촉면적은 표준물질의 압입 보장시험을 통하여 압입깊이에서 식 (6)과 같이 실험적으로 구할 수 있다.

$$A_0 = C_0 h_c^2 + C_1 h_c + C_2 h_c^{1/2} \dots + C_5 h_c^{1/16} \quad (6)$$

여기서 C_0 는 Berkovich 압입자의 기하학적 형상에 근거하여 24.5로 고정되고, C_1 에서 C_5 까지의 상수들은 실험적인 다항 적합화를 통해 구해진다. 압입자 및 박막의 탄성성질을 포함하는 환산탄성계수 E_r 은 식 (7)을 통하여 S 와 접촉면적 A_c 로 표현된다.

$$E_r = \frac{\sqrt{\pi} S}{2\sqrt{A_c}} = \frac{\sqrt{\pi} L_{\max}}{2(h_{\max} - h_c)\sqrt{A_c}} \quad (7)$$

Table 1. Contact properties of free standing DLC film for various indentation load steps.

Indentation Load(μ N)	Indentation Depth(nm)	Contact Depth(nm)	Contact Area(nm^2)
1950	158.25	22.08	56059.5
1850	147.29	20.92	51238.9
1750	138.24	19.53	45720.4
1650	131.95	17.57	38546.3

다이아몬드성 카본 박막에 대해 평가된 환산탄성계수는 각각 493.2GPa로 나타났다. 다이아몬드 압입자의 탄성계수와 Poisson 비를 각각 1141GPa과 0.07로 고려하고, 다이아몬드성 카본 박막의 Poisson 비를 0.25로 가정하면 각 박막의 탄성계수는 811.4GPa로 평가되었다. 또한 무응력 상태의 박막에 대한 압입하중 인가곡선에서 접촉깊이 및 면적을 평가하여 표 1에 나타내었다. 표 1의 접촉물성과 함께 그림 6에서 일정하중 응력 완화과정에 대한 완화깊이 $h_i - h_i^c$ 의 값을 표 2에 나타내었다. 일정 하중응력 완화과정에 대한 완화깊이에서 식 (2)를 이용하여 잔류응력 유도 수직하중의 값을 평가할 수 있으며, 평가된 값을 접촉면적으로 나눔으로써 잔류응력을 표 2

와 같이 평가하였다.

Table 2. Residual stress analyzed from the relaxation depth by considering the load controlled stress relaxation process.

Relaxation Depth(nm)	Contact Radius(nm)	Residual Stress(Gpa)
2.12	133.58	-3.97
2.04	127.71	-3.99
1.98	120.64	-4.10
1.89	110.77	-4.27

곡률법을 통해 측정된 박막의 평균 잔류응력치인 -3.8 ± 0.5 GPa와 비교할 때 서로 잘 일치함을 확인할 수 있었다. 그러나 압입하중이 매우 낮은 경우에는 곡률법의 표면 잔류응력에 비해 잔류응력이 높아지는 경향을 보이는 데, 이것은 곡률법의 평균적인 잔류응력치에 비해 나노 압입시험을 통한 방법이 매우 국소한 영역의 잔류응력 변화에도 민감하기 때문인 것으로 사료된다.

5. 결론

나노 압입시험시 잔류응력에 따른 압입하중-변위곡선의 형상변화를 압입하중이 일정한 조건에서 응력완화 과정과 관련지음으로써 다이아몬드성 카본 박막의 잔류응력을 정량적으로 평가하였다. 평가된 잔류응력은 곡률법을 통해 평가된 결과와 일치하였으며, 이에 따른 결론은 다음과 같이 정리할 수 있다.

- 1) 잔류응력 의존성이 존재하는 압입하중 인가곡선의 형상변화와 의존성이 없는 접촉면적 및 고유경도를 고려함으로써 잔류응력 상태에 따라 변화하는 압입자/시편 접촉형상을 모델링하였다.
- 2) 압입하중을 일정하게 제어하면서 잔류응력 상태에서 무응력 상태로 응력을 완화시킬 때의 접촉형상 변화 및 추가적인 잔류응력 유도 수직하중을 분석함으로써 나노 압입시험을 통한 등방적인 박막 잔류응력 평가식을 제시하였다.
- 3) 기상증착을 통해 형성된 다이아몬드성 카본 박막과 기판을 제거한 자유막 상태의 압입하중 인가곡선을 비교함으로써 박막내에 압축 잔류응력이 존재함을 확인할 수 있었다.
- 4) 무응력 자유막 상태의 압입하중 인가곡선에 대한 접촉물성을 평가하고, 일정하중 제어시 완

화깊이를 제안된 잔류응력 평가식에 대입함으로써 박막 잔류응력을 평가하였고, 평가된 잔류응력치는 기존의 곡률법을 통해 측정된 값과 잘 일치하였다.

(13) Suresh, S. and Giannakopoulos, A. E., 1998, "A new method for estimating residual stresses by instrumented sharp indentation", *Acta Mater.*, Vol. 46, pp. 5755-5767.

참고문헌

- (1) Noyan, I. C. and Cohen, J. B., 1987, *Residual Stresses*, Springer-Verlag, New York.
- (2) Karlsson, L., Hultman, L. and Sundgren, J.-E., 2000, "Influence of residual stresses on the mechanical properties of TiC_xN_{1-x} ($x=0, 0.15, 0.45$) thin films deposited by arc evaporation", *Thin Solid Films*, Vol. 371, pp.167-177.
- (3) Uhlmann, E. and Klein, K., 2000, "Stress design in hard coatings", *Surface and Coatings Technology*, Vol. 131, pp. 448-451.
- (4) Fang, W. and Lo, C.-Y., 2000, "On the thermal expansion coefficients of thin films", *Sensors and Actuators*, Vol. 84, pp. 310-314.
- (5) Ruud, C. O., DiMascio, P. S. and Yavelak, J. J., 1985, "Comparison of three residual-stress measurement methods on a mild steel", *Experimental Mechanics*, Vol. 25, pp. 338-343.
- (6) Perry, A. J., Sue, J. A. and Martin, P. J., 1996, "Practical measurement of the residual stress in coatings", *Surface and Coatings Technology*, Vol. 81, pp. 17-28.
- (7) Bergman, L. and Nemanich, R. J., 1995, "Raman and photoluminescence analysis of stress state and impurity distribution in diamond thin films", *J. Appl. Phys.*, Vol. 78, pp. 6709-6719.
- (8) Doerner, M. F. and Nix, W. D., 1986, "A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments", *J. Mater. Res.*, Vol. 1, pp. 601-609.
- (9) Pharr, G. M. and Oliver, W. C., 1992, "Measurement of thin film mechanical properties using nanoindentation", *MRS bulletin*, July, pp. 28-33.
- (10) Tsui, T. Y., Oliver, W. C. and Pharr, G. M., 1996, "Influences of stress on the measurement of mechanical properties using nanoindentation: Part I. Experimental studies in an aluminum alloy", *J. Mater. Res.*, Vol. 11, pp. 752-759.
- (11) Bolshakov, A., Oliver, W. C. and Pharr, G. M., 1996, "Influences of stress on the measurement of mechanical properties using nanoindentation: Part II. Finite element simulations", *J. Mater. Res.*, Vol. 11, pp. 760-768.
- (12) LaFontaine, W. R., Paszkiet, C. A., Korhonen, M. A. and Li, Che-Yu, 1991, "Residual stress measurements of thin aluminum metallizations by continuous indentation and x-ray stress measurement techniques", *J. Mater. Res.*, Vol. 6, pp. 2084-2090.